

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第4期

Vol.39 No.4

**2018**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

|                                                           |                                                                           |
|-----------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------|
| 京津冀地区钢铁行业污染物排放清单及对 PM <sub>2.5</sub> 影响 .....             | 段文娇, 郎建全, 程水源, 贾佳, 王晓琦 (1445)                                             |
| 京津冀内陆平原区 PM <sub>2.5</sub> 浓度时空变化定量模拟 .....               | 郝静, 孙成, 郭兴宇, 王卫, 刘方田, 党海燕 (1455)                                          |
| 成都市冬季相对湿度对颗粒物浓度和大气能见度的影响 .....                            | 刘凡, 谭钦文, 江霞, 蒋文举, 宋丹林 (1466)                                              |
| 华山地区 PM <sub>2.5</sub> 中无机离子垂直分布特征 .....                  | 曹聪, 王格慧, 吴灿, 李建军, 刘浪, 李瑾, 余兴 (1473)                                       |
| 烟花爆竹集中燃放的大气细颗粒物 (PM <sub>2.5</sub> ) 成分图谱 .....           | 谢瑞加, 侯红霞, 陈永山 (1484)                                                      |
| 长三角地区中小燃煤锅炉 PM <sub>2.5</sub> 成分谱特征 .....                 | 徐健, 黄成, 李莉, 陈勇航, 楼晟荣, 乔利平, 王鸿宇 (1493)                                     |
| 民用燃煤排放分级颗粒物中重金属排放因子 .....                                 | 严沁, 孔少飞, 刘海彪, 王伟, 吴剑, 郑明明, 郑淑容, 杨国威, 吴方琪 (1502)                           |
| 冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的分布特征及影响因素 .....                           | 张帅, 石金辉, 姚小红, 高会旺 (1512)                                                  |
| 青岛大气降水中微量元素的浓度及溶解度 .....                                  | 李茜, 石金辉, 李鹏志, 姚小红, 高会旺 (1520)                                             |
| 辽东湾大气中多环芳烃的含量组成及气粒分配 .....                                | 张玉凤, 宋永刚, 田金, 赵海勃, 杨爽, 吴金浩 (1527)                                         |
| 典型地区大气新型卤代阻燃剂污染特征、来源分析及人体暴露 .....                         | 李琦路, 杨孔, 李军, 张干 (1537)                                                    |
| 苏州工业园区室内外颗粒物中多溴联苯醚污染特征及人体暴露水平 .....                       | 王俊霞, 顾海东, 张占恩, 钱飞跃 (1544)                                                 |
| 上海市大气污染对感冒疾病相对危险度的影响 .....                                | 杨丝絮, 马玉霞, 周建丁, 周骥 (1552)                                                  |
| 城镇化河流溶解性有机质的荧光特性与水质相关性: 以宁波市北仑区芦江为例 .....                 | 曹昌丽, 梁梦琦, 何桂英, 纵亚男, 唐剑锋 (1560)                                            |
| 艾比湖区域景观格局与河流水质关系探讨 .....                                  | 曹灿, 张飞, 阿依尼格·亚力坤, 朱世丹, 郭苗, 阿丽米热·塔力甫江, Kung Hsiangte (1568)                |
| 三峡澎溪河水华期间水体 CH <sub>4</sub> 浓度及其通量变化特征初探 .....            | 秦宇, 张渝阳, 李哲, 马健荣 (1578)                                                   |
| 漓江段地表水体旱季硝酸盐动态变化特征及其来源 .....                              | 苗迎, 章程, 肖琼, 赵海娟, 李成习 (1589)                                               |
| 柳江流域饮用水源地重金属污染与健康风险评价 .....                               | 张清华, 韦永著, 曹建华, 于爽 (1598)                                                  |
| 黄柏河流域梯级水库沉积物磷形态特征及磷释放通量分析 .....                           | 刘佳, 雷丹, 李琼, 王亮, 张平, 肖尚斌 (1608)                                            |
| 白洋淀典型持久性有机污染物污染特征与风险评估 .....                              | 高秋生, 焦立新, 杨柳, 田自强, 杨苏文, 安月霞, 贾海斌, 崔志丹 (1616)                              |
| 典型有机氯农药在珠三角地区多介质环境中的归趋模拟 .....                            | 高梓闻, 徐月, 亦如瀚 (1628)                                                       |
| 河道水旁路处理中试工艺中 PPCPs 的去除效果及机制 .....                         | 李力, 朱楦, 白瑶, 赵健, 曹之淇, 郭泓利, 李凌云, 左剑思 (1637)                                 |
| 蔡普生在氯消毒过程中的去除、转化与风险评价 .....                               | 樊鑫鑫, 杜尔登, 李佳琦, 赵丽丽, 王聿琳, 彭明国 (1645)                                       |
| 真空紫外/氯处理饮用水典型致嗅物质 .....                                   | 孙昕, 张焱, 史路肖, 陈笑涵, 唐晓 (1654)                                               |
| 热活化过硫酸盐降解三氯生 .....                                        | 蒋梦迪, 张清越, 季跃飞, 陆鸢鹤 (1661)                                                 |
| 水体模拟颗粒物对四环素的吸附特性及基本规律 .....                               | 徐龙凤, 魏群山, 吕强, 唐立朋, 刘亚男, 柳建设 (1668)                                        |
| 海水优化 ANAMMOX 包埋固定化及其处理含海水污水的脱氮性能 .....                    | 单晓静, 于德爽, 李津, 陈光辉, 冯莉, 吕廷廷, 邵青 (1677)                                     |
| 外源甜菜碱投加增强高盐废水厌氧氨氧化脱氮性能 .....                              | 于德爽, 吴国栋, 李津, 周同, 王晓静 (1688)                                              |
| 硝化污泥富集及其强化高氨氮冲击的中试研究 .....                                | 盛晓琳, 崔灿灿, 王家德, 刘锐, 徐峰, 陈吕军 (1697)                                         |
| 分段进水对改良 A <sup>2</sup> /O-BAF 双污泥系统反硝化除磷脱氮的影响 .....       | 南彦斌, 彭永臻, 曾立云, 赵智超, 刘宏, 李慧, 陈永志 (1704)                                    |
| 不同温度下应用比值控制实现连续流好氧颗粒污泥短程硝化 .....                          | 梁东博, 卞伟, 阚睿哲, 王文啸, 赵青, 孙艺齐, 李军 (1713)                                     |
| 智能化曝气控制 A/O 工艺活性污泥特性演化对内源反硝化脱氮的作用机制 .....                 | 徐旻昶, 胡湛波, 张穗生, 李昊航 (1720)                                                 |
| 温度对一体式厌氧流化床膜生物反应器运行效能及微生物群落结构的影响 .....                    | 李玥, 胡奇, 高文 (1731)                                                         |
| 污泥臭原位置量工艺中抗生素的去除 .....                                    | 汪鲁, 黄伟伟, 李彦刚, 强志民 (1739)                                                  |
| 零价铁对污泥厌氧消化过程中四环素抗性基因水平转移的作用影响 .....                       | 杨帆, 徐雯丽, 钱雅洁, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (1748)                                          |
| 环境因子对全自养脱氮颗粒污泥功能菌协同效应的影响 .....                            | 陈希, 钱飞跃, 王建芳, 高军军, 沈耀良, 贾珣 (1756)                                         |
| 后置固相反硝化滤池工艺沿程微生物特性 .....                                  | 张千, 吉芳英, 徐璇 (1763)                                                        |
| 复合菌株 YH01 + YH02 强化 SBR 好氧反硝化脱氮及菌群结构分析 .....              | 陈海升, 曹刚, 张迪, 黄郑郑, 莫测辉 (1773)                                              |
| 氮磷失衡下膨胀污泥性能及膨胀菌群落结构变化 .....                               | 贺雪濛, 丁丽丽, 张璐璐, 顾卓江, 任洪强 (1782)                                            |
| 1 株铜绿假单胞菌对砷的降解特性及代谢途径 .....                               | 李想, 张雪英, 周俊, 宋军, 王建刚, 雍晓雨, 贾红华 (1794)                                     |
| 铜尾矿库坝面土壤微生物群落动态的驱动因子 .....                                | 李磊, 景炬辉, 刘晋仙, 柴宝峰 (1804)                                                  |
| 垦殖对桂林会仙喀斯特湿地土壤养分与微生物活性的影响 .....                           | 黄科朝, 沈育伊, 徐广平, 黄玉清, 张德楠, 孙英杰, 李艳琼, 何文, 周龙武 (1813)                         |
| 黄土丘陵区退耕还林还草对土壤细菌群落结构的影响 .....                             | 陈孟立, 曾全超, 黄懿梅, 倪银霞 (1824)                                                 |
| 河岸带表层土壤的铁氨氧化 (Feammox) 脱氮机制的探究 .....                      | 丁帮琛, 李正魁, 朱鸿杰, 陈湜, 覃云斌, 杨建华, 胡优优 (1833)                                   |
| 藏猪扰动作用下的高寒草甸土壤退化特征及微生物群落结构变化 .....                        | 展鹏飞, 肖德荣, 闫鹏飞, 刘振亚, 马金成, 陈志明, 格茸, 田伟, 王行 (1840)                           |
| 深圳湾典型红树植物根表铁膜及其重金属富集特征 .....                              | 沈小雪, 李瑞利, 柴民伟, 邱国玉 (1851)                                                 |
| 香港周边海域野生鱼体内 DDTs 和 PCBs 的含量分布和食用风险评估 .....                | 苏杨, 鲍恋君, 曾永平 (1861)                                                       |
| 偏远高山湿地土壤中 PAHs 污染特征: 以神农架大九湖为例 .....                      | 胡天鹏, 邢新丽, 柯艳萍, 毛瑶, 黎荧, 郑煌, 喻月, 张家泉, 祁士华 (1872)                            |
| 西南地区典型森林水库土壤和沉积物汞的迁移转化特征 .....                            | 孙涛, 马明, 王永敏, 安思危, 王定勇 (1880)                                              |
| 广西西江流域土壤镉含量特征及风险评估 .....                                  | 宋波, 杨子杰, 张云霞, 王佛鹏, 周浪, 李黎, 钟雪梅 (1888)                                     |
| 长期施肥对旱地红壤及作物中砷累积的影响 .....                                 | 张蓉, 余光辉, 李亚青 (1901)                                                       |
| 三元土壤调理剂对田间水稻镉累积转运的影响 .....                                | 辜娇峰, 周航, 贾润语, 王倩倩, 李虹呈, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (1910)                               |
| 稻田土壤性质与水稻镉含量的定量关系 .....                                   | 王梦梦, 何梦媛, 苏德纯 (1918)                                                      |
| 钙基膨润土辅助对堆肥及土壤 Cu、Zn 形态转化和白菜吸收的影响 .....                    | 赵军超, 王权, 任秀娜, 李荣华, Mukesh Kumar Awasthi, Altaf Hussain Lahori, 张增强 (1926) |
| 外源碳和氮输入对降水变化下土壤呼吸的短期影响 .....                              | 贺云龙, 齐玉春, 彭琴, 董云社, 郭树芳, 闫钟清, 李兆林, 王丽芹 (1934)                              |
| 模拟降水量减少对大豆-冬小麦轮作农田土壤呼吸的影响 .....                           | 王朝辉, 陈书涛, 孙鹭, 胡正华 (1943)                                                  |
| 紫色土丘陵区农田源头沟渠一氧化氮排放的季节差异及影响因素 .....                        | 田琳琳, 任光前, 朱波 (1952)                                                       |
| 季节非对称升温对喀斯特土壤 CO <sub>2</sub> 释放的影响 .....                 | 唐国勇, 张春华, 刘方炎, 李昆, 马艳 (1962)                                              |
| 《环境科学》征订启事 (1472) 《环境科学》征稿简则 (1511) 信息 (1755, 1839, 1925) |                                                                           |

# 民用燃煤排放分级颗粒物中重金属排放因子

严沁<sup>1</sup>, 孔少飞<sup>1,2\*</sup>, 刘海彪<sup>1</sup>, 王伟<sup>1</sup>, 吴剑<sup>2</sup>, 郑明明<sup>2</sup>, 郑淑睿<sup>2</sup>, 杨国威<sup>2</sup>, 吴方琪<sup>2</sup>

(1. 南京信息工程大学, 中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室, 气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 南京 210044; 2. 中国地质大学(武汉), 环境学院大气科学系, 武汉 430074)

**摘要:** 基于室内模拟燃烧和稀释通道采样, 采用 FA-3 型 9 级撞击采样器采集了 3 种蜂窝煤(考虑明烧和闷烧)和 4 种块煤燃烧排放的不同粒径颗粒物, 并分析其中 V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 等 11 种重金属含量, 计算得到分级颗粒中重金属的排放因子。结果如下: ① Zn 和 Pb 是民用煤燃烧排放颗粒物中主要的重金属成分, 4 种块煤燃烧排放 Zn 和 Pb 共占重金属总量的 53.16%~65.76%; 3 种蜂窝煤明烧排放 Zn 和 Pb 所占重金属含量最高可达 96.08% (0.43  $\mu\text{m}$ ); 蜂窝煤闷烧使得 Ni 排放因子大幅度增加, Ni 成为主要成分之一, 共占重金属总量 30.70%~52.36%。因此燃烧方式影响颗粒物中重金属组分含量。② 蜂窝煤明烧与块煤重金属排放因子最高的粒径段都分布在 1.1  $\mu\text{m}$  以下, 而蜂窝煤闷烧排放的重金属则主要分布在 5.8~10  $\mu\text{m}$  粒径段, 因此在低温闷烧燃烧方式下, 重金属多富集于粗颗粒物上, 而在高温明烧状态下重金属多富集于细颗粒物上。③ 根据重金属富集粒径段的不同, 可以将 11 种重金属分为三类, 各自对应的峰值粒径段分别为 5.8~10  $\mu\text{m}$  (As 和 V), 1.1~2.1  $\mu\text{m}$  (Cr、Mn、Cu、Ni 和 Co) 和  $\leq 0.43$   $\mu\text{m}$  (Pb、Sb、Cd 和 Zn), 其中第二类元素均属于第四周期过渡金属元素, 表现出相似的燃烧释放特征。④ 蜂窝煤使用会降低颗粒物的排放, 但添加剂、氧化剂、黏合剂等的使用, 在不同燃烧条件下, 使颗粒物富集不同有毒物质, 因此蜂窝煤可能不利于某些重金属的减排, 蜂窝煤对多污染物的减排效果(尤其重金属)有待系统评估。

**关键词:** 民用煤燃烧; 颗粒物; 重金属; 排放因子; 粒径分布

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)04-1502-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201707063

## Emission Factors of Heavy Metals in Size-resolved Particles Emitted from Residential Coal Combustion

YAN Qin<sup>1</sup>, KONG Shao-fei<sup>1,2\*</sup>, LIU Hai-biao<sup>1</sup>, WANG Wei<sup>1</sup>, WU Jian<sup>2</sup>, ZHENG Ming-ming<sup>2</sup>, ZHENG Shu-rui<sup>2</sup>, YANG Guo-wei<sup>2</sup>, WU Fang-qi<sup>2</sup>

(1. Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China; 2. Department of Atmospheric Sciences, School of Environmental Studies, China University of Geosciences (Wuhan), Wuhan 430074, China)

**Abstract:** Based on a dilution sampling system and domestic burning tests, size-segregated particles emitted from burning of three kinds of honeycomb coals (in view of flaming and smoldering burning conditions) and four kinds of raw coals, were collected by cascade impactors (FA-3). The contents of V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Zn, As, Cd, Sb, and Pb were analyzed to get their emission factors (EFs) in different particle size fractions. Results indicated that: ① Zn and Pb dominated the emitted mass of heavy metals from chunk (53.16%-65.76%) and honeycomb (96.08% in 0.43  $\mu\text{m}$ ) during the flaming combustion condition. However, the emission of Ni was increased from 30.70% to 52.36% in the smoldering condition. Thus, combustion condition may affect the composition of heavy metals in particle matters. ② In the flaming condition, both chunk and honeycomb emission factors of heavy metals were concentrated under 1.1  $\mu\text{m}$ , while the larger sized particles in the range of 5.8-10  $\mu\text{m}$  were distributed. So, heavy metal components may shift to the larger size of the particles at lower combustion temperatures. ③ Fine particle matters (PM) was divided into three categories based on the size distribution of 11 kinds of heavy metal emission factors. The maximum emission values of As and V fell under the PM size category of 5.8-10  $\mu\text{m}$ . The fourth cycle transition metal elements, such as Cr, Mn, Cu, Ni, and Co, fell in the range of 1.1-2.1  $\mu\text{m}$  and these elements represented similar emission characteristic features. Other elements, such as Pb, Sb, Cd, and Zn, were concentrated in sizes less than 0.43  $\mu\text{m}$ . ④ The additive in the honeycomb during the process may import several kinds of heavy metals and may change the combustion temperature, which remodels the mechanism of heavy metal emission. Thus, honeycomb coal may emit different heavy metals under different combustion conditions. The heavy metal emission mechanism during honeycomb coal combustion needs further investigation and the emission reduction effects (especially of heavy metals) needs to be re-estimated.

收稿日期: 2017-07-09; 修订日期: 2017-09-14

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFA0602002); 国家自然科学基金青年科学基金项目(41305119)

作者简介: 严沁(1991~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为源排放清单构建, E-mail: yanqinatos@gmail.com

\* 通信作者, E-mail: kongshaofei@126.com

**Key words:**residential coal burning; particle matters; heavy metal; emission factor; size distribution

煤炭占我国一次能源消费量的 70%<sup>[1]</sup>，其排放污染物是大气污染的重要来源之一。民用煤燃烧条件差、无有效的排放控制措施，单位质量燃料燃烧排放污染物的量远高于工业活动的排放<sup>[2,3]</sup>。民用燃煤的大量消耗，可以直接以一次颗粒物形式排放出大量重金属、一次有机气溶胶、水溶性离子等，对人体健康<sup>[4-6]</sup>、区域环境空气质量<sup>[7]</sup>和海洋生态<sup>[8]</sup>均产生影响。如散煤燃烧对华北灰霾提供了约 70% 一次有机气溶胶<sup>[9]</sup>。在采暖季，燃煤对北京大气细颗粒物的贡献在 27.0% 左右<sup>[7,10]</sup>，对有机气溶胶<sup>[11,12]</sup>和黑碳<sup>[13]</sup>的贡献分别为 20% ~ 30% 和 60%，同时也导致其它组分(如重金属、离子等)的浓度增加<sup>[14]</sup>。Liu 等<sup>[15]</sup>的研究指出削减民用燃料排放，北京、天津和河北地区的 PM<sub>2.5</sub> 浓度将分别下降 40%、43% 和 35%。民用燃煤排放一次颗粒物及其载带化学组分的定量表征成为当前环境空气质量改善的关注焦点<sup>[16]</sup>。

民用燃煤也是大气重金属的重要来源<sup>[17-21]</sup>，且颗粒物粒径越小，重金属含量越高<sup>[19-22]</sup>，对人体健康危害越大。重金属可随 PM<sub>2.5</sub> 进入人体细支气管和肺泡，甚至进入血液循环<sup>[23-25]</sup>。宣威农村肺癌的高发病率与家庭使用烟煤高度相关<sup>[4-6]</sup>。Zn、Cd、Pb 和 As 等重金属可能是导致肺癌高发区 PM<sub>10</sub> 样品具有较强氧化损伤能力<sup>[26]</sup>及生物活性<sup>[27]</sup>的重要因素。铅污染能引起贫血症、神经机能失调和肾损伤；Cd 可在人体内积蓄，能引起泌尿系统的功能变化以及骨骼严重软化；As、Cr、Ni、Pb、Cd 和 Sb 等重金属具有一定的致癌能力<sup>[24,25]</sup>；V 的化合物也属于剧毒物，对眼、皮肤、呼吸道和神经等都具有毒性<sup>[28]</sup>。因而开展民用燃煤燃烧排放分级

颗粒物中重金属组成对人体健康风险防控也具有重要意义。

对于重金属排放清单研究方面，仅有少数研究。田贺忠等<sup>[29]</sup>基于燃料消耗的排放因子法，构建中国燃煤导致的大气砷<sup>[29]</sup>、大气硒<sup>[30]</sup>、大气锑<sup>[31]</sup>以及 2009 年不同贡献源大气镍<sup>[32]</sup>的排放清单。蒋靖坤等<sup>[33]</sup>采用和田贺忠相同的方法，建立了 2000 年中国分省区燃煤汞排放清单。Reff 等<sup>[34]</sup>则通过调研文献以及美国环保署(EPA)官方公布信息，确定了 84 种源排放的 PM<sub>2.5</sub> 中各微量元素的化学组成，构建了美国第一个 PM<sub>2.5</sub> 中各微量元素的国家级排放清单，其中包括了民用燃煤各类重金属的排放清单。由上可见，当前在重金属清单构建过程中，实测排放因子缺乏，仅有刘海彪等<sup>[35]</sup>报道了民用煤排放 PM<sub>2.5</sub> 中重金属的排放因子，但对于分级颗粒物的研究，尚未见任何报道。

本研究基于室内模拟燃烧实验和主流的稀释通道采样方法，首次开展民用燃煤排放分级颗粒物中重金属的排放因子研究，以期为不同粒径颗粒物中重金属排放清单构建及人体健康风险评估和相关大气污染防治政策制定基础数据支撑。

1 材料与方法

1.1 煤样来源和煤质分析

本研究共采用 7 种煤炭，包括 4 种块煤，3 种蜂窝煤，蜂窝煤和块煤分别购于淮北(HB)、贵州贵阳(GZ)、内蒙古呼和浩特(NMG)和新疆乌鲁木齐(XJ)市场。煤质分析见表 1。燃煤炉具采用从当地市场中购买的民用炉具，煤炉规格为外径 30 cm，内径 12 cm，高 43 cm。

表 1 煤质分析数据<sup>1)</sup>/%

Table 1 Coal quality analysis/%

| 煤样     | 水分( <i>M<sub>ad</sub></i> ) | 灰分( <i>A<sub>ad</sub></i> ) | 挥发分( <i>V<sub>ad</sub></i> ) | 固定碳( <i>FC<sub>ad</sub></i> ) | 煤样类型 | 产地  |
|--------|-----------------------------|-----------------------------|------------------------------|-------------------------------|------|-----|
| HB(K)  | 1.68                        | 4.30                        | 8.70                         | 85.32                         | 无烟煤  | 安徽  |
| GZ(K)  | 3.50                        | 3.96                        | 9.73                         | 82.82                         | 无烟煤  | 贵州  |
| NMG(K) | 12.83                       | 3.95                        | 28.54                        | 54.67                         | 烟煤   | 内蒙古 |
| XJ(K)  | 14.09                       | 3.32                        | 47.23                        | 35.37                         | 褐煤   | 新疆  |
| HB(H)  | 2.73                        | 48.27                       | 8.92                         | 40.08                         | —    | 安徽  |
| GZK(H) | 1.09                        | 42.89                       | 10.73                        | 45.29                         | —    | 贵州  |
| NMG(H) | 2.13                        | 59.49                       | 15.41                        | 22.97                         | —    | 内蒙古 |

1) K 表示块煤；H 表示蜂窝煤

1.2 实验仪器与过程

本研究采用芬兰 DEKATI 公司研发的 Fine

Particle Sampler(FPS)稀释系统,对烟气进行采样,稀释通道系统结构见文献[36]。

烟气稀释冷却后,采用 FA-3 型 9 级撞击采样器将烟气中的颗粒物收集到滤膜上. 仪器采样流量为  $28.3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ , 采样粒径分为  $\leq 0.43$ 、 $0.43 \sim 0.65$ 、 $0.65 \sim 1.1$ 、 $1.1 \sim 2.1$ 、 $2.1 \sim 3.3$ 、 $3.3 \sim 4.7$ 、 $4.7 \sim 5.5$ 、 $5.5 \sim 9.0$  和  $9.0 \sim 10.0 \mu\text{m}$  这 9 个粒径段.

块煤实验前先用电炉将块煤引燃,待充分燃烧后,将称量好的  $0.3 \text{ kg}$  块煤放进炉灶中,稀释系统和采样器同时开始工作,直至块煤完全燃烧,停止采样. 蜂窝煤实验采用 3 块蜂窝煤重叠燃烧的方式,先将最底部的一块蜂窝煤引燃,然后再将另两块蜂窝煤放上,并开始采样,等 3 块蜂窝煤燃烧完全后,停止采样. 燃烧实验开始前,需记录燃料燃烧前的质量;燃烧实验开始后,每种燃料分前中后期记录烟囱中烟气流速. 燃料燃烧后排放的烟气通过烟囱排出,在烟囱距火苗高约  $1.5 \text{ m}$  处用采样枪将一定体积的烟气抽进稀释系统. 烟气进入稀释系统后,空压机将干洁空气送入稀释舱与烟气进行混合稀释,稀释倍数为 30 倍. 稀释后的烟气通过硅胶管连接在 FA-3 型 9 级撞击采样器上,将烟气中的颗粒物采集到聚丙烯纤维滤膜上,采样流量为  $28.3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ .

### 1.3 样品保存与分析

#### 1.3.1 样品保存与分析

采样滤膜为直径  $47 \text{ mm}$  的聚丙烯纤维滤膜. 聚丙烯纤维滤膜采样前置于  $60^\circ\text{C}$  的烘箱中烘烤  $2 \text{ h}$ ,然后在  $25^\circ\text{C}$ 、 $40\%$  相对湿度的超净实验室中平衡  $48 \text{ h}$ ,使用精度为  $10^{-6} \text{ g}$  的分析天平称重,恒重前后膜质量差值在  $5 \times 10^{-6} \text{ g}$  以内认为恒重合格,并保存于清洁的膜盒中;采样后的滤膜保存在膜盒中,用盒盖密封,膜盒外用锡箔包裹放入冰箱 ( $-20^\circ\text{C}$ ) 保存. 称重前,将采样膜置于相同的环境中平衡  $48 \text{ h}$ ,然后再称量质量,两次膜质量差值为膜上颗粒物质量.

重金属元素分析采用美国 Agilent 公司的 Agilent 7500a 型电感耦合等离子体质谱仪 (ICP-MS) 完成. 将待测样品放入  $100 \text{ mL}$  带盖的聚四氟乙烯烧杯中,使用移液管,加入  $5 \text{ mL}$  萃取溶液 ( $\text{pH} = 5.6$ ),用塑料滴管加一滴  $\text{HF}$  ( $\text{pH} = 5.3$ ),确认萃取溶液体积足以覆盖全部样品,于  $220^\circ\text{C}$  控温电热板上加热回流  $2.5 \text{ h}$ . 然后取下盖子蒸干,关掉电热板,利用余温,用稀盐酸 ( $\text{pH} = 5.4$ )  $5 \text{ mL}$  浸取,移入  $10 \text{ mL}$  塑料比色管中,以纯水稀释至标线并摇匀,完成样品的前处理. 然后利用雾化器将待分析样品溶液

先经雾化处理后,通过载气,将所形成含待测分析元素的气溶胶输送至等离子炬管中. 样品受热后,经一系列去溶剂、分解、原子化/离子化等反应,待分析元素形成单价正离子,透过真空界面传输进入质谱仪. 再用四极杆质量分析器将各特定质荷比分离,以电子倍增器加以检测,来进行元素的定性及定量测定工作.

#### 1.3.2 质量控制与质量保证

采样后滤膜放入冰箱 ( $-20^\circ\text{C}$ ) 冷冻保存,防止样品损失. ICP-MS 的检出限是在本方法拟定的实验条件下,按实验分析步骤制备 12 份试样空白溶液测定 12 次,以 3 倍标准偏差计算得出的. V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 的检出限分别为  $0.0017$ 、 $0.0168$ 、 $0.0094$ 、 $0.0004$ 、 $0.0091$ 、 $0.0260$ 、 $0.1144$ 、 $0.0143$ 、 $0.0003$ 、 $0.0007$  和  $0.0054 \mu\text{g} \cdot \text{mL}^{-1}$ .

#### 1.4 排放因子计算

排放因子按公式(1)进行计算:

$$EF_{ij} = \frac{v \times m_{ij} \times n}{v_1 \times M_j} \quad (1)$$

式中,  $EF_{ij}$  为第  $j$  种燃料燃烧后  $i$  类污染物的排放因子,  $\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ;  $v$  为烟气流量,  $\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ ;  $v_1$  为采样流量,  $\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ ;  $m_{ij}$  为第  $j$  种燃料燃烧后滤膜中  $i$  类污染物的质量,  $\text{g}$ ;  $n$  稀释倍数;  $M_j$  为第  $j$  种燃料的燃烧量,  $\text{kg}$ .

## 2 结果与讨论

### 2.1 民用燃煤分级颗粒物排放因子

本研究所得颗粒物  $\text{PM}_{0.43}$ 、 $\text{PM}_{2.1}$  和  $\text{PM}_{10}$  及其载带重金属排放因子见表 2~4. 其中 HB 和 GZ 两种无烟煤  $\text{PM}_{10}$  排放因子为  $7.41 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$  和  $8.59 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ , NMG 和 XJ 两种烟煤  $\text{PM}_{10}$  排放因子为  $49.91 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$  和  $30.43 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ . 本研究与 Butcher 等<sup>[37]</sup>的报道相似,含有高挥发分烟煤颗粒物排放因子 ( $10.5 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ) 是低挥发分无烟煤排放因子 ( $0.5 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ) 的 20 倍. 明烧状态下 HB (F)、GZ (F)、NMG (F) 3 种蜂窝煤  $\text{PM}_{2.1}$  排放因子分别为  $5.86$ 、 $4.15$  和  $1.98 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ . 闷烧状态下,3 种蜂窝煤  $\text{PM}_{10}$  排放因子均发生明显变化,HB 和 GZ 均降低至  $1.59 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$  和  $2.67 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ , NMG 却增至  $3.49 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ . 对于不同产地蜂窝煤,不同燃烧条件下,对于颗粒物的减排效果不同.

Chen 等<sup>[38, 39]</sup>基于全流烟气稀释系统测量了挥发分为  $8.09\% \sim 38.42\%$  的 9 种块煤以及不同成熟

表 2 民用煤燃烧排放  $PM_{0.43}$  中重金属的排放因子<sup>1)</sup>/ $mg \cdot kg^{-1}$

Table 2 Emission factors of heavy metals from residential coal in  $PM_{0.43}/mg \cdot kg^{-1}$

| 组分          | HB(F)   | GZ(F)   | NMG(F)  | HB(S)   | GZ(S)   | NMG(S)  | XJ(K)   | NMG(K)  | GZ(K)   | HB(K)   |
|-------------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| V           | 0.079 1 | 0.115 9 | 0.031 5 | 0.046 0 | 0.077 5 | 0.053 7 | 0.209 7 | 0.117 3 | 0.030 4 | 0.035 4 |
| Cr          | 0.044 3 | 0.036 5 | 0.006 2 | 0.025 6 | 0.022 4 | 0.022 9 | 0.179 7 | 0.030 0 | 0.008 5 | 0.015 5 |
| Mn          | 0.021 3 | 0.027 4 | 0.002 9 | 0.015 3 | 0.015 2 | 0.019 7 | 0.087 4 | 0.012 5 | 0.004 2 | 0.011 2 |
| Co          | 0.000 7 | 0.000 5 | 0.000 1 | 0.000 5 | 0.001 0 | 0.000 7 | 0.005 7 | 0.000 4 | 0.000 1 | 0.000 5 |
| Ni          | 0.025 5 | 0.015 6 | 0.001 8 | 0.102 3 | 0.263 6 | 0.441 8 | 0.149 8 | 0.027 5 | 0.011 6 | 0.029 8 |
| Cu          | 0.085 1 | 0.033 9 | 0.008 6 | 0.023 4 | 0.028 8 | 0.027 6 | 0.247 2 | 0.024 7 | 0.010 4 | 0.027 9 |
| Zn          | 6.612 8 | 0.495 0 | 0.259 4 | 0.131 5 | 0.247 6 | 0.173 6 | 3.669 8 | 0.249 6 | 0.109 6 | 0.440 5 |
| As          | 0.127 7 | 0.059 9 | 0.014 5 | 0.024 8 | 0.035 2 | 0.025 2 | 0.119 8 | 0.042 4 | 0.011 0 | 0.014 9 |
| Sb          | 0.051 9 | 0.004 0 | 0.001 2 | 0.001 3 | 0.003 0 | 0.001 4 | 0.010 7 | 0.000 5 | 0.000 5 | 0.001 6 |
| Cd          | 0.031 5 | 0.002 5 | 0.001 3 | 0.005 3 | 0.005 2 | 0.003 1 | 0.013 0 | 0.000 9 | 0.001 0 | 0.001 1 |
| Pb          | 4.110 7 | 0.169 3 | 0.100 3 | 0.043 8 | 0.367 5 | 0.086 8 | 0.624 1 | 0.049 9 | 0.020 7 | 0.117 9 |
| 重金属         | 11.19   | 0.96    | 0.43    | 0.42    | 1.07    | 0.86    | 5.32    | 0.56    | 0.21    | 0.70    |
| $PM_{0.43}$ | 404.3   | 1226.0  | 695.8   | 632.7   | 450.9   | 848.2   | 2 086.1 | 2 153.2 | 969.7   | 175.4   |

1) F 表示蜂窝煤明烧; S 表示蜂窝煤闷烧; K 表示块煤明烧,下同

度煤制成的蜂窝煤  $PM_{10}$  排放因子, 9 种块煤  $PM_{10}$  排放因子为  $0.62 \sim 37.81 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ , 蜂窝煤  $PM_{10}$  排放因子为  $1.32 \sim 19.55 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ , 蜂窝煤能有效减少颗粒物的排放。本研究 2 种烟煤以及蜂窝煤颗粒物排放因子与 Chen 的结果近似, 蜂窝煤颗粒物排放因子小于块煤的排放因子。2 种无烟煤  $PM_{10}$  排放因子相差近十倍。其他一些研究中<sup>[36,40~43]</sup>, 块煤  $PM_{10}$  排放因子变化范围从  $1.04 \sim 12.0 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ , 蜂窝煤  $PM_{10}$  排放因子则是在  $0.06 \sim 5.42 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$  之间变化。与这些研究相比, 本研究结果偏大。上述研究煤炭来源主要是山西、北京、河南、宁夏以及天津等地, 与本研究用煤来源不同, 而且不同地区蜂窝煤制造工艺也不同, 这可能是造成差异的主要原因。

2.2 分级颗粒物中重金属排放因子

本研究测得 V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 等 11 种重金属在粒径  $0.43 \text{ }\mu\text{m}$ 、 $2.1 \text{ }\mu\text{m}$  粒径段排放因子, 见表 2 和表 3。4 种块煤以及 3 种蜂窝煤两种燃烧状态下重金属总排放因子变化范围较大, 对于  $PM_{0.43}$  上无烟煤 GZ(K) 重金属总排放因子最小, 为  $0.21 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ; 蜂窝煤 HB(F) 重金属排放因子最大, 为  $11.19 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ,  $2.1 \text{ }\mu\text{m}$  粒径上重金属排放因子, XJ(K) 总重金属排放因子最高为  $18.87 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ , GZ(K) 排放因子最小为  $0.82 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ,  $10 \text{ }\mu\text{m}$  上重金属排放因子最高是 XJ(K) 为  $32.35 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ , 最小是 GZ(K) 为  $1.46 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

Zn 和 Pb 是民用煤燃烧排放颗粒物中主要的重金属成分, 4 种块煤燃烧排放 Zn 和 Pb 共占重金属总量的  $53.16\% \sim 65.76\%$ ; 3 蜂窝煤明烧排放 Zn

和 Pb 所占重金属含量最高可达  $96.08\%$  ( $0.43 \text{ }\mu\text{m}$ ); 对于蜂窝煤明烧状态下, Pb 和 Zn 是蜂窝煤燃烧排放量最大的两种重金属, HB、GZ 和 NMG 明烧排放重金属质量分数在  $0.43 \text{ }\mu\text{m}$  上分别占  $96.08\%$ 、 $69.19\%$  和  $83.65\%$ ; 在  $2.1 \text{ }\mu\text{m}$  上分别占  $90.33\%$ 、 $69.25\%$  和  $77.91\%$ 。

在闷烧状态下, Zn 和 Pb 的比重下降, 而 Ni 在蜂窝煤闷烧排放重金属中的比重上升, 在  $0.43 \text{ }\mu\text{m}$  上 HB、GZ 和 NMG 蜂窝煤分别由  $0.23\%$ 、 $1.63\%$  和  $0.42\%$  上升至  $24.95\%$ 、 $51.98\%$  和  $24.90\%$ ; 在  $2.1 \text{ }\mu\text{m}$  上由  $1.03\%$ 、 $3.48\%$  和  $1.68\%$  上升至  $30.29\%$ 、 $44.55\%$  和  $35.99\%$ 。因此 Ni 是蜂窝煤闷烧排放颗粒物中主要的重金属成分。

此外位于  $0.43 \text{ }\mu\text{m}$  和  $2.1 \text{ }\mu\text{m}$  重金属排放因子虽略小于  $PM_{10}$  的排放因子, 但  $0.43 \text{ }\mu\text{m}$  和  $2.1 \text{ }\mu\text{m}$  上质量分数较高, 因此细粒径段上重金属更易进入人体器官, 增加健康风险。Oros<sup>[44]</sup> 的研究有类似的结论, 燃煤闷烧时 PAHs 的排放因子高出明烧 PAHs 排放因子 2 个数量级; Roden 等<sup>[45]</sup> 对木柴燃烧进行在线实时的检测, 由于在闷烧无火焰的情况下进行, 挥发分不能有效地消耗, 会由气态向颗粒物进行转化。因此闷烧会增加污染组分的排放, 梁云平<sup>[46]</sup> 对中国北方农村地区进行燃煤在线监测, 发现块煤, 蜂窝煤, 煤饼闷烧时分别是明烧的 17 倍、394 倍和 129 倍。由此蜂窝煤闷烧时, 颗粒物排放因子可能减小, 但可能不利于民用燃煤重金属污染物的排放。可能导致农村冬季夜间闷烧取暖时重金属(如 Ni 等)排放量远高于白天。

蜂窝煤重金属排放因子均高于同产地块煤的排

放因子,蜂窝煤可能减少颗粒物的排放,但对于蜂窝煤重金属排放却远高于块煤,因此在大力推广民用型煤的时候,应该对蜂窝煤等重金属污染物所引起的问题加以考虑.此外,对于0.43 μm上蜂窝煤

和块煤重金属排放因子对比发现,蜂窝煤相较于块煤对于超细颗粒物的减排起到的效果有限,并且由于各地区蜂窝煤工艺不同,可能是导致各蜂窝煤排放因子在各粒径段排放因子差异较大的原因.

表 3 民用煤燃烧排放 PM<sub>2.1</sub> 中重金属的排放因子/mg·kg<sup>-1</sup>

Table 3 Emission factors of heavy metals from residential coal in PM<sub>2.1</sub>/mg·kg<sup>-1</sup>

| 组分                | HB(F)    | GZ(F)   | NMG(F)  | HB(S)   | GZ(S)   | NMG(S)   | XJ(K)    | NMG(K)   | GZ(K)   | HB(K)   |
|-------------------|----------|---------|---------|---------|---------|----------|----------|----------|---------|---------|
| V                 | 0.331 9  | 0.453 3 | 0.123 8 | 0.176 8 | 0.290 8 | 0.207 5  | 0.773 9  | 0.778 9  | 0.124 8 | 0.156 8 |
| Cr                | 0.171 9  | 0.312 6 | 0.032 5 | 0.092 8 | 0.079 1 | 0.204 4  | 2.831 0  | 0.709 0  | 0.033 5 | 0.051 9 |
| Mn                | 0.091 9  | 0.113 3 | 0.014 7 | 0.070 8 | 0.058 3 | 0.063 1  | 0.699 0  | 0.260 6  | 0.014 1 | 0.030 0 |
| Co                | 0.003 6  | 0.004 4 | 0.000 4 | 0.003 4 | 0.002 8 | 0.003 2  | 0.059 3  | 0.023 2  | 0.000 4 | 0.001 0 |
| Ni                | 0.189 8  | 0.181 0 | 0.021 9 | 0.657 4 | 1.310 1 | 1.207 2  | 3.327 8  | 0.956 1  | 0.047 5 | 0.060 3 |
| Cu                | 0.616 2  | 0.289 2 | 0.031 1 | 0.116 9 | 0.076 1 | 0.122 3  | 1.782 5  | 0.551 5  | 0.030 4 | 0.058 6 |
| Zn                | 10.204 3 | 2.526 9 | 0.764 5 | 0.796 1 | 0.758 9 | 0.576 0  | 7.464 4  | 4.655 9  | 0.442 1 | 1.004 1 |
| As                | 0.294 5  | 0.225 3 | 0.054 7 | 0.091 3 | 0.126 2 | 0.097 0  | 0.401 9  | 0.342 0  | 0.046 3 | 0.062 9 |
| Sb                | 0.078 7  | 0.015 0 | 0.003 1 | 0.004 7 | 0.007 2 | 0.006 9  | 0.029 4  | 0.009 4  | 0.001 3 | 0.002 7 |
| Cd                | 0.048 7  | 0.011 9 | 0.003 7 | 0.015 8 | 0.013 0 | 0.007 7  | 0.034 5  | 0.010 8  | 0.004 3 | 0.002 2 |
| Pb                | 6.417 1  | 1.074 6 | 0.248 4 | 0.157 8 | 0.934 7 | 0.218 6  | 1.470 4  | 0.883 7  | 0.073 7 | 0.195 0 |
| 重金属               | 18.44    | 5.21    | 1.30    | 2.18    | 3.66    | 2.71     | 18.87    | 9.18     | 0.82    | 1.62    |
| PM <sub>2.1</sub> | 5 859.6  | 4 153.2 | 1 981.8 | 1 593.2 | 2 671.1 | 3 489.00 | 14 006.7 | 33 515.7 | 4 418.3 | 731.7   |

2.3 粒径分布特征

2.3.1 颗粒物粒径分布

民用燃煤排放颗粒物粒径段分布如图 1 所示,4 种块煤明烧除 HBK 中 PM<sub>2.1</sub> 占 PM<sub>10</sub> 的 9.88%,其余 3 种 PM<sub>2.1</sub> 占总颗粒物 PM<sub>10</sub> 的 46.30%~67.15%,块煤在两种燃烧条件下,颗粒物分布存在差异,HB 和 NMG 蜂窝煤从明烧条件转化到闷烧条件下时,细颗粒物排放分别由 50.01% (HBF)、41.67% (NMG) 减少至 27.30% (HBS) 和 32.31% (NMGS) 而 GZ 却呈现增长趋势,细颗粒物由 36.27% 上升至 61.73%. 由此可以看出不同地区,不同煤质通过不同工艺加工的蜂窝煤,在不同燃烧条件下,颗粒物排放特性存在巨大差异.

本研究块煤燃烧与蜂窝煤明烧排放的颗粒物中 PM<sub>2.1</sub> 占 PM<sub>10</sub> 的质量分数存在差异平均,平均为 42.30%,小于 Shen 等<sup>[40]</sup> 报道的 77%,但细粒子仍然是颗粒物总排放量重要组成部分.

2.3.2 重金属粒径分布

根据表 5,民用煤燃烧排放 PM<sub>10</sub> 中重金属不同粒径段的成分谱,重金属主要富集于细粒径段. 4 种块煤燃烧排放颗粒物的成分谱显示, XJ(K) 燃烧排放的重金属含量最高,占颗粒物 (PM<sub>10</sub>) 含量的 1.28%,位于 5.8~9.0 μm 下粒径段含量最高,所有无烟煤细颗粒物 (PM<sub>2.1</sub>) 中重金属多富集在细颗粒物粒径上, GZK 和 HBK 分别占重金属总含量的 44.34% 和 85.05%; 烟煤中 NMG(K) 燃烧排放的

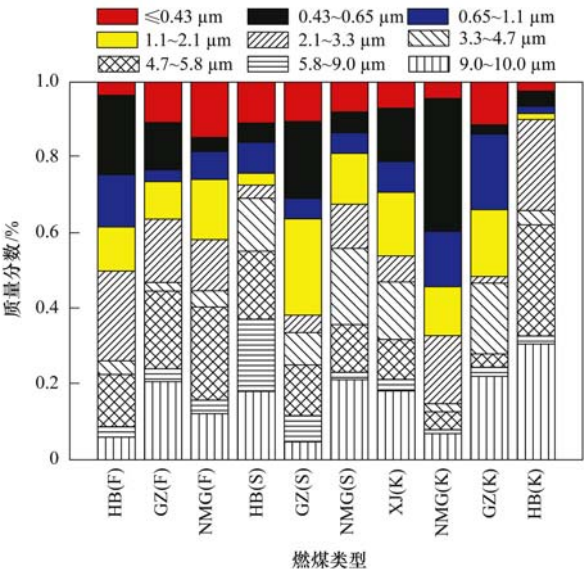


图 1 民用煤燃烧排放 PM<sub>10</sub> 中颗粒物的粒径分布

Fig. 1 Particle matter size distribution of PM<sub>10</sub> from residential coals

重金属含量占颗粒物含量的 0.57%, 3.3~4.7 μm 粒径段含量最多,占颗粒物含量的 0.15%,细颗粒物中重金属含量为 0.15%,占重金属总量的 26.71%; XJ(K) 燃烧排放的颗粒物中重金属含量为 0.64%, 5.8~9.0 μm 粒径段含量最高,为 0.29%,其次为 0.43 μm 以下,为 0.25%,其中细颗粒物中重金属质量分数为 0.64%,占重金属总量的 49.60%; 4 种块煤燃烧排放重金属主要集中在细粒子 (PM<sub>2.1</sub>) 中.

表 4 民用燃煤燃烧排放 PM<sub>10</sub> 中重金属的排放因子/mg·kg<sup>-1</sup>

Table 4 Emission factors of heavy metals from residential coal in PM<sub>10</sub>/mg·kg<sup>-1</sup>

| 组分               | HB(F)        | GZ(F)        | NMG(F)      | XJ(K)     | NMG(K)    | GZ(K)       | HB(K)       | HB(S)       | NMG(S)       | GZ(S)       |
|------------------|--------------|--------------|-------------|-----------|-----------|-------------|-------------|-------------|--------------|-------------|
| V                | 0.665 5      | 1.160 5      | 0.321 4     | 2.084 5   | 2.341 7   | 0.271 0     | 0.364 0     | 0.447 0     | 0.523 1      | 0.670 3     |
| Cr               | 0.409 4      | 0.634 3      | 0.088 2     | 4.835 7   | 1.398 0   | 0.072 5     | 0.100 6     | 0.225 0     | 0.385 0      | 0.250 0     |
| Mn               | 0.259 2      | 0.243 2      | 0.054 8     | 1.203 3   | 0.475 1   | 0.028 9     | 0.049 9     | 0.178 9     | 0.129 4      | 0.167 0     |
| Co               | 0.008 9      | 0.009 7      | 0.004 2     | 0.093 0   | 0.036 8   | 0.001 0     | 0.001 9     | 0.009 2     | 0.008 1      | 0.010 7     |
| Ni               | 0.545 5      | 0.428 8      | 0.063 8     | 5.280 0   | 1.490 6   | 0.086 5     | 0.136 0     | 1.387 8     | 2.539 8      | 5.256 6     |
| Cu               | 0.959 2      | 0.657 8      | 0.098 6     | 2.933 3   | 1.085 7   | 0.080 9     | 0.099 6     | 0.274 6     | 0.356 6      | 0.191 1     |
| Zn               | 12.987 3     | 4.297 0      | 1.556 7     | 12.632 1  | 7.551 8   | 0.711 8     | 1.230 9     | 1.490 0     | 1.159 8      | 1.613 7     |
| As               | 0.465 5      | 0.560 1      | 0.148 1     | 1.008 6   | 1.113 4   | 0.097 4     | 0.145 0     | 0.222 8     | 0.259 6      | 0.329 1     |
| Sb               | 0.091 4      | 0.024 4      | 0.006 2     | 0.045 8   | 0.018 6   | 0.002 2     | 0.003 8     | 0.012 5     | 0.015 5      | 0.015 1     |
| Pb               | 7.083 4      | 1.521 3      | 0.474 3     | 2.231 8   | 1.319 4   | 0.111 5     | 0.229 0     | 0.267 3     | 0.323 5      | 1.533 8     |
| 重金属              | 23.475 3     | 9.537 0      | 2.816 1     | 32.348 3  | 16.831 2  | 1.463 6     | 2.360 8     | 4.515 1     | 5.700 5      | 10.037 4    |
| PM <sub>10</sub> | 11 706.441 7 | 11 450.456 9 | 4 756.114 5 | 30 430.37 | 49 911.27 | 8 593.020 1 | 7 408.076 4 | 5 834.941 1 | 10 798.457 3 | 4 327.087 5 |

HB、GZ 和 NMG 蜂窝煤明烧排放的重金属分别占颗粒物含量的 0.20%、0.08% 和 0.06%，并且在细粒径段 HB(F) 排放重金属含量远高于其他粒径段，最高占颗粒物含量的 0.10%，在细粒子中重金属含量占颗粒物中重金属含量的 78.40%，此外 GZ 和 NMG 蜂窝煤明烧排放的重金属特性与 HB 蜂窝煤明烧类似，细粒径段重金属分别占 54.89%、47.66%。颗粒物富集在 0.65 ~ 1.1、0.43 ~ 0.65 μm 粒径段上，分别占重金属排放量的 43.64% 和 30.71%。对于蜂窝煤闷烧，3 种蜂窝煤闷烧排放的重金属粗粒子粒径段含量有所增加，HB、GZ 和 NMG 闷烧排放的细粒子中重金属含量分别占颗粒物中重金属含量的 59.93%、24.47% 和 53.52%，因此蜂窝煤闷烧过程中重金属排放存在向粗颗粒物转化的趋势。

2.3.3 重金属排放因子粒径分布特征

图 2 给出了块煤燃烧、蜂窝煤明烧以及蜂窝煤闷烧 3 种状态下 V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 等 11 种重金属排放因子粒径分布。

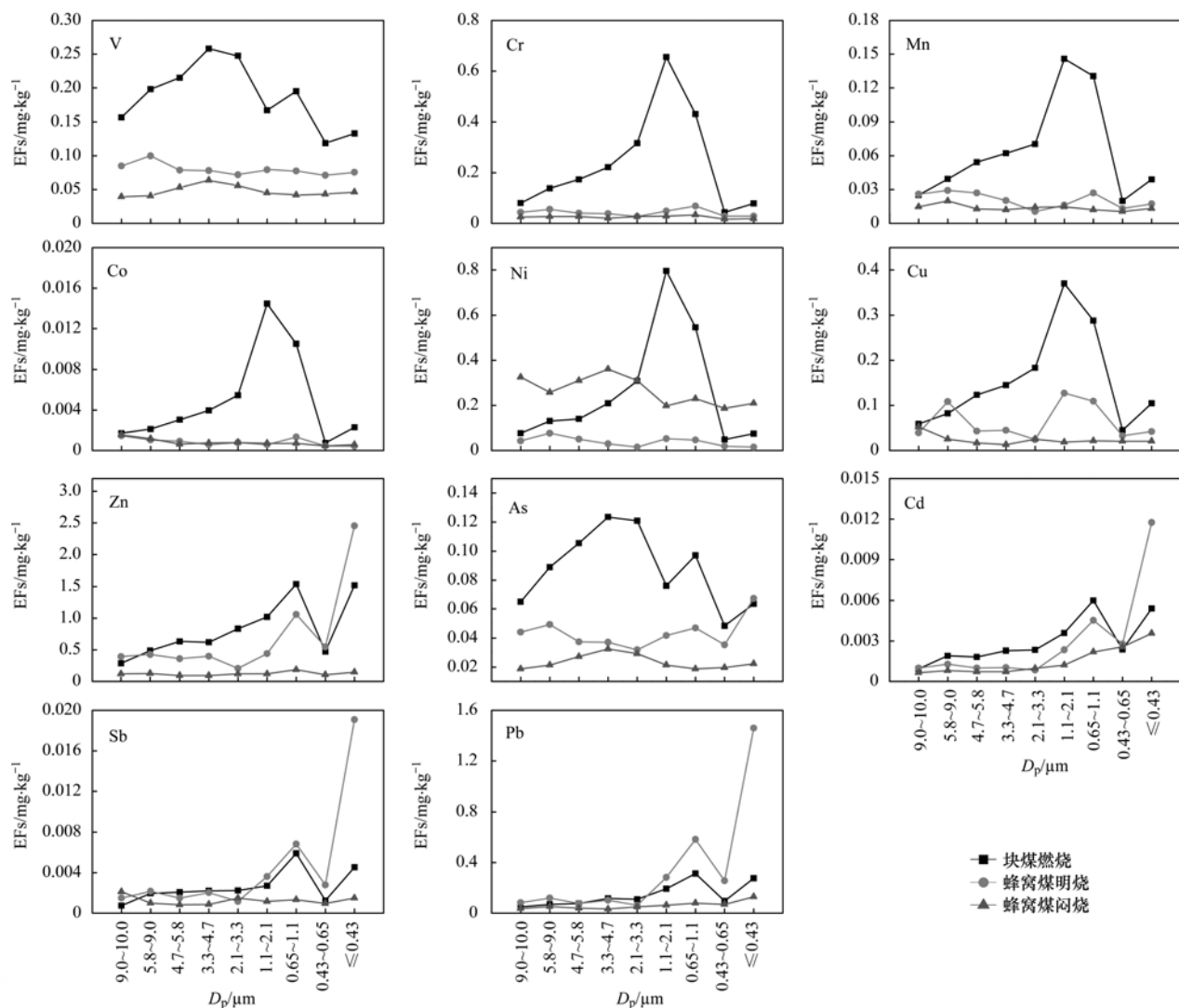
除 NMG 外，蜂窝煤重金属排放因子高于块煤明烧闷烧的排放因子，虽然块煤燃烧排放总排放因子是蜂窝煤明烧的 2 ~ 7 倍，然而对于 Zn、Cd、Sb 和 Pb 排放因子，蜂窝煤明烧远高于块煤，在 ≤0.43 μm 粒径段蜂窝煤明烧排放的 Zn、As 和 Cd 的排放因子是块煤燃烧的 1 ~ 2 倍，Sb 和 Pb 则均是块煤燃烧的 5 倍左右。蜂窝煤明烧与蜂窝煤闷烧相比除 Ni 外，其余重金属排放因子整体上均大于蜂窝煤闷烧，其中 V、Cr、Mn、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 明烧排放因子是闷烧排放因子的 2 ~ 6 倍，Co 明烧排放因子与闷烧排放因子变化不大；Ni 各粒径段闷烧排放因子均大于明烧排放因子，各粒径段排放

因子最大相差 20 倍，最小相差 3 倍，Ni 闷烧总排放因子是明烧总排放因子的近 7 倍。

本研究重金属排放因子粒径分布，块煤燃烧重金属排放因子主要分为 3 类：①Pb、Sb、Cd 和 Zn 为一类，这 4 种重金属在各粒径段上存在相似的分布特性，且在 0.43 μm 以及 0.65 μm 两个粒径段上存在明显峰值。此外蜂窝煤排放出的这 4 种重金属同块煤相似，且在 0.43 μm 处蜂窝煤明烧排放因子最高。②As 和 V 为一类，块煤的 As 和 V 拥有类似的排放因子分布特征，主要分布于 3.3 ~ 4.7 μm 处，且在 0.65 ~ 1.1 μm 处拥有峰值，在 1.1 ~ 2.1 μm 处存在谷值。此外对于蜂窝煤而言，As 和 V 蜂窝煤明烧和闷烧的排放因子分布特征呈负相关，在 9 ~ 10、2.1 ~ 4.7、0.43 μm 以下等粒径段互为峰谷。③Cr、Mn、Cu、Ni、Co 为一类，5 种重金属都属于第四周期过渡金属，块煤中 5 种重金属排放因子分布十分类似，主要富集在 1.1 ~ 2.1 μm 之间，因此可能拥有共同的化合价，导致 5 种重金属排放因子变化趋势类似。

Shen 等<sup>[40]</sup>运用 Andersen 九级采样器和碳平衡法得到了 3 种块煤和两种蜂窝煤燃烧排放颗粒物的粒径分布情况，其中两种块煤燃烧排放的颗粒物主要分布在 0.65 ~ 1.1 μm 粒径段，另外一种块煤和两种蜂窝煤则主要分布在小于 0.65 μm 的粒径段中，本研究除 V 和 Ni，其余重金属分布和 Shen 的研究结果相似，5 种煤燃烧排放的 PM<sub>2.1</sub> 占 PM<sub>10</sub> 的质量分数超过 77%。

通过上述分类可以发现，蜂窝煤对某些物质并未起到减排的作用。各地区蜂窝煤排放差异、蜂窝煤明烧闷烧排放差异以及蜂窝煤、块煤贡献差异可能与不同地区蜂窝煤制作工艺有关。蜂窝煤在制作

图2 民用煤燃烧排放  $PM_{10}$  中重金属粒径分布Fig. 2 Size distribution of heavy metals of  $PM_{10}$  from residential coal combustion

过程中,加入木炭粉、硝酸盐等作为助燃剂;加入拌煤黏土等作为黏合剂;加入固硫剂,如常见的三类固硫添加剂:氧化添加剂( $Fe_2O_3$ 、 $SiO_2$ 、 $V_2O_5$ 、 $Al_2O_3$ 、 $TiO_2$ 、 $ZnO$ 等);碳酸盐固硫添加剂( $K_2CO_3$ 、 $Na_2CO_3$ 、 $SrCO_3$ );氯化物固硫添加剂( $NaCl$ 、 $KCl$ 、 $CaCl_2$ 、 $FeCl_3$ )<sup>[47]</sup>. 这些物质的加入,导致型煤(FC%:20.97%~40.08%)与块煤(FC%:35.37%~85.32%)相比,碳含量明显降低,燃烧火焰温度低,可能不利于其它污染物的减排(如有机物),同时会引入新的污染物(如重金属). Chen等<sup>[41]</sup>的研究表明,相同产地的烟煤以型煤形式燃烧排放污染物和以块煤形式燃烧排放污染物相比, $PM_{2.5}$ 平均排放因子下降了27%,EC平均排放因子降低了59%,但OC的排放因子却增加了44%. 刘海彪<sup>[35]</sup>的研究表明,蜂窝煤燃烧排放 $PM_{2.5}$ 中,Pb、Zn、As

和Cu的排放因子较高,分别为27.1、16.8、0.99和 $0.97\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,是块煤的56、6、10和2倍. 由此可以初步推断,虽然型煤使用会降低 $PM_{2.5}$ 中EC的排放,但添加剂、氧化剂、黏合剂等的使用,导致型煤与块煤的燃料组成差异,两者燃烧温度发生变化,进而可能导致燃烧过程中不同污染物释放,因此蜂窝煤对多污染物的减排效果(尤其重金属)有待系统评估.

### 3 结论

(1) Zn和Pb是民用煤燃烧排放颗粒物中主要的重金属成分,4种块煤燃烧排放Zn和Pb共占重金属总量的53.16%~65.76%;3种蜂窝煤明烧排放Zn和Pb所占重金属含量最高可达96.08%( $0.43\text{ }\mu\text{m}$ );蜂窝煤闷烧使得Ni排放因子大幅度增

加, Ni 成为主要成分之一, 共占重金属总量 30.70%~52.36%。因此燃烧方式影响颗粒物中重金属组分含量。

(2)除 Ni 元素外, 块煤和蜂窝煤明烧重金属排放因子均高于蜂窝煤闷烧排放因子, 蜂窝煤明烧总排放因子是闷烧的 2~9 倍。蜂窝煤明烧与块煤重金属排放因子最高的粒径段都分布在 1.1  $\mu\text{m}$  以下, 而蜂窝煤闷烧排放的重金属则主要分布在 5.8~10  $\mu\text{m}$  粒径段, 因此在闷烧燃烧方式下, 重金属富集于粗颗粒物上。

(3)根据重金属富集粒径段的不同, 可以将 11 种重金属分为三类, 各自对应的峰值粒径段分别为 5.8~10  $\mu\text{m}$ (As 和 V), 1.1~2.1  $\mu\text{m}$ (Cr、Mn、Cu、Ni 和 Co)和 $\leq 0.43 \mu\text{m}$ (Pb、Sb、Cd 和 Zn), 其中第二类元素均属于第四周期过渡金属元素, 表现出相似的燃烧释放特征。

(4)蜂窝煤使用会降低颗粒物的排放, 但添加剂、氧化剂、黏合剂等的使用, 在较低温度下, 使细粒径段上富集较多的有毒物质, 从而增加 Pb、Sb、V 等重金属在细颗粒物上的富集和排放, 因此蜂窝煤可能不利于某些重金属的减排, 蜂窝煤对多种污染物的减排效果(尤其重金属)有待系统评估。

(5)本研究只讨论了在一定稀释倍数下不同块煤和蜂窝煤的重金属排放因子, 未讨论不同炉型以及不同稀释倍数对排放因子的影响, 未来会对炉型和不同稀释倍数下排放因子进行更加细致地研究。

#### 参考文献:

- [1] 陈颖军, 姜晓华, 支国瑞, 等. 我国民用燃煤的黑碳排放及控制减排[J]. 中国科学 D 辑: 地球科学, 2009, **39**(11): 1554-1559.  
Chen Y J, Jiang X H, Zhi G R, *et al.* Black carbon emissions from residential coal combustion and reduction strategy [J]. Science in China Series D: Earth Sciences, 2009, **39**(11): 1554-1559.
- [2] 于国光, 王铁冠, 吴大鹏. 薪柴燃烧源和燃煤源中多环芳烃的成分谱研究[J]. 生态环境, 2007, **16**(2): 285-289.  
Yu G G, Wang T G, Wu D P. Study on fingerprints of PAHs from the combustion of bavin and coal [J]. Ecology and Environment, 2007, **16**(2): 285-289.
- [3] Junninen H, Mønster J, Rey M, *et al.* Quantifying the impact of residential heating on the urban air quality in a typical European coal combustion region [J]. Environmental Science & Technology, 2009, **43**(20): 7964-7970.
- [4] 周林, 邵龙义, 刘君霞, 等. 宣威肺癌高发区室内 PM<sub>10</sub> 对肺泡上皮细胞凋亡的影响[J]. 中国环境科学, 2010, **30**(7): 1004-1008.  
Zhou L, Shao L Y, Liu J X, *et al.* Affects of indoor PM<sub>10</sub> in Xuanwei on lung cell apoptosis [J]. China Environmental Science, 2010, **30**(7): 1004-1008.
- [5] Tian L W, Lucas D, Fischer S L, *et al.* Particle and gas emissions from a simulated coal-burning household fire pit[J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42**(7): 2503-2508.
- [6] Lan Q, Chapman R S, Schreinemachers D M, *et al.* Household stove improvement and risk of lung cancer in Xuanwei, China [J]. Journal of the National Cancer Institute, 2002, **94**(11): 826-835.
- [7] Tian S L, Pan Y P, Wang Y S. Size-resolved source apportionment of particulate matter in urban Beijing during haze and non-haze episodes[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, **16**(1): 1-19.
- [8] Li W J, Xu L, Liu X H, *et al.* Air pollution-aerosol interactions produce more bioavailable iron for ocean ecosystems[J]. Science Advances, 2017, **3**(3): e1601749.
- [9] Chen S R, Xu L, Zhang Y X, *et al.* Direct observations of organic aerosols in common wintertime hazes in North China: insights into direct emissions from Chinese residential stoves[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, **17**(2): 1259-1270.
- [10] Huang R J, Zhang Y L, Bozzetti C, *et al.* High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China[J]. Nature, 2014, **514**(7521): 218-222.
- [11] Hu W W, Hu M, Yuan B, *et al.* Insights on organic aerosol aging and the influence of coal combustion at a regional receptor site of central eastern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2013, **13**(4): 10809-10858.
- [12] Sun Y L, Du W, Fu P Q, *et al.* Primary and secondary aerosols in Beijing in winter: sources, variations and processes [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, **16**(13): 8309-8329.
- [13] Andersson A, Deng J J, Du K, *et al.* Regionally-varying combustion sources of the january 2013 severe haze events over Eastern China[J]. Environmental Science & Technology, 2015, **49**(4): 2038-2043.
- [14] Yang H N, Chen J, Wen J J, *et al.* Composition and sources of PM<sub>2.5</sub> around the heating periods of 2013 and 2014 in Beijing: Implications for efficient mitigation measures [J]. Atmospheric Environment, 2016, **124**: 378-386.
- [15] Liu J, Mauzerall D L, Chen Q, *et al.* Air pollutant emissions from Chinese households: A major and underappreciated ambient pollution source [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2016, **113**(28): 7756-7761.
- [16] 张高丽. 张高丽在北京市调研大气污染防治工作[EB/OL]. <http://cpc.people.com.cn/n1/2016/0104/c64094-28011127.html>, 2016-01-04.
- [17] 杨婧, 郭晓爽, 滕曼, 等. 我国大气细颗粒物中金属污染特征及来源解析研究进展[J]. 环境化学, 2014, **33**(9): 1514-1521.  
Yang J, Guo X S, Teng M, *et al.* A review of atmospheric fine particulate matter associated trace metal pollutants in China[J]. Environmental Chemistry, 2014, **33**(9): 1514-1521.
- [18] Tian H Z, Wang Y, Xue Z G, *et al.* Trend and characteristics of atmospheric emissions of Hg, As, and Se from coal combustion in China, 1980-2007 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, **10**(23): 11905-11919.
- [19] Rizzio E, Giaveri G, Arginelli D, *et al.* Trace elements total

- content and particle sizes distribution in the air particulate matter of a rural-residential area in north Italy investigated by instrumental neutron activation analysis[J]. *Science of the Total Environment*, 1999, **226**(1): 47-56.
- [20] 方凤满. 中国大气颗粒物中金属元素环境地球化学行为研究[J]. *生态环境学报*, 2010, **19**(4): 979-984.
- Fang F M. Research on environmental geochemistry of metal elements in atmospheric particles in China [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2010, **19**(4): 979-984.
- [21] 林俊, 刘卫, 李燕, 等. 上海市郊区大气细颗粒和超细颗粒物中元素粒径分布研究[J]. *环境科学*, 2009, **30**(4): 982-987.
- Lin J, Liu W, Li Y, *et al.* Elemental size distribution of airborne fine and ultrafine particulate matters in the suburb of Shanghai, China[J]. *Environmental Science*, 2009, **30**(4): 982-987.
- [22] 徐宏辉, 王跃思, 温天雪, 等. 北京市大气气溶胶中金属元素的粒径分布和垂直分布[J]. *环境化学*, 2007, **26**(5): 675-679.
- Xu H H, Wang Y S, Wen T X, *et al.* Size distributions and vertical distributions of metal elements of atmospheric aerosol in Beijing[J]. *Environmental Chemistry*, 2007, **26**(5): 675-679.
- [23] 姚琳, 廖欣峰, 张海洋, 等. 中国大气重金属污染研究进展与趋势[J]. *环境科学与管理*, 2012, **37**(9): 41-44.
- Yao L, Liao X F, Zhang H Y, *et al.* Progress and trend of atmospheric heavy metal pollution in China[J]. *Environmental Science and Management*, 2012, **37**(9): 41-44.
- [24] Hu X, Zhang Y, Ding Z H, *et al.* Bioaccessibility and health risk of arsenic and heavy metals (Cd, Co, Cr, Cu, Ni, Pb, Zn and Mn) in TSP and PM<sub>2.5</sub> in Nanjing, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **57**: 146-152.
- [25] Hu Z J, Shi Y L, Niu H Y, *et al.* Synthetic musk fragrances and heavy metals in snow samples of Beijing urban area, China[J]. *Atmospheric Research*, 2012, **104-105**: 302-305.
- [26] 邵龙义, 杨园园, 吴明远, 等. 宣威肺癌高发村室内PM<sub>10</sub>的氧化性损伤能力及其与微量元素的关系[J]. *环境与健康杂志*, 2008, **25**(12): 1094-1096.
- [27] 周林, 邵龙义, 宋晓焱, 等. 宣威肺癌高发区室内PM<sub>10</sub>的生物活性研究[J]. *毒理学杂志*, 2009, **23**(6): 439-441.
- Zhou L, Shao L Y, Song X Y, *et al.* Investigation of the bioreactivity of indoor PM<sub>10</sub> in Xuanwei, China [J]. *Journal of Toxicology*, 2009, **23**(6): 439-441.
- [28] 岳龙清, 岳子玉, 罗德礼, 等. 钒及其化合物的安全防护及应急处理[A]. 见: 第二届全国危险物质与安全应急技术研讨会论文集[C]. 成都: 中国工程物理研究院材料研究所, 2013. 465-476.
- [29] 田贺忠, 曲益萍. 2005年中国燃煤大气硫排放清单[J]. *环境科学*, 2009, **30**(4): 956-962.
- Tian H Z, Qu Y P. Inventories of atmospheric arsenic emissions from coal combustion in China, 2005 [J]. *Environmental Science*, 2009, **30**(4): 956-962.
- [30] 田贺忠, 曲益萍, 王艳, 等. 2005年度中国燃煤大气硒排放清单[J]. *中国环境科学*, 2009, **29**(10): 1011-1015.
- Tian H Z, Qu Y P, Wang Y, *et al.* Atmospheric selenium emission inventories from coal combustion in China in 2005[J]. *China Environmental Science*, 2009, **29**(10): 1011-1015.
- [31] 田贺忠, 赵丹, 何孟常, 等. 2005年中国燃煤大气锑排放清单[J]. *中国环境科学*, 2010, **30**(11): 1550-1557.
- Tian H Z, Zhao D, He M C, *et al.* Atmospheric antimony emission inventories from coal combustion in China in 2005[J]. *China Environmental Science*, 2010, **30**(11): 1550-1557.
- [32] Tian H Z, Lu L, Cheng K, *et al.* Anthropogenic atmospheric nickel emissions and its distribution characteristics in China[J]. *Science of the Total Environment*, 2012, **417-418**: 148-157.
- [33] 蒋靖坤, 郝吉明, 吴焯, 等. 中国燃煤汞排放清单的初步建立[J]. *环境科学*, 2005, **26**(2): 34-39.
- Jiang J K, Hao J M, Wu Y, *et al.* Development of mercury emission inventory from coal combustion in China [J]. *Environmental Science*, 2005, **26**(2): 34-39.
- [34] Reff A, Bhawe P V, Simon H, *et al.* Emissions inventory of PM<sub>2.5</sub> trace elements across the United States[J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(15): 5790-5796.
- [35] 刘海彪, 孔少飞, 王伟, 等. 中国民用煤燃烧排放细颗粒物中重金属的清单[J]. *环境科学*, 2016, **37**(8): 2823-2835.
- Liu H B, Kong S F, Wang W, *et al.* Emission inventory of heavy metals in fine particles emitted from residential coal burning in china[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(8): 2823-2835.
- [36] 孔少飞, 白志鹏, 陆炳. 民用燃料燃烧排放PM<sub>2.5</sub>和PM<sub>10</sub>中碳组分排放因子对比[J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(11): 2749-2756.
- Kong S F, Bai Z P, Lu B. Comparative analysis on emission factors of carbonaceous components in PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> from domestic fuels combustion[J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(11): 2749-2756.
- [37] Butcher S S, Ellenbecker M J. Particulate emission factors for small wood and coal stoves [J]. *Journal of the Air Pollution Control Association*, 1982, **32**(4): 380-384.
- [38] Chen Y J, Zhi G R, Feng Y L, *et al.* Measurements of emission factors for primary carbonaceous particles from residential raw-coal combustion in China [J]. *Geophysical Research Letters*, 2006, **33**(20): L20815.
- [39] 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.
- [40] Shen G F, Yang Y F, Wang W, *et al.* Emission factors of particulate matter and elemental carbon for crop residues and coals burned in typical household stoves in China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(18): 7157-7162.
- [41] Chen Y J, Tian C G, Feng Y L, *et al.* Measurements of emission factors of PM<sub>2.5</sub>, OC, EC, and BC for household stoves of coal combustion in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **109**: 190-196.
- [42] Zhang Y X, Schauer J J, Zhang Y H, *et al.* Characteristics of particulate carbon emissions from real-world Chinese coal combustion[J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42**(14): 5068-5073.
- [43] Bond T C, Covert D S, Kramlich J C, *et al.* Primary particle emissions from residential coal burning: Optical properties and size distributions [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmosphere*, 2002, **107**(D21): 8347.
- [44] Oros D R, Simoneit B R T. Identification and emission rates of molecular tracers in coal smoke particulate matter [J]. *Fuel*, 2000, **79**(5): 515-536.

- [45] Roden C A, Bond T C, Conway S, *et al.* Emission factors and real-time optical properties of particles emitted from traditional wood burning cookstoves [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(21): 6750-6757.
- [46] 梁云平, 张大伟, 林安国, 等. 北京市民用燃煤烟气中气态污染物排放特征[J]. *环境科学*, 2017, **38**(5): 1775-1782.
- Liang Y P, Zhang D W, Lin A G, *et al.* Emission characteristics of residential coal combustion flue gas in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(5): 1775-1782.
- [47] 张育函, 胡涵庆, 李金娟. 使用固硫添加剂减少煤燃烧 SO<sub>2</sub> 排放的研究[J]. *中原工学院学报*, 2010, **21**(3): 4-7.
- Zhang Y H, Hu H Q, Li J J. Study on using sulfur additives to reduce SO<sub>2</sub> emission from coal combustion [J]. *Journal of Zhongyuan University of Technology*, 2010, **21**(3): 4-7.

## 《环境科学》征稿简则

1. 来稿报道成果要有创新性,论点明确,文字精炼,数据可靠.全文不超过8 000字(含图、表、中英文摘要及参考文献).国家自然科学基金项目、国家科技攻关项目、国际合作项目或其它项目请在来稿中注明(在首页以脚注表示).作者投稿时请先登陆我刊网站([www.hjks.ac.cn](http://www.hjks.ac.cn))进行注册,注册完毕后以作者身份登录,按照页面给出的提示信息投稿即可.

2. 稿件请按 GB 7713-87《科学技术报告、学位论文和学术论文的编写格式》中学术论文的规范撰写.论文各部分的排列顺序为:题目;作者姓名;作者工作单位、地址、邮政编码;中文摘要;关键词;中图分类号;英文题目;作者姓名及单位的英译名;英文摘要;关键词;正文;致谢;参考文献.

3. 论文题目应简练并准确反映论文内容,一般不超过 20 字,少用副标题.

4. 中文摘要不少于 300 字,以第三人称写.摘要内容包括研究工作的目的、方法、结果(包括主要数据)和结论,重点是结果和结论.英文摘要与中文对应,注意人称、时态和语言习惯,以便准确表达内容.

5. 前言包括国内外前人相关工作(引文即可)和本工作的目的、特点和意义等.科普知识不必赘述.

6. 文中图表应力求精简,同一内容不得用图表重复表达,要有中英文对照题目.图应大小一致,曲线粗于图框,图中所有字母、文字字号大小要统一.表用三线表.图表中术语、符号、单位等应与正文一致.

7. 计量单位使用《中华人民共和国法定计量单位》(SI).论文中物理计量单位用字母符号表示,如 mg(毫克),m(米),h(小时)等.科技名词术语用国内通用写法,作者译的新名词术语,文中第一次出现时需注明原文.

8. 文中各级标题采用 1, 1.1, 1.1.1 的形式,左起顶格书写,3 级以下标题可用(1), (2)……表示,后缩 2 格书写.

9. 文中外文字母、符号应标明其大小写,正斜体.生物的拉丁学名为斜体.缩略语首次出现时应给出中文全称,括号内给出英文全称和缩略语.

10. 未公开发表资料不列入参考文献,可在出现页以脚注表示.文献按文中出现的先后次序编排.常见文献书写格式为:

期刊:作者(外文也要姓列名前).论文名[J].期刊名,年,卷(期):起页-止页.

图书:作者.书名[M].出版地:出版社,年.起页-止页.

会议文集:作者.论文名[A].见(In):编者.文集名[C].出版地:出版社(单位),年.起页-止页.

学位论文:作者.论文名[D].保存地:保存单位,年份.

报告:作者.论文名[R].出版地:出版单位,出版年.

专利:专利所有者.专利题名[P].专利国别:专利号,出版日期.

11. 来稿文责自负,切勿一稿多投.编辑对来稿可作文字上和编辑技术上的修改和删节.在 3 个月内未收到本刊选用通知,可来电询问.

12. 投稿请附作者单位详细地址,邮编,电话号码,电子邮箱等.编辑部邮政地址:北京市 2871 信箱;邮编:100085;电话:010-62941102,010-62849343;传真:010-62849343;E-mail:[hjks@rcees.ac.cn](mailto:hjks@rcees.ac.cn);网址:[www.hjks.ac.cn](http://www.hjks.ac.cn)

## CONTENTS

|                                                                                                                                                                                    |                                                                     |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------|
| Air Pollutant Emission Inventory from Iron and Steel Industry in the Beijing-Tianjin-Hebei Region and Its Impact on PM <sub>2.5</sub> .....                                        | DUAN Wen-jiao, LANG Jian-lei, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i> (1445) |
| Simulation of the Spatio-temporally Resolved PM <sub>2.5</sub> Aerosol Mass Concentration over the Inland Plain of the Beijing-Tianjin-Hebei Region .....                          | HAO Jing, SUN Cheng, GUO Xing-yu, <i>et al.</i> (1455)              |
| Effect of Relative Humidity on Particulate Matter Concentration and Visibility During Winter in Chengdu .....                                                                      | LIU Fan, TAN Qin-wen, JIANG Xia, <i>et al.</i> (1466)               |
| Vertical Distributional Characteristics of Inorganic Ions of PM <sub>2.5</sub> at Mt. Huashan, Inland China .....                                                                  | CAO Cong, WANG Ge-hui, WU Can, <i>et al.</i> (1473)                 |
| Analysis of the Composition of Atmospheric Fine Particles (PM <sub>2.5</sub> ) Produced by Burning Fireworks .....                                                                 | XIE Rui-jia, HOU Hong-xia, CHEN Yong-shan (1484)                    |
| Chemical Composition Characteristics of PM <sub>2.5</sub> Emitted by Medium and Small Capacity Coal-fired Boilers in the Yangtze River Delta Region .....                          | XU Jian, HUANG Cheng, LI Li, <i>et al.</i> (1493)                   |
| Emission Factors of Heavy Metals in Size-resolved Particles Emitted from Residential Coal Combustion .....                                                                         | YAN Qin, KONG Shao-fei, LIU Hai-biao, <i>et al.</i> (1502)          |
| Distribution of Oxalate in Atmospheric Aerosols and the Related Influencing Factors in Qingdao, During Winter and Spring .....                                                     | ZHANG Shuai, SHI Jin-hui, YAO Xiao-hong, <i>et al.</i> (1512)       |
| Concentrations and Solubility of Trace Elements in Atmospheric Precipitation in Qingdao .....                                                                                      | LI Qian, SHI Jin-hui, LI Peng-zhi, <i>et al.</i> (1520)             |
| Occurrence and Gas-particle Partitioning of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Air of Liaodong Bay .....                                                                      | ZHANG Yu-feng, SONG Yong-gang, TIAN Jin, <i>et al.</i> (1527)       |
| Analysis of Sources, Pollution Characteristics, and Human Exposure to Atmospheric New Halogenated Flame Retardants in Selected Areas .....                                         | LI Qi-lu, YANG Kong, LI Jun, <i>et al.</i> (1537)                   |
| Contamination Characterization and Human Exposure Levels to Polybrominated Diphenyl Ethers in Indoor and Outdoor Air in Industrial Park of Suzhou City .....                       | WANG Jun-xia, GU Hai-dong, ZHANG Zhan-en, <i>et al.</i> (1544)      |
| Effect of Air Pollution on the Cold Disease in Shanghai .....                                                                                                                      | YANG Si-xu, MA Yu-xia, ZHOU Jian-ding, <i>et al.</i> (1552)         |
| Fluorescent Dissolved Organic Matter and Its Correlation with Water Quality in a Urban River: A Case Study of the Lujiang River in Beilun, Ningbo .....                            | CAO Chang-li, LIANG Meng-qi, HE Gui-ying, <i>et al.</i> (1560)      |
| Relationship Between Landscape Pattern and Water Quality in the Ebinur Lake Region .....                                                                                           | CAO Can, ZHANG Fei, Ayinigeer·Yalikun, <i>et al.</i> (1568)         |
| CH <sub>4</sub> Fluxes During the Algal Bloom in the Pengxi River .....                                                                                                            | QIN Yu, ZHANG Yu-yang, LI Zhe, <i>et al.</i> (1578)                 |
| Dynamic Variations and Sources of Nitrate During Dry Season in the Lijiang River .....                                                                                             | MIAO Ying, ZHANG Cheng, XIAO Qiong, <i>et al.</i> (1589)            |
| Heavy Metal Pollution of the Drinking Water Sources in the Lujiang River Basin, and Related Health Risk Assessments .....                                                          | ZHANG Qing-hua, WEI Yong-zhu, CAO Jian-hua, <i>et al.</i> (1598)    |
| Characteristics of Phosphorus Fractions and Phosphate Diffusion Fluxes of Sediments in Cascade Reservoirs of the Huangbai River .....                                              | LIU Jia, LEI Dan, LI Qiong, <i>et al.</i> (1608)                    |
| Occurrence and Ecological Risk Assessment of Typical Persistent Organic Pollutants in Baiyangdian Lake .....                                                                       | GAO Qiu-sheng, JIAO Li-xin, YANG Liu, <i>et al.</i> (1616)          |
| Simulating the Fate of Typical Organochlorine Pesticides in the Multimedia Environment of the Pearl River Delta .....                                                              | GAO Zi-wen, XU Yue, YI Ru-han (1628)                                |
| Mechanisms and Efficiencies of Removal of PPCPs by Pilot River Water Bypass Treatment Process .....                                                                                | LI Li, ZHU Bing, BAI Yao, <i>et al.</i> (1637)                      |
| Chlorination of Naproxen: Removal, Transformation and Risk Assessment .....                                                                                                        | FAN Xin-xin, DU Er-deng, LI Jia-qi, <i>et al.</i> (1645)            |
| Removing Typical Odorants in Drinking Water by Vacuum Ultraviolet Combined with Chlorine .....                                                                                     | SUN Xin, ZHANG Yi, SHI Lu-xiao, <i>et al.</i> (1654)                |
| Degradation of Triclosan by Heat Activated Persulfate Oxidation .....                                                                                                              | JIANG Meng-di, ZHANG Qing-yue, JI Yue-fei, <i>et al.</i> (1661)     |
| Adsorption of Tetracycline on Simulated Suspended Particles in Water .....                                                                                                         | XU Long-feng, WEI Qun-shan, LÜ Qiang, <i>et al.</i> (1668)          |
| Characteristics and Performance of Embedded ANAMMOX Bacteria in Treating Saline Wastewater .....                                                                                   | SHAN Xiao-jing, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (1677)          |
| Enhanced Nitrogen Removal of ANAMMOX Treating Saline Wastewater With Betaine Addition .....                                                                                        | YU De-shuang, WU Guo-dong, LI Jin, <i>et al.</i> (1688)             |
| Pilot-scale Experiment on Enrichment of Nitrifying Activated Sludge and Its Application in Enhancing a Wastewater Biological Treatment System Against Ammonia Shocking Loads ..... | SHENG Xiao-lin, CUI Can-can, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (1697)      |
| Effect of Step Feed on Denitrifying Phosphorus and Nitrate Removal in a Modification of the Two Sludge A <sup>2</sup> /O-BAF System .....                                          | NAN Yan-bin, PENG Yong-zhen, ZENG Li-yun, <i>et al.</i> (1704)      |
| Achieving Partial Nitrification in a Continuous-flow Aerobic Granular Sludge Reactor at Different Temperatures Through Ratio Control .....                                         | LIANG Dong-bo, BIAN Wei, KAN Rui-zhe, <i>et al.</i> (1713)          |
| Mechanism of Action of Activated Sludge Properties in Nitrogen Removal by Endogenous Denitrification Through an Intelligent Aeration-controlled A/O Process .....                  | XU Min-yang, HU Zhan-bo, ZHANG Sui-sheng, <i>et al.</i> (1720)      |
| Effect of Temperature on the Performance and Microbial Community Structure in an Integrated Anaerobic Fluidized-bed Membrane Bioreactor Treating Benzothiazole Wastewater .....    | LI Yue, HU Qi, GAO Da-wen (1731)                                    |
| Removal of Antibiotics During In-situ Sludge Ozone-reduction Process .....                                                                                                         | WANG Lu, BEN Wei-wei, LI Yan-gang, <i>et al.</i> (1739)             |
| Effect of Zero Valent Iron on the Horizontal Gene Transfer of Tetracycline Resistance Genes During Anaerobic Sludge Digestion Process .....                                        | YANG Fan, XU Wen-li, QIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1748)              |
| Effects of Environmental Factors on the Synergy of Functional Bacteria in Completely Autotrophic Granular Sludge .....                                                             | CHEN Xi, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (1756)         |
| Microbiological Characteristics of a Post Solid-Phase Denitrification Biofilter Process .....                                                                                      | ZHANG Qian, JI Fang-ying, XU Xuan (1763)                            |
| Aerobic Denitrification and Microbial Community Shift in SBR Bioaugmented with Strains YH01 and YH02 .....                                                                         | CHEN Hai-sheng, CAO Gang, ZHANG Di, <i>et al.</i> (1773)            |
| Performance, Sludge Characteristics, and the Microbial Community Dynamics of Bulking Sludge Under Different Nitrogen and Phosphorus Imbalances .....                               | HE Xue-meng, DING Li-li, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (1782)          |
| Degradation Characteristics and Metabolic Pathway of a Pyrene-Degrading <i>Pseudomonas aeruginosa</i> Strain .....                                                                 | LI Xiang, ZHANG Xue-ying, ZHOU Jun, <i>et al.</i> (1794)            |
| Driving Factors of the Dynamics of Microbial Community in a Dam of Copper Mine Tailings .....                                                                                      | LI Cui, JING Ju-hui, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (1804)             |
| Effects of Reclamation on Soil Nutrients and Microbial Activities in the Huixian Karst Wetland in Guilin .....                                                                     | HUANG Ke-chao, SHEN Yu-yi, XU Guang-ping, <i>et al.</i> (1813)      |
| Effects of the Farmland-to-Forest/Grassland Conversion Program on the Soil Bacterial Community in the Loess Hilly Region .....                                                     | CHEN Meng-li, ZENG Quan-chao, HUANG Yi-mei, <i>et al.</i> (1824)    |
| Insight into the Mechanism of Feammox in the Surface Soils of a Riparian Zone .....                                                                                                | DING Bang-jing, LI Zheng-kui, ZHU Hong-jie, <i>et al.</i> (1833)    |
| Soil Degradation-Associated Microbial Community Structure Changes in an Alpine Meadow Under Tibetan Pig Herding .....                                                              | ZHAN Peng-fei, XIAO De-rong, YAN Peng-fei, <i>et al.</i> (1840)     |
| Characteristics of Iron Plaque and Its Heavy Metal Enrichment in Typical Mangrove Plants in Shenzhen Bay, China .....                                                              | SHEN Xiao-xue, LI Rui-li, CHAI Min-wei, <i>et al.</i> (1851)        |
| Spatial Distribution of DDTs and PCBs in Wild Fish from Hong Kong Coastal Areas and Potential Human Health Risk Assessment .....                                                   | SU Yang, BAO Lian-jun, ZENG Eddy Y (1861)                           |
| Pollution Characteristics of PAHs in Soil from a Remote Mountain Wetland-Dajihu Lake, Shengnongjia .....                                                                           | HU Tian-peng, XING Xin-li, KE Yan-ping, <i>et al.</i> (1872)        |
| Migration and Transformation of Mercury in Unsubmerged Soil and Sediment at One Typical Forest Reservoir in Southwest China .....                                                  | SUN Tao, MA Ming, WANG Yong-min, <i>et al.</i> (1880)               |
| Accumulation of Cd and Its Risks in the Soils of the Xijiang River Drainage Basin in Guangxi .....                                                                                 | SONG Bo, YANG Zi-jie, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (1888)           |
| Effects of Long-term Fertilization Regimes on As Accumulation in Upland Red Earth and the Crops Growing on It .....                                                                | ZHANG Rong, YU Guang-hui, LI Ya-qing (1901)                         |
| Effects of a Tribasic Amendment on Cadmium and Arsenic Accumulation and Translocation in Rice in a Field Experiment .....                                                          | GU Jiao-feng, ZHOU Hang, JIA Run-yu, <i>et al.</i> (1910)           |
| Quantitative Relationship Between Paddy Soil Properties and Cadmium Content in Rice Grains .....                                                                                   | WANG Meng-meng, HE Meng-yuan, SU De-chun (1918)                     |
| Effect of Ca-bentonite on Cu and Zn Forms in Compost and Soil, and Their Absorption by Chinese Cabbage .....                                                                       | ZHAO Jun-chao, WANG Quan, REN Xiu-na, <i>et al.</i> (1926)          |
| Effects of Short-term Exogenous Nitrogen and Carbon Input on Soil Respiration Under Changing Precipitation Pattern .....                                                           | HE Yun-long, QI Yu-chun, PENG Qin, <i>et al.</i> (1934)             |
| Effects of Simulated Precipitation Reduction on Soil Respiration in a Soybean-Winter Wheat Rotation Cropland .....                                                                 | WANG Zhao-hui, CHEN Shu-tao, SUN Lu, <i>et al.</i> (1943)           |
| Seasonal Variation in Nitric Oxide Emission from an Agricultural Headwater Ditch in the Hilly Purple Soil Area and the Factors Influencing Emission .....                          | TIAN Lin-lin, REN Guang-qian, ZHU Bo (1952)                         |
| Effects of Seasonal Asymmetric Warming on Soil CO <sub>2</sub> Release in Karst Region .....                                                                                       | TANG Guo-yong, ZHANG Chun-hua, LIU Fang-yan, <i>et al.</i> (1962)   |