

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第12期

Vol.35 No.12

2014

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次(卷终)

北京雾霾天气生物气溶胶浓度和粒径特征 高敏,仇天雷,贾瑞志,韩梅琳,宋渊,王旭明(4415)

杭州大气颗粒物散射消光特性及霾天气污染特征 徐昶,叶辉,沈建东,孙鸿良,洪盛茂,焦荔,黄侃(4422)

太原市采暖季 PM_{2.5} 中元素特征及重金属健康风险评价 李丽娟,温彦平,彭林,白慧玲,刘凤娴,史美鲜(4431)

成都市城区 PM_{2.5} 中二次水溶性无机离子污染特征 李友平,周洪,张智胜,王启元,罗磊(4439)

北京市臭氧的时空分布特征 王占山,李云婷,陈添,张大伟,孙峰,孙瑞雯,董欣,孙乃迪,潘丽波(4446)

南京北郊大气 VOCs 变化特征及来源解析 安俊琳,朱彬,王红磊,杨辉(4454)

祁连山中段降水化学的环境意义研究 李宗杰,李宗省,田青,宋玲玲,贾冰,郭瑞,宋耀选,苏索南,韩春坛(4465)

中亚热带典型林分不同层次氮硫湿沉降动态变化 孙涛,马明,王定勇,黄礼昕(4475)

本底大气 CO₂ 观测分析过程中 QA/QC 方法的建立与评估 刘立新,周凌晔,夏玲君,王红阳,方双喜(4482)

轻型汽油车 CH₄ 和 N₂O 排放因子研究 何立强,宋敬浩,胡京南,解淑霞,祖雷(4489)

煤燃烧超细微颗粒粒径谱演变及排放因子的实验研究 孙在,杨文俊,谢小芳,陈秋方,蔡志良(4495)

春、夏季长江口及其邻近海域溶解 N₂O 的分布和海-气交换通量 王岚,张桂玲,孙明爽,任景玲(4502)

珠江口水体组分的吸收特性分析 王珊珊,王永波,扶卿华,尹斌,李云梅(4511)

河流汇合处水体磷素形态特征及紫外光照的影响:以渠江-嘉陵江、涪江-嘉陵江交汇为例 闫金龙,江韬,魏世强,李玲,郭念,李璐璐,刘江(4522)

基于太湖微囊藻毒素的叶绿素 a 阈值研究 魏代春,苏婧,纪丹凤,伏小勇,王骥,霍守亮,崔驰飞,唐军,席北斗(4530)

百花湖周边城市近郊小流域氮、磷输出时空特征 冯源嵩,林陶,杨庆媛(4537)

自然光照对淹水条件下三峡库区消落带典型土壤磷释放影响 郭念,江韬,魏世强,闫金龙,梁俭,卢松,高洁(4544)

垂直流人工湿地 LDHs 覆膜改性沸石基质强化除磷效果及其机制 张翔凌,陈俊杰,郭露,陈巧珍,王晓晓(4553)

三峡库区消落带 3 种植物淹水后汞的动态变化及其对水体的影响 张翔,张成,孙荣国,王定勇(4560)

纳米 TiO₂ 对底泥中汞释放及活化的影响 张金洋,李楚娴,王定勇,周雄,孙荣国,张成,梁丽(4567)

首都水源地——洋河流域人为源多环芳烃(PAHs)排放清单估算及其影响分析 高佳佳,罗维,奚晓霞(4573)

石化工业园区有毒废水来源识别研究 杨茜,于茵,周岳溪,陈学民,伏小勇,王淼(4582)

污水处理厂中红霉素抗药性基因的污染特征及选择性因子 李侃竹,吴立乐,黄圣琳,何势,刘振鸿,薛罡,高品(4589)

2 种填料 BAF 深度处理印染废水沿程污染物变化规律研究 刘俊峰,范举红,刘锐,陈吕军,张永明(4596)

硫酸盐还原型甲烷厌氧氧化菌群驯化及其群落特征 席婧茹,刘素琴,李琳,刘俊新(4602)

MBR 处理腈纶废水的效能及微生物群落结构分析 魏健,宋永会,赵乐(4610)

制革废水的厌氧氨氧化 ABR 脱氮工艺研究 曾国驱,贾晓珊(4618)

生物滤池工艺的数值模拟与运行优化 邹宗森,施汉昌,陈向强,谢小青(4627)

气升装置对厌氧氨氧化污泥形态及性能的影响 李祥,黄勇,袁怡,周呈,陈宗短,张大林(4636)

给水厂污泥改良生物滞留填料除磷效果的研究 王建军,李田,张颖(4642)

北京地区不同城镇污水处理厂堆肥污泥的营养含量和重金属污染 白莉萍,齐洪涛,伏亚萍,李萍(4648)

电子垃圾拆解区污染池塘中鱼类多氯联苯及其代谢产物的组织分配及暴露风险 唐斌,罗孝俊,曾艳红,麦碧娴(4655)

广东罗非鱼养殖区水体和鱼体中重金属、HCHs、DDTs 含量及风险评价 谢文平,朱新平,郑光明,马丽莎(4663)

崇明典型水生生物中雌激素含量和分布特征 耿婧婧,叶爱丽,杨毅,刘敏,张婧,周俊良(4671)

啮虫脒光催化降解动力学的优化及其降解产物的分析 周文常,阳海,胡志斌,兰世林(4678)

氮添加对生长季寒温带针叶林土壤有效氮和酸化的影响 陈高起,傅瓦利,罗亚晨,高文龙,李胜功,杨浩(4686)

土地利用方式对缙云山土壤团聚体稳定性及其有机碳的影响 李鉴霖,江长胜,郝庆菊(4695)

上海市郊设施大棚次生盐渍化土壤盐分含量调查及典型对应分析 唐冬,毛亮,支月娥,张进忠,周培,柴晓彤(4705)

某铅酸蓄电池污染场地表层土壤重金属 Pb 空间分布预测研究 刘庚,牛俊杰,张朝,赵鑫,郭观林(4712)

海泡石对镉-铅复合污染钝化修复效应及其土壤环境质量影响研究 孙约兵,王朋超,徐应明,孙扬,秦旭,赵立杰,王林,梁学峰(4720)

盐碱区不同开发年限水田温室气体排放规律及影响因素 汤洁,方天儒,侯克怡,赵仁竹,梁爽(4727)

不同热解温度生物炭对 Cd(II) 的吸附特性 王震宇,刘国成,Monica Xing,李锋民,郑浩(4735)

碱土金属钙沉积对 Mn-Ce/TiO₂ 低温 SCR 催化剂脱硝性能的影响 周爱奕,毛华峰,盛重义,谭月,杨柳(4745)

国内外水泥工业大气污染物排放标准比较研究 江梅,李晓倩,纪亮,邹兰,魏玉霞,赵国华,车飞,李刚,张国宁(4752)

我国水泥工业大气污染物排放标准的修订历程与思考 江梅,李晓倩,纪亮,邹兰,魏玉霞,赵国华,车飞,李刚,张国宁(4759)

《环境科学》第35卷(2014年)总目录 (4767)

《环境科学》征订启事(4617) 《环境科学》征稿简则(4654) 信息(4474, 4529, 4536, 4744)

煤燃烧超细微粒粒径谱演变及排放因子的实验研究

孙在, 杨文俊, 谢小芳, 陈秋方, 蔡志良

(中国计量学院计量测试工程学院, 杭州 310018)

摘要: 对燃煤超细微粒的排放特性进行研究, 利用自行搭建的气溶胶实验平台, 使用快速粒径谱仪 FMPS 对燃煤超细颗粒 (5.6 ~ 560 nm) 数量粒径谱进行了测量, 同时利用颗粒物动态演变模型, 通过最优化算法, 得到颗粒沉积损失率和排放率随粒径的分布, 并计算了燃煤颗粒的排放因子. 结果表明, 在颗粒生成的初始阶段, 燃煤颗粒数量粒径谱是多分散的复杂谱, 初始粒径谱主要由 10 nm、30 ~ 40 nm 及 100 ~ 200 nm 这 3 个模态组成, 其中, 10 nm 模态颗粒数浓度较高, 100 ~ 200 nm 模态颗粒粒径谱呈对数正态分布, 数量中位径 CMD 均值为 16 nm. 随着时间的推移, 总数量浓度呈指数规律衰减, CMD 先增大后逐渐趋于稳定. 排放因子的计算结果显示, 在室温条件下, 燃煤颗粒的排放因子达到 $(5.54 \times 10^{12} \pm 2.18 \times 10^{12})$ 个 $\cdot g^{-1}$.

关键词: 燃煤; 粒径谱; 超细微粒; 数浓度; 数量中位径; 排放因子

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)12-4495-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.2014.12.011

Experimental Study on the Size Spectra and Emission Factor of Ultrafine Particle from Coal Combustion

SUN Zai, YANG Wen-jun, XIE Xiao-fang, CHEN Qiu-fang, CAI Zhi-liang

(College of Metrology and Measurement Engineering, China Jiliang University, Hangzhou 310018, China)

Abstract: The emission characteristics of ultrafine particles released from pulverized coal combustion were studied, the size spectra of ultrafine particles (5.6-560 nm) were measured with FMPS (fast mobility particle sizer) on a self-built aerosol experiment platform. Meanwhile, a particle dynamic evolution model was established to obtain the particle deposition rate and the emission rate through the optimized algorithm. Finally, the emission factor was calculated. The results showed that at the beginning of particle generation, the size spectra were polydisperse and complex, the initial size spectra was mainly composed of three modes including 10 nm, 30-40 nm and 100-200 nm. Among them, the number concentration of mode around 10 nm was higher than those of other modes, the size spectrum of around 100-200 nm was lognormal distributed, with a CMD (count median diameter) of around 16 nm. Then, as time went on, the total number concentration was decayed by exponential law, the CMD first increased and then tended to be stable gradually. The calculation results showed that the emission factor of particles from coal combustion under laboratory condition was $(5.54 \times 10^{12} \pm 2.18 \times 10^{12})$ unit $\cdot g^{-1}$.

Key words: coal combustion; size spectrum; ultrafine particle; number concentration; count median diameter (CMD); emission factor

大气颗粒物由分散在大气中的固体和液体物质组成, 是指标污染物的一类. 根据环境保护部公布的《2013 年中国环境状况公报》^[1], 2013 年全国平均霾日数为 35.9 d, 为 1961 年以来最多. 长期暴露于细颗粒物污染严重的空气中会增加罹患心血管疾病及肺癌的风险^[2, 3], 即便空气品质符合欧盟的标准 ($PM_{2.5} \leq 25 \mu g \cdot m^{-3}$), 长期暴露在交通和工业空气污染的欧洲民众, 早逝的风险仍然较高^[4]. 严重的颗粒物污染给我国带来较大的健康损失, 世界银行与国家环保总局于 2007 年联合发表的一项《污染的负担在中国》研究报告^[5]显示, 因空气污染造成的经济损失约占全国 GDP 的 4.1%, 其中由空气污染引起的健康损失约占 GDP 的 3.8%.

我国是能源消费大国, 根据 BP 公司的统计, 2012 年我国一次能源消费总量达到全球消费总量的 21% 以上, 而煤炭作为我国最主要的一次能源,

近十年来的消费量逐年增加, 2012 年消费总量达到 1 873.3 百万吨油当量 (million tonnes of oil equivalent, Mtoe), 占全球消费总量的一半^[6]. 在短时间内, 我国以燃煤为主的能源结构不会有所改变, 燃煤排放的颗粒物是大气颗粒物的重要来源, 我国大气颗粒物污染状况还会持续很长时间. Zhang 等^[7]对北京地区 $PM_{2.5}$ 化学组成及源解析季节变化研究发现, 燃煤对北京 $PM_{2.5}$ 的年平均贡献率为 14%. 研究燃煤颗粒的生成及排放特性对治理大气颗粒物污染具有很好的借鉴意义.

引入排放因子的概念有助于较准确地衡量污染

收稿日期: 2014-05-18; 修订日期: 2014-07-07

基金项目: 国家自然科学基金项目 (10972209); 国家自然科学基金重点项目 (11132008); 浙江省教育厅科研项目 (Y200805909)

作者简介: 孙在 (1971 ~), 男, 博士, 主要研究方向为大气污染传输与控制、超细微粒动力学及环境流体力学, E-mail: sunzai@cjlu.edu.cn

物总量以及其对大气污染的贡献. 蔡皓等^[8]计算了不同排放标准机动车的排放因子, 唐喜斌等^[9]获取长三角地区秸秆燃烧污染物排放因子. 对于燃煤排放因子, Ozgen 等^[10]测量了 5 种木材的排放因子, 刘源等^[11]测量了民用燃煤含碳颗粒物的排放因子, 海婷婷等^[12]获取了我国民用燃煤烟气中多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 排放因子的实测数据, 耿春梅等^[13]比较了生物质锅炉和燃煤锅炉颗粒物的排放因子, Chen 等^[14]研究了民用燃煤含碳颗粒及多环芳烃的排放因子. 但目前, 对于燃煤颗粒物数量排放因子的研究还很少. 本研究通过搭建气溶胶实验平台, 利用颗粒动力学演变模型, 结合快速粒径谱仪 (fast mobility particle sizer, FMPS), 对燃煤超细颗粒 (5.6 ~ 560 nm) 数量粒径谱进行了测量, 并计算其数量排放因子. 通过排放因子的数据, 对污染物排放清单进行补充, 将有助于合理、科学地制定排放限值, 制定新的污染物排放标准.

1 材料与方 法

1.1 实验材料与气溶胶实验平台

本实验所用的煤粉购于陕西神华煤厂, 该煤粉的技术指标列于表 1, 在室温避光条件下保存.

表 1 煤粉技术指标

指标	符号	单位	数值
应用基含碳量	C_{ar}	%	68.27
应用基含氢量	H_{ar}	%	5.19
应用基含硫量	S_{ar}	%	0.43
应用基含氧量	O_{ar}	%	10.51
应用基含氮量	N_{ar}	%	0.88
应用基含灰量	A_{ar}	%	7.11
应用基含水量	M_{ar}	%	7.61
可燃基挥发分	V_{daf}	%	35.00
应用基挥发分	V_{ad}	%	30.46
应用基低位发热值	$Q_{net, V, ar}$	$\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1}$	27 600

气溶胶实验平台示意图如图 1. 主要组成部分是气溶胶实验箱 (1), 该实验箱由喷漆木板制作而成, 内部空间尺寸为 1.00 m × 0.98 m × 0.98 m, 箱门上留有有机玻璃窗口可供观察箱内情况. 实验箱侧面底部开有进风口, 通过 TSI 的高效空气过滤器 (6) (HEPA Capsule Filter, 过滤器性能为 $\geq 0.3 \mu\text{m}$ 截留率 99.97%) 将箱体外空气进行过滤后通入箱内, 保持内外气压的平衡. 壁面开有测量口, 用不锈钢管 (3) 外接测量仪器. 箱内顶部安装风扇 (9), 搅动箱内空气使颗粒在箱内分布均匀.

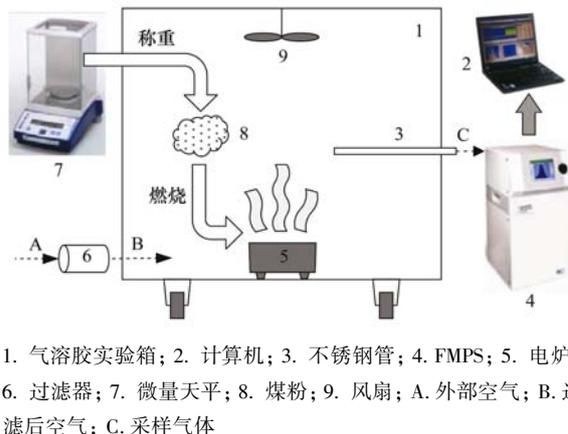


图 1 气溶胶实验平台示意

Fig. 1 Schematic diagram of the aerosol experiment platform

1.2 样品采集与分析

数浓度粒径谱的测量使用美国 TSI 公司的快速电迁移率粒径谱仪 FMPS, 共有 32 个分辨率通道, 采用电迁移检测技术进行粒子检测, 可以检测 5.6 ~ 560 nm 粒径范围的粒子, 采样流量为 $10.0 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$.

称重使用 Mettler Toledo 公司的 EL104 型微量天平, 最大称量值 120 g, 最大允许误差 $\pm 0.0005 \text{ g}$.

图 2 为实验中使用的电炉, 铁丝线圈加热产生热量. 该电炉最大功率 2 kW, 实验时, 先将电炉在实验箱外预热若干分钟, 一方面为了使加入煤粉时能使煤粉快速燃烧, 另一方面避免将箱内温度不必要的升高. 然后将电炉放入箱内, 均匀撒上已称量好的煤粉, 迅速关上箱门, 在箱外通过有机玻璃观察煤粉燃烧情况, 待煤粉燃烧完毕后关闭电炉电源, 开启风扇约半分钟, 使颗粒物在箱内充分混合, 并启动测量仪器.



图 2 燃烧煤粉用的电炉

Fig. 2 Furnace burning pulverized coal

1.3 数学模型

建立包含颗粒主要传输机制的演变模型, 为简

化方程,对模型进行如下假设:①颗粒为单位密度($\rho = 1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$)质地均匀实心球体;②密闭空间内的颗粒物混合均匀;③不考虑电场、热力学、凝结^[15]效应。

根据以上假设,密闭空间内颗粒的演变方程为^[16]:

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \frac{E_{r_i}}{V} - \sum_{j=1,l} K_{i,j} N_j N_i + \sum C_{g_i} - \beta_0 N_i - (N_i + P_i N_{out,i}) \alpha \quad (1)$$

式中,各个系数的含义如表 2。

表 2 方程系数含义

系数	含义	单位
i	第 i 个粒径段	—
N	数量浓度	$\text{个} \cdot \text{cm}^{-3}$
E_r	颗粒排放率	$\text{个} \cdot \text{s}^{-1}$
V	实验箱体积	cm^3
K	颗粒凝并系数	$\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$
l	粒径段总数	—
β_0	颗粒沉积损失率	s^{-1}
P	外部颗粒渗透率	—
α	空气交换率	s^{-1}

凝并系数 K 的具体表达式可以参考文献[17, 18], $\sum C_{g_i}$ 是颗粒物凝并增长项,表示两个颗粒碰

撞产生的新颗粒,需要将所有的组合情况累计在内,公式为:

$$\sum C_{g_i} = \sum_{m=1,i; k=1,j} K_{m,k} N_m N_k \quad (2)$$

同时满足条件:

$$d_i = \sqrt[3]{d_m^3 + d_k^3} \quad (3)$$

沉积率的确定是气溶胶研究中的难点,不少研究者对此作出了工作^[19, 20]。本研究中沉积损失率 β_0 由下式^[16]确定:

$$\beta_0 = \frac{DRe^{7/8}(Sc)^{1/4}}{BL^2} \quad (4)$$

式中, D 为颗粒扩散系数, Re 为雷诺数, Sc 为施密特数, B 为经验系数, L 为特征长度。

利用 Klepeis 等^[21] 的最优化算法,结合实验数据和经过验证的模型参数,计算颗粒物的排放率 E_r ($\text{个} \cdot \text{s}^{-1}$),并利用下式计算排放因子 E_f ($\text{个} \cdot \text{g}^{-1}$):

$$E_f = \frac{E_r}{B} \quad (5)$$

式中, B 为煤粉燃烧率($\text{g} \cdot \text{s}^{-1}$)。

2 结果与讨论

2.1 粒径谱与浓度演变

实验进行 8 组,每组参数列于表 3。

表 3 各组初始状态和环境参数

编号	初始浓度 / $\text{个} \cdot \text{cm}^{-3}$	CMD / nm	GSD ¹⁾ / nm	T/K	RH/%	燃烧量 / mg	燃烧时间 / s
1	5.92×10^6	21.2	3.23	302	52.0	60.7	12
2	1.24×10^6	11.6	2.42	306	42.1	70.1	10
3	0.93×10^6	10.7	2.52	300	45.6	40.8	7
4	0.65×10^6	12.7	3.26	300	55.6	49.0	8
5	1.00×10^6	18.7	2.88	300	44.8	56.5	9
6	0.61×10^6	22.3	2.67	301	44.1	53.5	9
7	1.22×10^6	16.8	2.64	305	60.5	70.9	10
8	1.23×10^6	19.4	2.27	302	62.2	50.0	8

1) 几何标准差 (geometrical standard deviation, GSD)

图 3 反映燃煤颗粒数量粒径谱随时间的变化情况。使用电炉燃烧的煤粉,其粒径谱是多种谱混合的产物,并不像有些排放源(如蚊香^[22]、蜡烛^[23]、香烟^[24]等)那样生成的粒径谱呈单一的对数正态分布状。在颗粒生成后的初始阶段,其数量粒径谱主要由 10 nm、30~40 nm 及 100~200 nm 这 3 个模式组成。10 nm 左右的模式较明显,往往浓度较高,这些颗粒在之后的衰减过程中将很快衰减下去,怀疑是由于电炉高温蒸发出来的细微粒子;100~200 nm 左右的模式从形态上看呈对数正态分布;而 30

~40 nm 左右的模式有时不易观察。

随着时间的推移,燃煤超细微粒在封闭箱内动态变化明显。10 nm 模式的颗粒衰减十分迅速,往往在 5 min 后就无法明显识别,100~200 nm 模式的颗粒粒径谱始终保持较好的对数正态分布的形态,随着时间的推移浓度逐渐降低。可以注意到的是,在一些初始状态有大量 10 nm 模式颗粒生成的实验组中,100~200 nm 模式的粒径谱并非直接下降,而是先右移并增大,再逐渐降低。颗粒的凝并与粒径有关,往往两个颗粒粒径相差越大凝并发生越

迅速,从而生成一个比大颗粒更大的颗粒. 凝并作用是导致颗粒发生上述变化的一个主要因素. 此

外,沉积、泄漏及仪器的抽吸等因素都是导致粒径谱下降的因素.

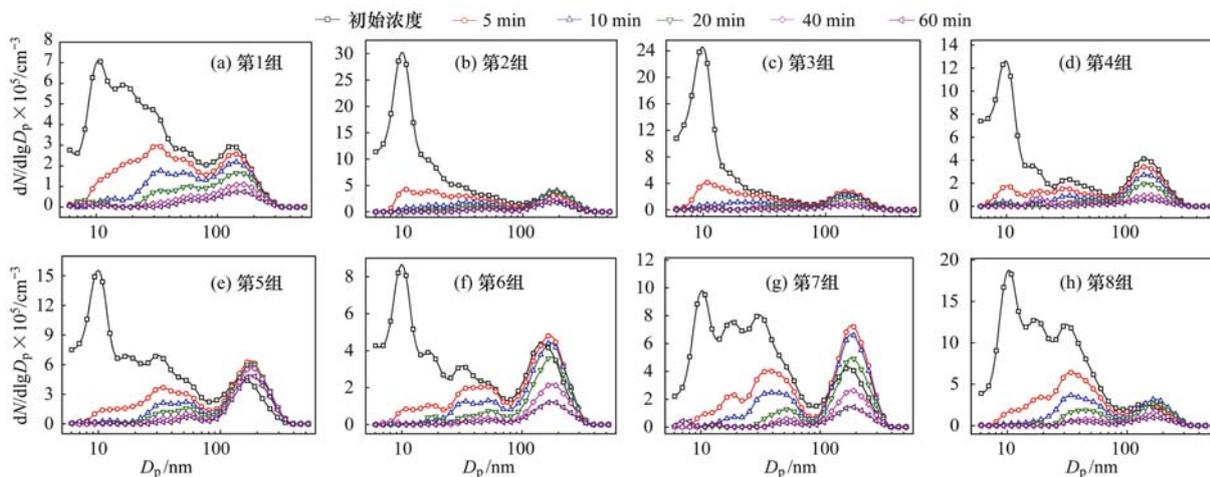


图3 燃煤颗粒粒径谱

Fig. 3 Size spectra of particle number from pulverized coal combustion

图4反映的是燃煤超细微粒总数量浓度的变化. 从图中可以看出,数浓度呈一定趋势下降,在初

始时有大量10 nm左右颗粒的实验组中,总数浓度往往在20 min后就降低到初始浓度的20%以下.

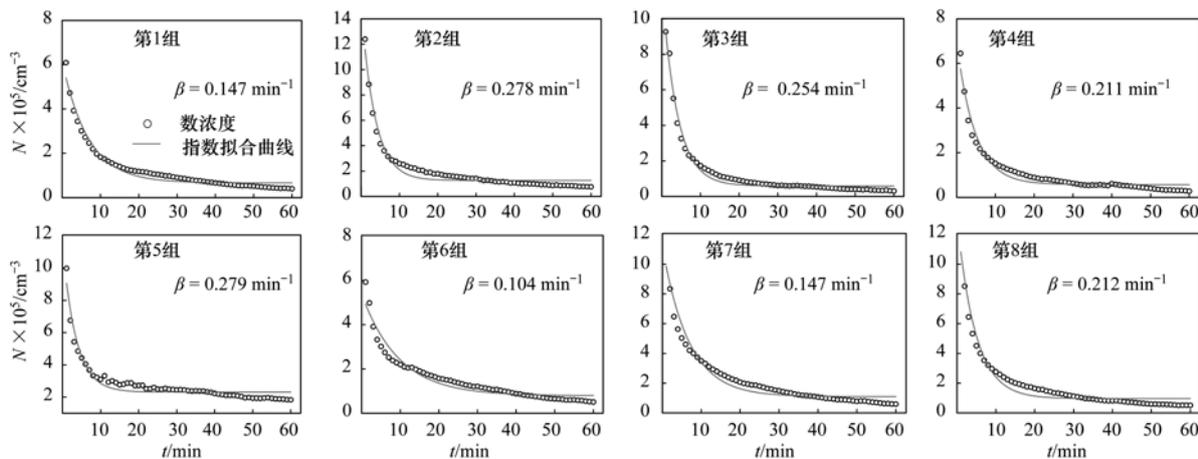


图4 燃煤颗粒数浓度衰减

Fig. 4 Decay of number concentration from pulverized coal combustion

使用指数衰减式(6)对数浓度进行拟合. 式(6)中, $N(t)$ 表示为 t 时刻颗粒物数浓度, N_0 、 b 、 β 为待定系数,其中 β 为指数衰减率(min^{-1}).

$$N(t) = N_0 \exp(-\beta t) + b \quad (6)$$

计算每个粒径段在整个衰减过程中的衰减率,可以得到衰减率随粒径的变化关系,图5为综合8组实验,对各粒径段数浓度衰减率的统计. 从中可以看出随着颗粒粒径的减小,其衰减率具有增大的趋势.

图6反映的是8组实验数量中位径CMD随时间的变化情况. 初始时平均CMD为16 nm,从中可以看出,CMD随时间逐渐增大,在衰减20 min后,其

均值逐渐趋于稳定.

2.2 模型验证

在公式(1)的动态演变模型中,颗粒排放率和沉积损失率均为未知项,首先考虑浓度衰减阶段,确定颗粒沉积损失率,并推算出颗粒粒径谱的演变,通过与实验数据的比较,验证模型的精确程度. 其次再考虑燃烧阶段,根据确定的沉积率,得到颗粒排放率.

根据公式(4),确定实验箱内颗粒沉积损失率,绘于图7,经验系数 B 取的值为0.07.

图8为对第1组实验的模型验证,图9为模拟与实验粒径谱各时刻数值的线性拟合. 可见模拟结

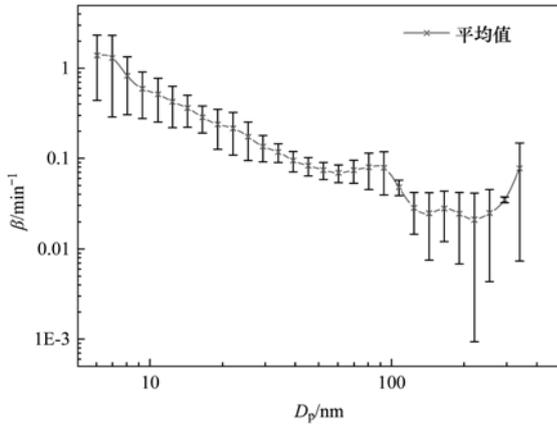


图5 数浓度衰减率随粒径的变化

Fig. 5 Decay rate of number concentration vs. particle diameter

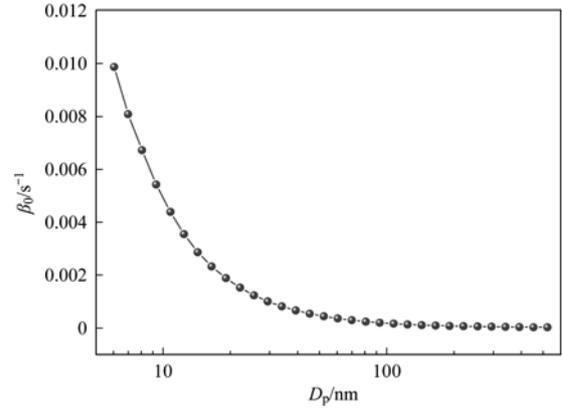


图7 优化后的颗粒沉积率曲线

Fig. 7 Optimized curve of particle deposition rate

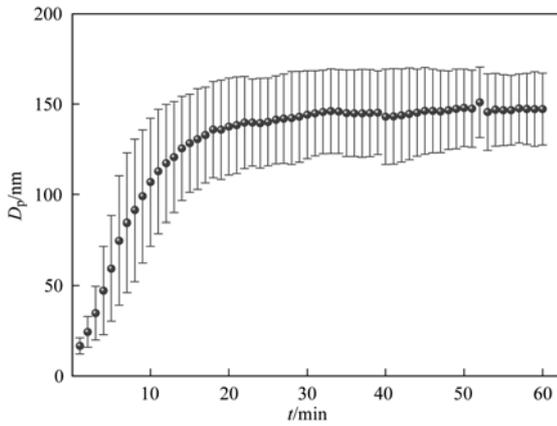


图6 CMD 随时间的变化

Fig. 6 Variation of particle CMD with time

果与实验测量值在几个时刻上都吻合地较好,模拟与实验值的线性拟合度也较高。

2.3 排放因子

根据上述得到的沉积率,计算颗粒排放率,见图 10。

根据公式(5)计算排放因子:

$$E_r = \frac{E_r}{B} = \frac{1.67 \times 10^{10} (\text{个} \cdot \text{s}^{-1})}{60.7 \times 10^{-3} (\text{g})/12 (\text{s})} = 3.30 \times 10^{12} (\text{个} \cdot \text{g}^{-1})$$

利用上述方法,对所测量的实验数据进行排放因子的计算,并将结果统计于表 4。

由表 4 统计得到燃煤颗粒的排放因子为 $(5.54 \times 10^{12} \pm 2.18 \times 10^{12}) \text{个} \cdot \text{g}^{-1}$ 。

不同燃烧物的排放因子比较列于表 5。

表 4 颗粒排放因子统计

Table 4 Statistics of emission factors of particle number

编号	T/K	RH/%	燃烧量/mg	燃烧时间/s	$E_r \times 10^{10}$ /个·s ⁻¹	$E_r \times 10^{12}$ /个·g ⁻¹
1	302	52.0	60.7	12	1.67	3.30
2	306	42.1	70.1	10	4.52	6.45
3	300	45.6	40.8	7	3.38	5.80
4	300	55.6	49.0	8	2.33	3.80
5	300	44.8	56.5	9	3.63	5.78
6	301	44.1	53.5	9	2.12	3.56
7	305	60.5	70.9	10	4.43	6.25
8	302	62.2	50.0	8	4.44	7.10
9	305	41.4	46.6	10	3.70	7.95
10	300	68.3	38.3	6	1.36	2.14
11	305	58.0	90.0	10	4.43	4.93
12	303	68.7	64.7	8	4.09	5.06
13	301	49.2	44.8	7	1.86	2.90
14	306	67.3	32.2	6	5.25	9.79
15	305	57.8	10.2	5	1.69	8.28

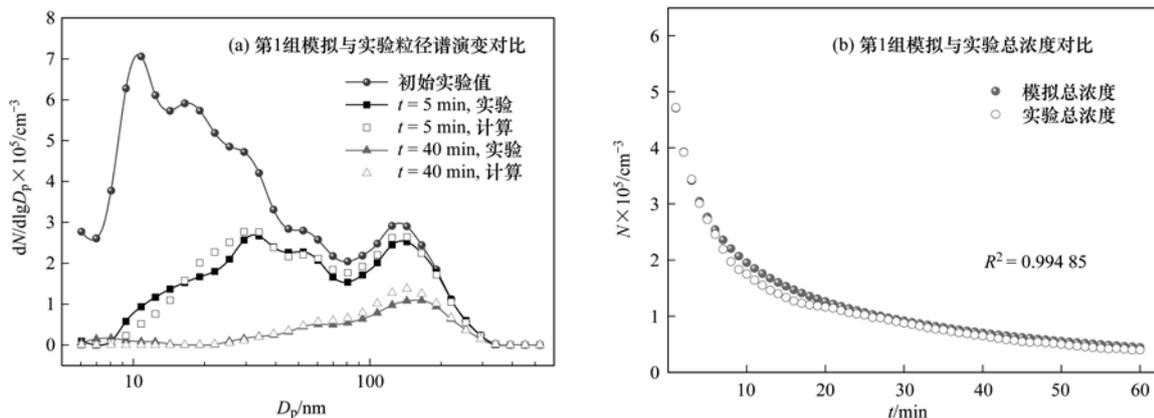


图 8 模拟与实验对比(第 1 组实验)

Fig. 8 Comparison between experiment data and model prediction (Group 1)

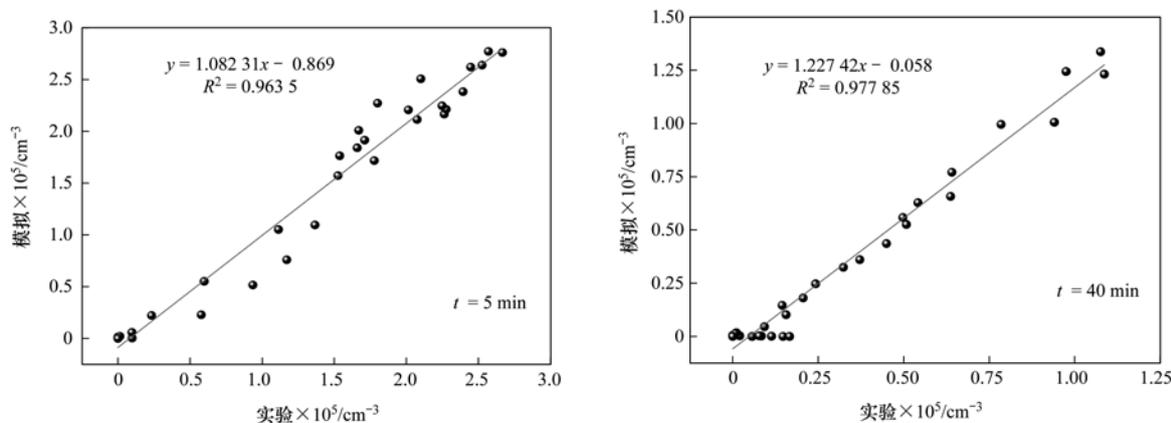


图 9 粒径谱浓度各时刻线性拟合(第 1 组实验)

Fig. 9 Regression of size-resolved particle concentration between experiment data and model prediction (Group 1)

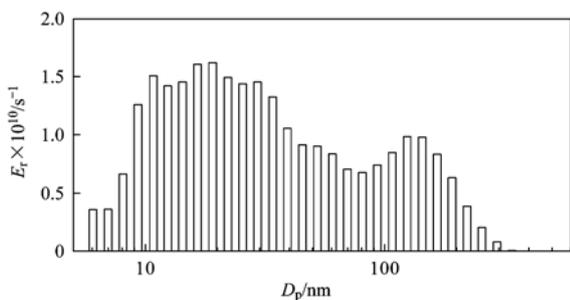


图 10 数量排放率分布(第 1 组实验)

Fig. 10 Distribution of number emission rate (Group 1)

表 5 颗粒数量排放因子比较

Table 5 Comparison of emission factors of particle number

编号	$E_f \times 10^{12}/\text{个} \cdot \text{g}^{-1}$	燃烧物种类	文献
1	5.54 ± 2.18	超细煤粉	本实验
2	4.05 ± 0.73	蜡烛稳定燃烧	[23]
3	1.49 ± 0.32	蜡烛不稳定燃烧	[23]
4	1.4	木材	[25]

3 结论

(1) 燃煤颗粒数量粒径谱是多分散的复杂谱,

燃烧后的初始粒径谱主要由 10 nm、30 ~ 40 nm 及 100 ~ 200 nm 这 3 个模态组成. 其中, 10 nm 模态颗粒数浓度较高, 100 ~ 200 nm 模态颗粒粒径谱呈对数正态分布.

(2) 总数浓度呈指数规律衰减, 随着颗粒粒径的减小, 其衰减率具有增大的趋势.

(3) 燃煤颗粒刚生成的初始阶段, CMD 平均值为 16 nm, 后逐渐增大, 20 min 后趋于平稳. 说明颗粒物粒径在衰减过程中是动态变化的, 凝并效应是造成这类现象的主要因素.

(4) 通过动态演变模型获得了无法通过仪器直接测量得到的数据, 提供了更详细的排放源清单. 计算结果显示, 在室温条件下, 燃煤颗粒的排放因子达到 $(5.54 \times 10^{12} \pm 2.18 \times 10^{12}) \text{ 个} \cdot \text{g}^{-1}$.

参考文献:

- [1] 环境保护部. 2013 年中国环境状况公报[R]. 北京, 2014. 20-23.
- [2] Pope C A, Burnett R T, Thun M J, *et al.* Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine

- particulate air pollution[J]. The Journal of the American Medical Association, 2002, **287**(9): 1132-1141.
- [3] Brook R D, Rajagopalan S, Pope C A, *et al.* Particulate matter air pollution and cardiovascular disease; An update to the scientific statement from the American heart association [J]. Circulation, 2010, **121**(21): 2331-2378.
- [4] Beelen R, Raaschou-Nielsen O, Stafoggia M, *et al.* Effects of long-term exposure to air pollution on natural-cause mortality; an analysis of 22 European cohorts within the multicentre ESCAPE project[J]. The Lancet, 2014, **383**(9919): 785-795.
- [5] The World Bank. Cost of pollution in China: Economic estimates of physical damages [R]. 2007. 67-75.
- [6] BP. BP statistical review of world energy[R]. 2013. 33-34, 40-41.
- [7] Zhang R, Jing J, Tao J, *et al.* Chemical characterization and source apportionment of PM_{2.5} in Beijing: seasonal perspective [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, **13** (14): 7053-7074.
- [8] 蔡皓, 谢绍东. 中国不同排放标准机动车排放因子的确定 [J]. 北京大学学报(自然科学版), 2010, **46**(3): 319-326.
- [9] 唐喜斌, 黄成, 楼晟荣, 等. 长三角地区秸秆燃烧排放因子与颗粒物成分谱研究 [J]. 环境科学, 2014, **35**(5): 1623-1632.
- [10] Ozgen S, Caserini S, Galante S, *et al.* Emission factors from small scale appliances burning wood and pellets [J]. Atmospheric Environment, 2014, **94**: 144-153.
- [11] 刘源, 张元勋, 魏永杰, 等. 民用燃煤含碳颗粒物的排放因子测量 [J]. 环境科学学报, 2007, **27**(9): 1409-1416.
- [12] 海婷婷, 陈颖军, 王艳, 等. 民用燃煤源中多环芳烃排放因子实测及其影响因素研究 [J]. 环境科学, 2013, **34**(7): 2533-2538.
- [13] 耿春梅, 陈建华, 王歆华, 等. 生物质锅炉与燃煤锅炉颗粒物排放特征比较 [J]. 环境科学研究, 2013, **26**(6): 666-671.
- [14] Chen Y J, Sheng G Y, Bi X H, *et al.* Emission factors for carbonaceous particles and polycyclic aromatic hydrocarbons from residential coal combustion in China [J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(6): 1861-1867.
- [15] Kousaka Y, Wang C S, Okuyama K, *et al.* Response of cigarette smoke particles to change in humidity [J]. Journal of Chemical Engineering of Japan, 1982, **15**(1): 75-76.
- [16] 孙在, 黄震, 王嘉松, 等. 气溶胶细微颗粒物的传输机理研究 [A]. 见: 中国环境科学学会学术年会. 优秀论文集(下卷) [C]. 北京: 中国环境科学出版社, 2006. 2473-2477.
- [17] Hinds W C. Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles [M]. New York: John Wiley & Sons, 2012. 260-267.
- [18] 向晓东. 气溶胶科学技术基础 [M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2012. 90-94.
- [19] Lai A C K. Particle deposition indoors; A review [J]. Indoor Air, 2002, **12**(4): 211-214.
- [20] Thatcher T L, Layton D W. Deposition, resuspension, and penetration of particles within a residence [J]. Atmospheric Environment, 1995, **29**(13): 1487-1497.
- [21] Klepeis N E, Apte M G, Gundel L A, *et al.* Determining size-specific emission factors for environmental tobacco smoke particles [J]. Aerosol Science and Technology, 2003, **37**(10): 780-790.
- [22] Yang T T, Chen C C, Lin J M. Characterization of gas and particle emission from smoldering incenses with various diameters [J]. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 2006, **77**(6): 799-806.
- [23] Sun Z, Huang Z, Wang J S. Studies on the size distribution, number and mass emission factors of candle particles characterized by modes of burning [J]. Journal of Aerosol Science, 2006, **37**(11): 1484-1496.
- [24] 孙在, 苏中地, 张洪军, 等. 香烟燃烧产生的亚微米颗粒物动态粒径谱特征 [J]. 工程热物理学报, 2008, **29**(2): 343-346.
- [25] Ozgen S, Cernuschi S, Giugliano M. Experimental evaluation of particle number emissions from wood combustion in a closed fireplace [J]. Biomass and Bioenergy, 2013, **50**: 65-74.

CONTENTS

Concentration and Size Distribution of Bioaerosols at Non-haze and Haze Days in Beijing	GAO Min, QIU Tian-lei, JIA Rui-zhi, <i>et al.</i> (4415)
Light Scattering Extinction Properties of Atmospheric Particle and Pollution Characteristics in Hazy Weather in Hangzhou	XU Chang, YE Hui, SHEN Jian-dong, <i>et al.</i> (4422)
Characteristic of Elements in PM _{2.5} and Health Risk Assessment of Heavy Metals During Heating Season in Taiyuan	LI Li-juan, WEN Yan-ping, PENG Lin, <i>et al.</i> (4431)
Pollution Characteristics of Secondary Water-soluble Inorganic Ions of PM _{2.5} in Urban Chengdu, China	LI You-ping, ZHOU Hong, ZHANG Zhi-sheng, <i>et al.</i> (4439)
Temporal and Spatial Distribution Characteristics of Ozone in Beijing	WANG Zhan-shan, LI Yun-ting, CHEN Tian, <i>et al.</i> (4446)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds (VOCs) in the Northern Suburb of Nanjing	AN Jun-lin, ZHU Bin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (4454)
Environmental Significance of Wet Deposition Composition in the Central Qilian Mountains, China	LI Zong-jie, LI Zong-xing, TIAN Qing, <i>et al.</i> (4465)
Dynamics of Nitrogen and Sulfur Wet Deposition in Typical Forest Stand at Different Spatial Levels in Simian Mountain, Mid-subtropical Region	SUN Tao, MA Ming, WANG Ding-yong, <i>et al.</i> (4475)
Establishment and Assessment of QA/QC Method for Sampling and Analysis of Atmosphere Background CO ₂	LIU Li-xin, ZHOU Ling-xi, XIA Ling-jun, <i>et al.</i> (4482)
An Investigation of the CH ₄ and N ₂ O Emission Factors of Light-duty Gasoline Vehicles	HE Li-qiang, SONG Jing-hao, HU Jing-nan, <i>et al.</i> (4489)
Experimental Study on the Size Spectra and Emission Factor of Ultrafine Particle from Coal Combustion	SUN Zai, YANG Wen-jun, XIE Xiao-fang, <i>et al.</i> (4495)
Distributions and Air-Sea Fluxes of Dissolved Nitrous Oxide in the Yangtze River Estuary and Its Adjacent Marine Area in Spring and Summer	WANG Lan, ZHANG Gui-ling, SUN Ming-shuang, <i>et al.</i> (4502)
Spectral Absorption Properties of the Water Constituents in the Estuary of Zhujiang River	WANG Shan-shan, WANG Yong-bo, FU Qing-hua, <i>et al.</i> (4511)
Characteristics of Phosphorus Forms and the Effects of UV Light in the Confluences Water of Qujiang-Jialing River and Fujiang-Jialing River	YAN Jin-long, JIANG Tao, WEI Shi-qiang, <i>et al.</i> (4522)
Research on the Threshold of Chl-a in Lake Taihu Based on Microcystins	WEI Dai-chun, SU Jing, JI Dan-feng, <i>et al.</i> (4530)
Temporal and Spatial Characteristic of Nitrogen and Phosphorus Output in the Suburb Watershed Around the Baihua Lake	FENG Yuan-song, LIN Tao, YANG Qing-yuan (4537)
Effects of Light Irradiation on Phosphorous Releases from Typical Submerged Soils of Water-Level Fluctuation Zones of Three Gorges Reservoirs Areas	GUO Nian, JIANG Tao, WEI Shi-qiang, <i>et al.</i> (4544)
Analysis on the Removal Efficiency and Mechanisms of Phosphorus by Modified Zeolites Substrates Coated with LDHs Reacted by Different Metal Compounds in Laboratory-Scale Vertical-Flow Constructed Wetlands	ZHANG Xiang-ling, CHEN Jun-jie, GUO Lu, <i>et al.</i> (4553)
Mercury Dynamics of Several Plants Collected from the Water-Level Fluctuation Zone of the Three Gorges Reservoir Area During Flooding and Its Impact on Water Body	ZHANG Xiang, ZHANG Cheng, SUN Rong-guo, <i>et al.</i> (4560)
Effect of Nano-TiO ₂ on the Release and Activation of Mercury in Sediment	ZHANG Jin-yang, LI Chu-xian, WANG Ding-yong, <i>et al.</i> (4567)
Estimation Inventory of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) from Anthropogenic Sources and Its Impacts within the Yanghe Watershed, an Important Water-Source Site of Beijing, China	GAO Jia-jia, LUO Wei, XI Xiao-xia (4573)
Source Identification of Toxic Wastewaters in a Petrochemical Industrial Park	YANG Qian, YU Yin, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i> (4582)
Investigation of Pollution Characteristics of Erythromycin Resistance Genes in a Sewage Treatment Plant and the Relevant Selective Factors	LI Kan-zhu, WU Li-le, HUANG Sheng-lin, <i>et al.</i> (4589)
Variation of Pollutants Along the Height of Two Media BAF During Advanced Treatment of Dyeing Wastewater	LIU Jun-feng, FAN Ju-hong, LIU Rui, <i>et al.</i> (4596)
Acclimatization and Characteristics of Microbial Community in Sulphate-Dependent Anaerobic Methane Oxidation	XI Jing-ru, LIU Su-qin, LI Lin, <i>et al.</i> (4602)
Capability and Microbial Community Analysis of a Membrane Bioreactor for Acrylic Fiber Wastewater Treatment	WEI Jian, SONG Yong-hui, ZHAO Le (4610)
Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX ABR Process in Tannery Wastewater Treatment	ZENG Guo-qu, JIA Xiao-shan (4618)
Numerical Simulation and Operation Optimization of Biological Filter	ZOU Zong-sen, SHI Han-chang, CHEN Xiang-qiang, <i>et al.</i> (4627)
Effect of Gas-lift Device on the Morphology and Performance of ANAMMOX Sludge	LI Xiang, HUANG Yong, YUAN Yi, <i>et al.</i> (4636)
Water Treatment Residual as a Bioretention Media Amendment for Phosphorus Removal	WANG Jian-jun, LI Tian, ZHANG Ying (4642)
Nutrient Contents and Heavy Metal Pollutions in Composted Sewage Sludge from Different Municipal Wastewater Treatment Plants in Beijing Region	BAI Li-ping, QI Hong-tao, FU Ya-ping, <i>et al.</i> (4648)
Polychlorinated Biphenyls and Their Methylsulfonyl Metabolites in Fish from an Electronic Waste Recycling Site in South China: Tissue Distribution and Human Dietary Exposure	TANG Bin, LUO Xiao-jun, ZENG Yan-hong, <i>et al.</i> (4655)
Residues and Health Risk Assessment of HCHs, DDTs and Heavy Metals in Water and <i>Tilapia</i> s from Fish Ponds of Guangdong	XIE Wen-ping, ZHU Xin-ping, ZHENG Guang-ming, <i>et al.</i> (4663)
Concentration and Distribution Characteristics of Estrogen in Aquatic Organism from Chongming Island	GENG Jing-jing, YE Ai-li, YANG Yi, <i>et al.</i> (4671)
Photocatalytic Degradation of Acetamiprid by TiO ₂ and Xe Lamp: Kinetics and Degradation Intermediates	ZHOU Wen-chang, YANG Hai, HU Zhi-bin, <i>et al.</i> (4678)
Effects of Nitrogen Addition on Available Nitrogen Content and Acidification in Cold-temperate Coniferous Forest Soil in the Growing Season	CHEN Gao-qi, FU Wa-li, LUO Ya-chen, <i>et al.</i> (4686)
Impact of Land Use Type on Stability and Organic Carbon of Soil Aggregates in Jinyun Mountain	LI Jian-lin, JIANG Chang-sheng, HAO Qing-ju (4695)
Investigation and Canonical Correspondence Analysis of Salinity Contents in Secondary Salinization Greenhouse Soils in Shanghai Suburb	TANG Dong, MAO Liang, ZHI Yue-e, <i>et al.</i> (4705)
Spatial Distribution Prediction of Surface Soil Pb in a Battery Contaminated Site	LIU Geng, NIU Jun-jie, ZHANG Chao, <i>et al.</i> (4712)
Immobilization Remediation of Cd and Pb Contaminated Soil: Remediation Potential and Soil Environmental Quality	SUN Yue-bing, WANG Peng-chao, XU Ying-ming, <i>et al.</i> (4720)
Rules and Impact Factors of Greenhouse Gases Emission in the Saline-Alkali Paddy Fields in Different Years	TANG Jie, FANG Tian-ru, HOU Ke-yi, <i>et al.</i> (4727)
Adsorption of Cd(II) Varies with Biochars Derived at Different Pyrolysis Temperatures	WANG Zhen-yu, LIU Guo-cheng, Monica Xing, <i>et al.</i> (4735)
Poisoning Effect of Ca Depositing Over Mn-Ce/TiO ₂ Catalyst for Low-temperature Selective Catalytic Reduction of NO by NH ₃	ZHOU Ai-yi, MAO Hua-feng, SHENG Zhong-yi, <i>et al.</i> (4745)
A Comparative Study on Domestic and Foreign Emission Standards of Air Pollutants for Cement Industry	JIANG Mei, LI Xiao-qian, JI Liang, <i>et al.</i> (4752)
Revision Process and Thinking of Emission Standard of Air Pollutants for Cement Industry	JIANG Mei, LI Xiao-qian, JI Liang, <i>et al.</i> (4759)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2014年12月15日 第35卷 第12期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 12 Dec. 15, 2014

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行