

典型污染源大气颗粒物、BC 与 VOCs 的排放特征

关天奕^{1,2}, 李荣斌³, 孙 潇³, 王新锋^{1,2,*}, 汤明珍⁴, 高 健⁴, 刘一平⁵, 司书春⁵

(1. 山东大学 环境研究院 生态环境大数据创新研究中心, 山东 青岛 266237; 2. 山东大学 深圳研究院, 广东 深圳 518047; 3. 济南市生态环境数字化应用中心(济南市生态环境保护网格化监管中心), 山东 济南 250101; 4. 中国环境科学研究院 大气环境研究所, 北京 100012; 5. 山东诺方电子科技有限公司, 山东 济南 250002)

摘要:为理解不同污染源产生的大气颗粒物、黑碳(BC)和挥发性有机物(VOCs)的排放特征,于民用燃煤烟气、餐饮油烟和施工扬尘条件下,对大气颗粒物质量浓度、BC 和 VOCs 浓度以及颗粒物数浓度与质量浓度的粒径分布进行现场测量。结果表明,不同污染源排放的颗粒物、BC、VOCs 浓度、颗粒物粒径分布及相关性差异明显。其中,燃煤烟气和施工扬尘排放的颗粒物质量浓度主要分布在粗粒子中,较小和较大粒径颗粒物的数浓度增加显著;而餐饮油烟排放的颗粒物质量浓度主要分布在微米级粒子中,1 μm 附近的颗粒物的数浓度大幅度增长。另外,燃煤烟气与餐饮烟气中的 BC 和 VOCs 主要来自燃烧与加热过程,与细颗粒物数浓度呈显著的正相关关系,伴随着细颗粒物产生;而施工扬尘中 BC 主要来自施工机械尾气与扬尘,与粗、细颗粒物均有显著的相关性,随着各种颗粒物的排放而排放。上述三类污染源中颗粒物、BC 与 VOCs 的排放特征为大气污染来源识别提供了依据。

关键词:大气颗粒物;黑碳;挥发性有机物;粒径分布;排放特征

中图分类号:X701 **文献标识码:**A

Emission characteristics of particle matter, BC and VOCs from typical air pollution sources

GUAN Tianyi^{1,2}, LI Rongbin³, SUN Xiao³, WANG Xinfeng^{1,2,*}, TANG Mingzhen⁴, GAO Jian⁴, Liu Yiping⁵, SI Shuchun⁵

(1. Big Data Research Center for Ecology and Environment, Environment Research Institute, Shandong University, Qingdao 266237, China; 2. Shenzhen Research Institute, Shandong University, Shenzhen 518047, China; 3. Jinan Municipal Digital Application Center of Ecology and Environment, Jinan 250101, China; 4. Institute of Atmospheric Environment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China; 5. Shandong Nova Electric Technology Co., Ltd., Jinan 250002, China)

Abstract: To understand the emission characteristics of particulate matter (PM), black carbon (BC), and volatile organic compounds (VOCs) from different pollution sources, in-situ measurements of the PM, BC, and VOCs concentrations as well as the size distributions of particle number and mass concentrations were conducted under the conditions of residential coal burning flue gas, cooking smoke, and construction dust. The results showed that there were obvious differences among different pollution sources in the PM, BC, and VOCs concentrations, the distribution of particle number and mass concentrations, and the correlations between different pollutants. For coal burning flue gas and construction dust, the PM mass mainly existed in coarse particles and there was significant increase in the number

收稿日期:2023-03-31 DOI:10.20078/j.eep.20230510
基金项目:山东省自然科学基金(ZR2020YQ30);深圳市科技计划项目(KCXFZ20211020164201002)
作者简介:关天奕(1998—),男,山东济南人,科研助理,研究方向为大气环境。E-mail: 202184900112@sdu.edu.cn
通讯作者:王新锋(1985—),男,河南洛阳人,副教授,研究方向为大气环境化学。E-mail: xinfengwang@sdu.edu.cn

concentrations of both fine and coarse particles. However, in the cooking smoke, the particle mass mainly distributed in micron particles and the number concentrations of particles around one micrometer exhibited a sharp increase. In addition, BC and VOCs in the coal burning flue gas and cooking smoke were mainly produced from burning and heating processes. Their concentrations showed significant positive correlation with number concentrations of fine particles, suggesting they were emitted accompanying by fine particles. Nevertheless, as to construction dust, most BC came from construction machinery exhausts and fugitive dust. The BC concentration was strongly correlated with both fine and coarse particles, implying they were released with various particles. Overall, the emission characteristics of PM, BC, and VOCs from the above three sources provide basis for source identification of air pollution.

Keywords: PM; BC; VOCs; Particle size distribution; Emission characteristics

0 引 言

大气中的可吸入颗粒物根据粒径大小分为 PM_{10} (空气动力学直径小于或等于 $10\ \mu m$)、 $PM_{2.5}$ (小于或等于 $2.5\ \mu m$) 等, 其中 $PM_{2.5}$ 称为细颗粒物, 粒径介于 $2.5\ \mu m$ 和 $10\ \mu m$ 之间的颗粒物 (即 PM_{10} 与 $PM_{2.5}$ 之间的差值) 称为粗颗粒物。大气颗粒物能在大气环境中停留较长时间, 通过散射、吸光等影响大气能见度与太阳辐射平衡^[1], 可参与成云过程、直接或间接影响气候变化^[2]。高浓度的细颗粒物可与臭氧等其他大气污染物形成复合污染^[3], 同时对人体健康尤其是呼吸系统、心脏功能等产生危害^[4], 对人类的生产生活带来不利影响。人类活动如燃煤、烹饪、施工等均会产生大量的大气颗粒物^[5], 其中含有无机盐、有机物、黑碳 (BC) 等多种成分^[6], 另外也排放多种有害的气态污染物。黑碳作为大气颗粒物的重要成分之一, 以单质碳为主, 主要分布在微米级颗粒物 ($PM_{2.5}$) 中。黑碳具有较强的吸光和吸附特性, 有显著的气候效应和健康影响^[7-8]。另外, 挥发性有机物 (VOCs) 是大气细颗粒物与光化学污染的重要前体物, 它们主要包括烷烃、烯烃、炔烃、芳香烃、卤代烃、醛类、酮类、酯类、含氮有机物、含硫有机物等常温下易挥发的有机化合物, 有较强的反应活性, 能够影响区域空气质量与大气氧化性^[9-10]。

不同污染源排放大气污染物的特征差异显著, 明确典型大气污染源的排放特征是准确识别、追溯大气污染来源的前提。以往研究表明, 燃煤源产生的颗粒物主要分布在细颗粒物中, 其粒径中值为 $0.3\ \mu m$, 颗粒物的生成量与煤炭的成熟度有关^[11], 同时煤炭燃烧也会产生大量的 BC 和 VOCs, 且 BC 浓度、VOCs 种类等也与煤炭的种类有关^[12]。餐饮油烟源会产生大量的细颗粒物, 且

烹饪方式对颗粒物生成量有显著影响, 翻炒、碳烤等高温烹调产生的细颗粒物浓度远高于蒸煮等低温烹饪方式^[13], 同时颗粒物浓度与 BC 和 VOCs 浓度呈现较好的正相关关系, BC 的粒径峰值出现在 $0.1\ \mu m$, 其排放的 VOCs 黏性较大^[9,14], 另外不同含水量的食材烹饪产生的烟气中的浓度也有明显差异^[14]。各类扬尘以粗颗粒物为主, 且大多含有一定量的 BC^[15]。由此可见, 不同污染源产生的颗粒物的质量浓度与粒径分布特征、BC 与 VOCs 的浓度特征存在明显区别。

在实际大气环境中, 由于多种污染源排放、大气扩散传输的共同影响, 大气颗粒物、BC、VOCs 的污染特征与来源贡献非常复杂, 受污染源类别^[11,16-18]、气象条件^[19-21]、季节^[22-23]、昼夜变化^[24]等诸多因素有关。以往外场观测与来源解析结果表明, 在北方内陆地区的冬春季燃煤源是 $PM_{2.5}$ 的重要贡献源之一^[25], 此时伴随着较高浓度的 BC 和 VOCs, 而且燃煤源贡献增大通常会造 $PM_{2.5}$ 浓度升高^[26]; 而在城市地区的餐馆附近餐饮源对 $PM_{2.5}$ 贡献较大, 且伴随显著的 VOCs 排放^[27]; 另外扬尘源对 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 均有重要贡献, 且北方春季 BC 浓度受扬尘源的影响有所增加^[25-26]。鉴于大气污染成因复杂, 迫切需要进一步测试、对比不同排放源中典型污染物的排放特征与关联关系, 从而为大气污染溯源分析提供依据。

本研究利用便携式监测设备, 通过对民用燃煤烟气、餐饮油烟和施工扬尘产生的大气颗粒物的粒径谱、BC、VOCs 浓度进行同步测量, 探究了不同污染源中污染物浓度与颗粒物粒径分布的典型特征, 分析了不同污染物之间的相关关系, 并对比了不同排放源排放特征之间的差异。

1 研究方法

1.1 采样点位

民用燃煤烟气和餐饮油烟排放源的采样测量在济南市历下区姚家小区东区东北方向约 300 m 的一家小型餐馆内进行,时间为 2022 年 3 月 14 日 10 至 14 时,周围环境为小型居民生活区和狭窄巷道,机动车与行人活动较少。施工扬尘排放源采样点位于济南市市中区党杨路腊山御园建筑工地,时间为 2022 年 3 月 14 日 14 至 17 时。采样点位置如图 1 所示。

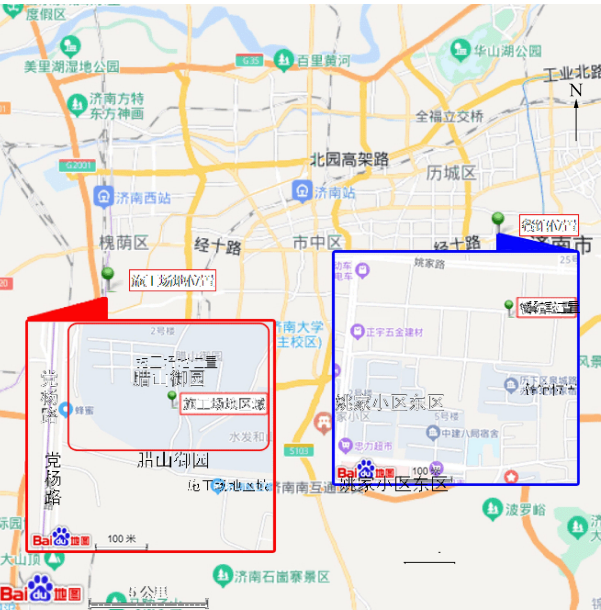


图 1 民用燃煤烟气和餐饮油烟排放源、施工扬尘源采样点位置(框内为局部放大信息,蓝色为燃煤烟气和餐饮油烟排放源采样点,红色为施工扬尘源采样点)

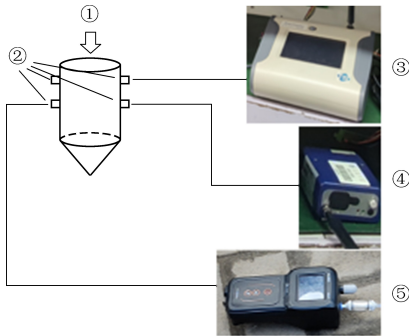
Fig. 1 Sampling locations for residential coal burning flue gas,cooking smoke and construction dust (the box shows the local amplification, with coal burning and cooking sources in blue and construction dust source in red)

1.2 仪器设备

在本研究中,使用 TSI 3330 型光学颗粒物粒径谱仪(美国)、Magee AE51 型手持黑碳仪(美国)和诺方 SDL511 型 VOCs 测量仪(中国),对不同大气污染源排放的污染物进行在线测量。TSI 3330 型光学颗粒物粒径谱仪可测量 0.3~10 μm 内 16 个粒径范围的颗粒物数浓度、质量浓度等,本研究所选粒径范围为 0.3~0.35、0.35~0.41、0.41~0.5、0.5~0.58、0.58~0.68、0.68~0.8、0.8~0.95、0.95~1.3、1.3~1.6、1.6~2.1、2.1~2.5、2.5~3、3~4.1、4.1~5.8、5.8~8 μm 和 8~10 μm,数浓度量程范围为 0~3 000 个/cm³,在 0.5 μm 处的测量误差超

过 5%,PM_{2.5} 和 PM₁₀ 质量浓度分别由直径小于 2.5 μm 和 10 μm 的颗粒物数浓度按照 1 g/cm³ 的密度换算并求和获得。Magee AE51 型手持黑碳仪通过波长为 880 nm 的激光对石英纤维滤条上收集的黑碳颗粒物进行测量,分辨率为 1 ng/m³,黑碳质量浓度的量程范围为 0~1 mg/m³。诺方 SDL511 型 VOCs 监测仪可以实时测量空气中 VOCs 的总浓度(体积分数),分辨率为 1×10⁻⁹,量程范围为 0~40×10⁻⁶。上述测量设备中黑碳仪的时间分辨率为 1 分钟,颗粒物粒径谱仪与 VOCs 监测仪的时间分辨率为 3 s,为便于对比,取 1 min 平均值进行分析。

此外,对于 TSI 3330 型光学颗粒物粒径谱仪,在采样前与附近环境空气质量监测站点的 PM_{2.5}、PM₁₀ 质量数据以及其他颗粒物粒径谱仪(德国 GRIMM 11-D、中国诺方 SDS029)的测量数据进行对比验证,总体上一致性很好,相关系数 $r>0.9(p<0.01)$,但由于仪器构造、校准方法等差异^[28],TSI 3330 型光学颗粒物粒径谱仪在低浓度条件下时出现部分测量值偏低的情况。



注:①总进样口;②出气口;③TSI 3330 型颗粒物粒径谱仪;
④Magee AE51 型黑碳仪;⑤诺方 SDL511 型 VOCs 监测仪

图 2 测量设备与采样管路连接情况

Fig. 2 Measurement instruments and tubing connection

1.3 采样现场

燃煤烟气来自家用直筒型煤炉中燃烧的有烟蜂窝煤,排烟通道长约 2 m,进样口靠近煤炉排烟口。餐饮油烟来自使用燃气灶台的厨房,在关闭抽油烟机的情况下进行采样测量,烹饪方式主要为炒、炸等高温烹调过程,进样口距离锅边约 100 cm。施工扬尘在封闭施工场地内进行,进样口距离挡板约 150 cm。对各种污染源排放的污染物进行测量时,采用相同的进样装置与连接方式,详见图 2。每台测量仪器通过 150 cm 长的导电硅胶管或 Teflon 管与进样装置的出气口连接,多余的出气口连接了其他测量仪器。在采样测量之

前,先检查各仪器设备的运行状态与采样管路的气密性,并测量一段时间的环境空气样品。现场采样测量期间天气晴好,环境温度 19~22 ℃,相对湿度 22%~46%,风速较小。需要说明,在施工扬尘测量实验中,由于仪器设备故障而未对 VOCs 进行监测。

2 结果与讨论

2.1 民用燃煤烟气污染特征

民用燃煤烟气中 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、BC 和 VOCs 浓度的时间变化及颗粒物粒径谱如图 3 所示,其中粒径谱图中的红色虚线代表 2.5 μm 粒径所在位置。燃煤烟气不完全均匀,所排放的污染物浓度有较大波动,燃煤烟气中 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 质量浓度分钟值的范围分别为 49~69 $\mu g/m^3$ 、208~658 $\mu g/m^3$, BC

浓度范围为 10~25 $\mu g/m^3$, VOCs 浓度范围为 $(1\ 332 \sim 4\ 764) \times 10^{-9}$ 。燃煤烟气中的 PM_{10} 质量浓度明显高于 $PM_{2.5}$ 浓度,约为 $PM_{2.5}$ 的 3.4~9.6 倍,说明民用燃煤烟气排放了更多质量的粗颗粒物。

在 PM_{10} 质量浓度峰值 (高强度排放) 条件下,燃煤烟气排放的颗粒物的数浓度随粒径增长呈指数衰减,颗粒物数量主要集中在 1 μm 以下的亚微米粒径范围。然而,与城市背景大气的颗粒物数浓度相比,粒径较小 (0.3~0.68 μm) 与较大 (4.1~10 μm) 的颗粒物的数浓度增加的倍数最多,其中 0.3~0.35 μm 与 8~10 μm 的涨幅分别为 7.4 倍和 12 倍。此时,颗粒物质量浓度则主要分布在粗颗粒物 (3~10 μm), 质量浓度峰值出现在 8~10 μm 粒径段,这进一步说明燃煤烟气直接排放了大量的粗颗粒物。

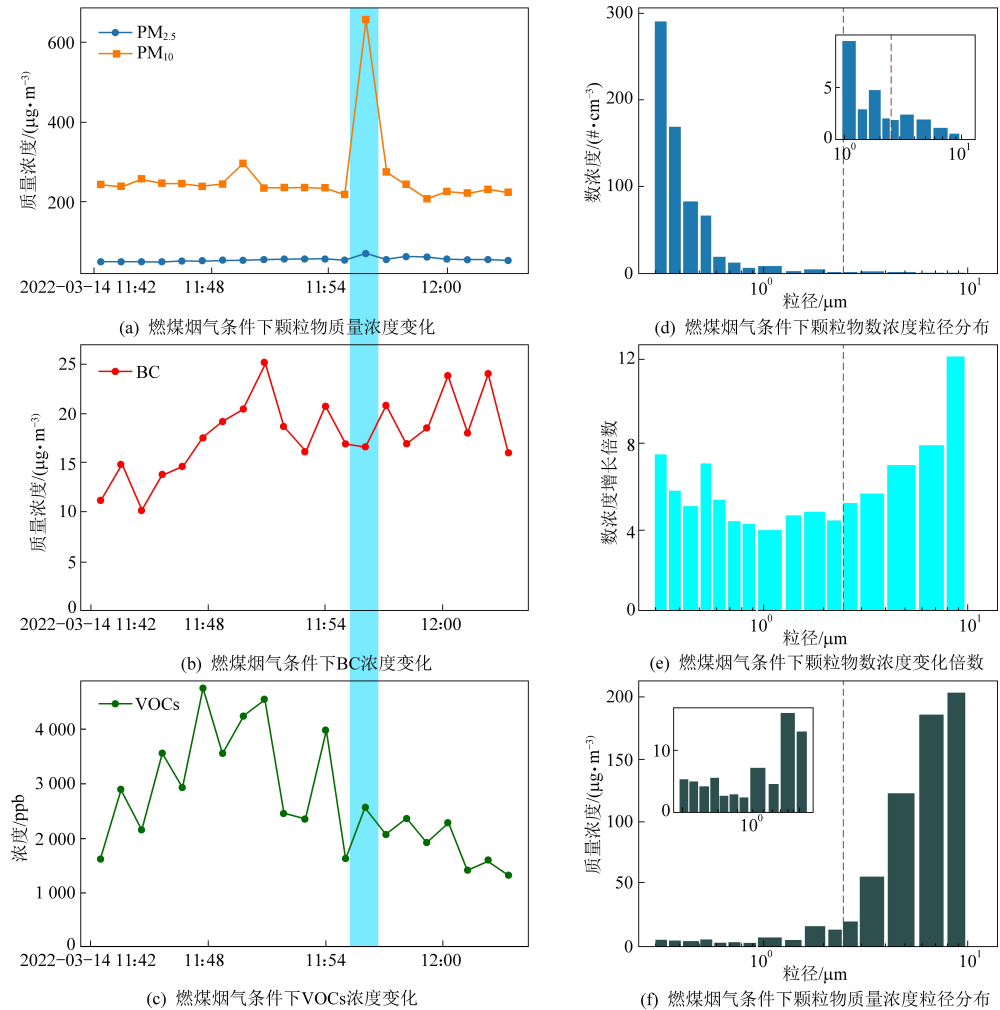


图 3 民用燃煤烟气中 (a) $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、(b) BC、(c) VOCs 浓度随时间变化 (左)

与 PM_{10} 峰值条件下颗粒物各粒径段 (d) 数浓度、(e) 数浓度变化倍数及 (f) 质量浓度分布 (右)

Fig. 3 The concentration time series of (a) $PM_{2.5}$, PM_{10} , (b) BC and (c) VOCs (left) and the size distributions of (d) particle number concentrations, (e) the number concentration change ratios from urban background situation, and (f) mass concentrations under the condition of PM_{10} peak value (right) for the residential coal burning flue gas

本研究中观察到的民用燃煤烟气排放大量粗颗粒物的现象与传统关于工业燃煤源的认识有一定区别,主要是因为工业燃煤安装了高效的除尘设备,去除了绝大部分粗颗粒物和粒径较大的细颗粒物,而民用燃煤无任何除尘措施,煤块以及黏土中的矿物质等成分随着烟气排放到空气中,因此排放了大量的粗颗粒物^[29]。

另外,对比了燃煤烟气中 BC、VOCs 浓度与不同粒径范围颗粒物数浓度之间的线性相关性(皮尔森相关系数),发现 BC 与 0.3~0.95 μm 的颗粒物数浓度有显著相关性,相关系数 r 为 0.54~0.70

($p<0.01$),其中与 0.3~0.35 μm 的颗粒物数浓度的相关性最好。此外,尽管 VOCs 浓度与 BC 浓度相关性较强($r=0.61, p<0.01$),但 VOCs 浓度仅与 0.3~0.35 μm 的颗粒物数浓度有较强的相关性($r=0.57, p<0.01$)。上述结果说明在燃煤烟气中的 BC 主要分布在亚微米颗粒物中,BC 与 VOCs 主要来自煤炭的燃烧过程,伴随小粒径颗粒物产生。

2.2 餐饮油烟特征

餐饮油烟中 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、BC 和 VOCs 浓度的时间变化与颗粒物粒径谱如图 4 所示。

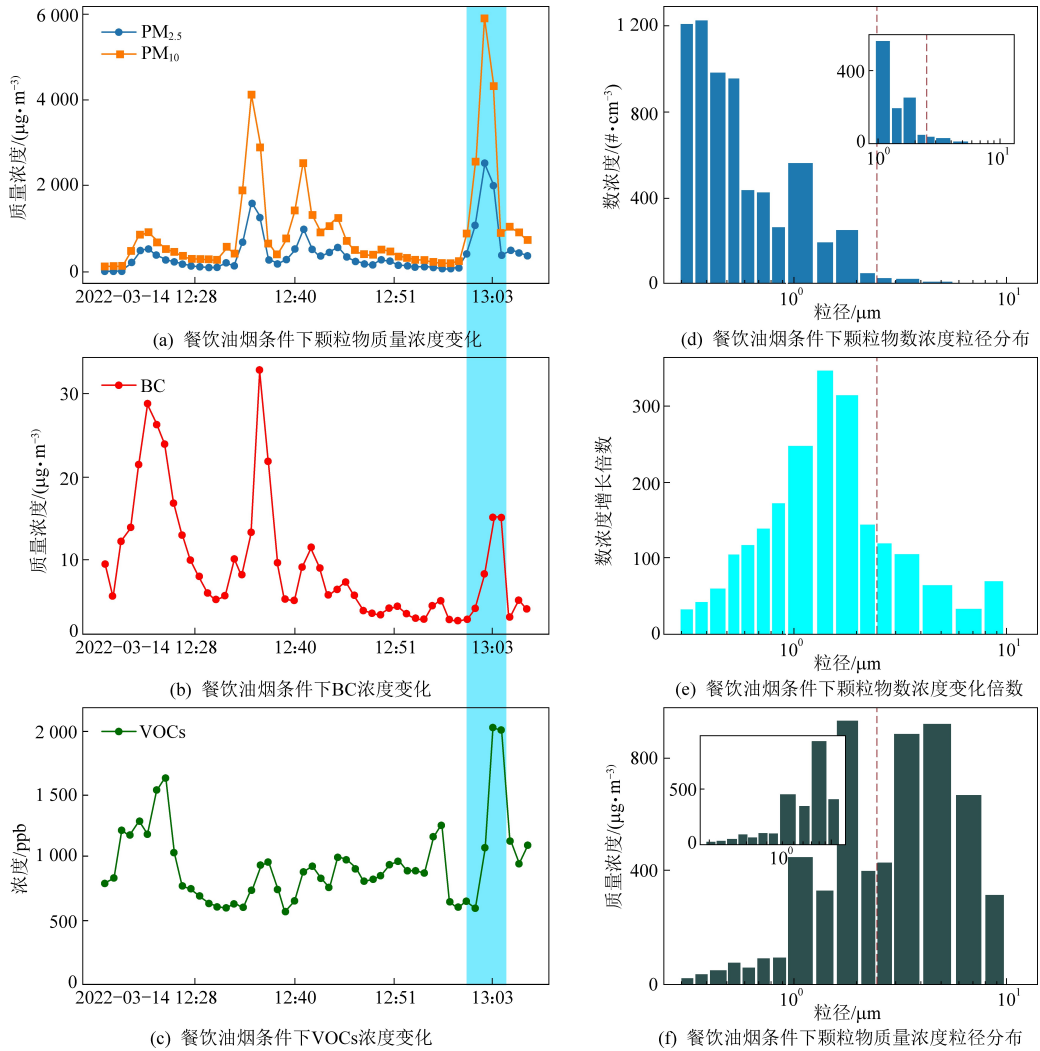


图 4 餐饮油烟中 (a) $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、(b) BC、(c) VOCs 浓度随时间变化(左)与 PM_{10} 峰值条件下颗粒物各粒径段 (d) 数浓度、(e) 数浓度变化倍数及 (f) 质量浓度分布(右)

Fig. 4 The concentration time series of (a) $\text{PM}_{2.5}$, PM_{10} , (b) BC and (c) VOCs (left) and the size distributions of (d) particle number concentrations, (e) the number concentration change ratios from urban background situation, and (f) mass concentrations under the condition of PM_{10} peak value (right) for the cooking smoke

烹饪期间餐饮油烟浓度不均匀,且厨房内空气扩散条件受限,所排放的污染物浓度维持在较高水平且出现了明显波动。餐饮油烟中 $\text{PM}_{2.5}$ 、

PM_{10} 质量浓度范围分别为 37~2 562 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、106~5 899 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, BC 浓度范围为 2.7~33 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, VOCs 浓度范围为 $(575\sim2\,032)\times 10^{-9}$ 。值得注意

的是,餐饮烟气中 PM_{10} 与 $\text{PM}_{2.5}$ 的质量浓度较为接近, PM_{10} 约为 $\text{PM}_{2.5}$ 的 1.6~2.8 倍,说明餐饮油烟中细颗粒物与粗颗粒物质量浓度相当。

在 PM_{10} 质量浓度峰值条件下,餐饮油烟排放的颗粒物数浓度均主要集中在 $2.5\ \mu\text{m}$ 以下的细粒子区域。与城市背景大气的颗粒物数浓度相比, $0.95\sim 2.1\ \mu\text{m}$ 粒径范围的颗粒物数浓度大幅度升高,约是常规状态下的数百倍,说明烹饪过程中产生了非常大量的微米级细颗粒物。此时,颗粒物质量浓度主要分布在微米级粒径范围($0.95\sim 10\ \mu\text{m}$),进一步证实餐饮油烟排放了大量的微米级细颗粒物与粗颗粒物,该特征与燃煤排放源有明显区别。

对比餐饮油烟中 BC、VOCs 浓度与不同粒径

范围的颗粒物数浓度之间的相关性,发现 BC 浓度与 $0.35\sim 0.68\ \mu\text{m}$ 的颗粒物数浓度相关性显著,相关系数 r 为 $0.60\sim 0.65$ ($p<0.01$),与 $0.3\sim 0.35$ 、 $0.68\sim 10\ \mu\text{m}$ 粒径范围的数浓度也有一定的相关性($r>0.4$, $p<0.01$)。以上结果说明餐饮油烟产生的 BC 主要分布在亚微米和微米级颗粒物中,这与燃煤烟气中 BC 的粒径分布特征有一定区别。此外,VOCs 浓度与 $0.5\sim 3\ \mu\text{m}$ 的颗粒物数浓度的相关性也较强($0.52<r<0.65$, $p<0.01$),这与燃气燃烧、食物高温加热过程中产生大量半挥发性芳香类化合物等有关^[30]。

2.3 施工扬尘特征

施工场地 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、BC 浓度的时间变化和颗粒物粒径谱如图 5 所示。

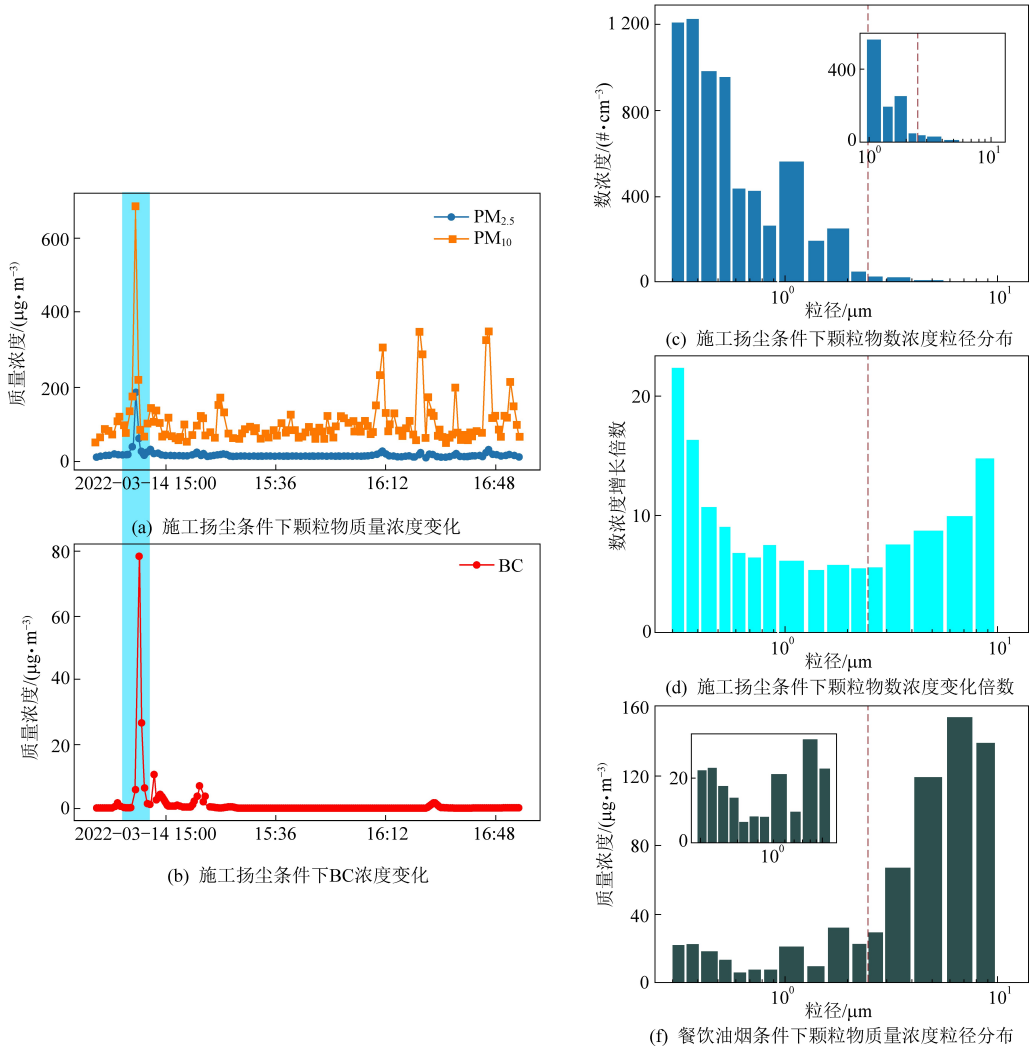


图 5 施工扬尘中 (a) $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、(b) BC 浓度随时间变化(左)与 PM_{10} 峰值条件下颗粒物各粒径段 (c) 数浓度、(d) 数浓度变化倍数及 (e) 质量浓度分布(右)

Fig. 5 The concentration time series of (a) $\text{PM}_{2.5}$, PM_{10} and (b) BC (left) and the size distributions of (c) particle number concentrations, (d) the number concentration change ratios from urban background situation, and (e) mass concentrations under the condition of PM_{10} peak value (right) for construction dust

施工扬尘的产生受施工作业与环境条件如风速、湿度等影响较大,因此大部分时段施工场地的污染物浓度与环境空气较为接近,但偶尔也会出现高值。在受到施工扬尘影响的条件下,PM_{2.5}、PM₁₀、BC 浓度均有显著升高,最高分别达到183 μg/m³、688 μg/m³和 79 μg/m³。施工扬尘中的 PM₁₀浓度显著大于 PM_{2.5}浓度,约为 PM_{2.5}浓度的 3.2~17 倍,说明施工扬尘排放了更多质量的粗颗粒物。

受施工扬尘显著影响条件下,颗粒物数浓度主要分布在亚微米粒径范围。与城市背景大气的颗粒物数浓度相比,受施工扬尘影响时不同粒径范围的颗粒物浓度均有升高,其中较小粒径(0.3~0.5 μm)与较大粒径(4.1~10 μm)的颗粒物数浓度增加幅度最大,约为城市背景大气的 10~20 倍。此时,颗粒物质量浓度主要分布在粗粒子粒径范围(3~10 μm),进一步说明施工扬尘排放了大量的粗颗粒物。

对比施工扬尘中 BC 浓度与不同粒径颗粒物数浓度之间的相关性,发现 BC 浓度与 0.3~10 μm 的颗粒物均有显著的相关性($r>0.46,p<0.01$),特别是与 0.3~2.1 μm 的颗粒物的相关系数 r 高达 0.92~0.99,说明施工过程排放的 BC 更多分布在细颗粒物中,但仍有一部分存在于粗颗粒物中,这与燃煤源、餐饮油烟以及环境空气中 BC 主要分布在细颗粒物中的特征有明显区别^[31-32],这是由于施工扬尘中的 BC 主要来自施工机械尾气与扬尘。

表 1 不同污染源排放的颗粒物、BC、VOCs 浓度与颗粒物粒径分布特征对比

Table 1 Comparisons in the characteristics of PM, BC and VOCs concentrations and the size distributions of particles emitted from different air pollution sources

污染源 类型	PM ₁₀ 浓度 范围 /(μg·m ⁻³)	PM _{2.5} 浓度 范围 /(μg·m ⁻³)	BC 浓度 范围 /(μg·m ⁻³)	VOC 浓度 范围 /(ppb)	PM ₁₀ /PM _{2.5} 比值平均值	数浓度显著 增加的粒 径段/μm	质量浓度 主要分布的 粒径段/μm	与 BC 显著 相关的粒 径段/μm	与 VOCs 显著 相关的粒 径段/μm
民用燃煤	208~658	49~69	10~25	1 332~ 4 764	4.7	0.3~0.68 4.1~10	3~10	0.3~0.95	0.3~0.35
餐饮油烟	106~5 899	37~2562	2.7~33	575~ 2 032	2.2	0.95~2.1	0.95~10	0.35~0.68	0.5~3
施工扬尘	51~688	11~183	0.5~79	/	6.0	0.3~0.5 4.1~10	3~10	0.3~10	/

需要说明,本研究中由于实验条件等限制,相关测量结果存在一定误差,且不同污染源的排放特征的代表性有限。例如,由于扩散等原因导致民用燃煤烟气、餐饮油烟、施工扬尘中的污染浓度不均匀,餐饮油烟个别极端数值超出仪器量程而影响测量结果的准确性,未来需要更多的条件模拟实验与外场观测结果相结合来进一步确认。

需要说明,扬尘中的金属氧化物对可见光也有一定的吸收作用,可能在一定程度上造成黑碳仪测量结果的高估^[33]。

3 对比讨论

综合上述测量结果,民用燃煤烟气、餐饮油烟、施工扬尘中颗粒物、BC、VOCs 浓度以及颗粒物粒径分布特征有明显区别。如表 1 所示,有蜂窝煤燃烧稳定,PM₁₀、BC、VOCs 浓度持续保持在较高水平,PM₁₀与 PM_{2.5}的比值较大,BC 浓度与 0.3~0.95 μm 的颗粒物数浓度的相关性较好,VOCs 浓度仅与 0.3~0.35 μm 的颗粒物数浓度有显著相关性。餐饮油烟受烹饪方式、烹饪材料、人为操作影响很大,PM₁₀、PM_{2.5}浓度极高,BC、VOCs 浓度较高,频繁出现极高值,PM₁₀与 PM_{2.5}的比值小,BC 浓度与 0.35~0.68 μm 的颗粒物数浓度的相关性最好,VOCs 与 0.5~3 μm 的颗粒物数浓度均有显著相关性。而在施工扬尘中,受施工操作与环境条件影响,PM₁₀、PM_{2.5}、BC 浓度相对较低,偶尔出现高值,PM₁₀与 PM_{2.5}的比值很大,BC 与 0.3~10 μm 的颗粒物数浓度的相关性均较强,且与 0.3~2.1 μm 的颗粒物数浓度的相关性极好。

因此,可根据 PM₁₀/PM_{2.5}比值、颗粒物数浓度增加情况、颗粒物质量浓度分布,以及 BC 与 VOCs 同不同粒径范围的颗粒物数浓度之间的相关性,来区分、追踪不同类型的大气污染源。

4 结 论

本研究利用便携式监测设备,对民用燃煤烟气、餐饮油烟和施工扬尘三类污染源排放的颗粒物、BC 与 VOCs 进行同步测量,并对比分析不同污染源排放特征之间的差异,得到以下主要结论:

(1)民用燃煤烟气、餐饮油烟和施工扬尘会排

放大量的颗粒物、BC 与 VOCs,但它们的排放特征差异明显,可通过测量 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、BC 和 VOCs 浓度,结合颗粒物数浓度与质量浓度粒径分布特征、各粒径段颗粒物与 BC 及 VOCs 浓度的相关性,识别此三类大气污染源。

(2)燃煤烟气和施工扬尘排放的颗粒物数浓度在较小($0.3\sim0.5\ \mu m$)和较大($4.1\sim10\ \mu m$)粒径段显著增加,其质量浓度主要分布在粗颗粒物中;而餐饮油烟排放的颗粒物数浓度则在 $0.95\sim2.1\ \mu m$ 粒径段急剧增多,其质量浓度在粗、细颗粒物中相当。民用燃煤烟气排放大量的粗颗粒物,与型煤制作中添加黏土、无除尘设施有关。

(3)燃煤烟气与餐饮烟气中,BC、VOCs 与细颗粒物的数浓度有显著相关性,它们主要来自燃烧加热过程,与细颗粒物同步产生;而在施工扬尘中,BC 与粗、细颗粒物的数浓度均有显著相关性,主要来自施工机械尾气与扬尘,随颗粒物的排放而排放。

参考文献 (References):

[1] ZHAO H, CHE H, ZHANG X, et al. Characteristics of visibility and particulate matter (PM) in an urban area of Northeast China[J]. Atmospheric Pollution Research, 2013, 4(4): 427-434.

[2] FUZZI S, BALTENSPERGER U, CARSLAW K, et al. Particulate matter, air quality and climate: Lessons learned and future needs[J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 2017, 15(14): 8217-8299.

[3] 史政都, 田晋平, 李秉正. 2015~2018 年太原市臭氧污染特征分析[J]. 能源环境保护, 2020, 34(2): 99-104.

SHI Zhengdu, TIAN Jinping, LI Bingzheng. Analysis of ozone pollution characteristics in Taiyuan City from 2015 to 2018[J]. Energy Environmental Protection, 2020, 34(2): 99-104.

[4] ALI M U, SIYI L, YOUSAF B, et al. Emission sources and full spectrum of health impacts of black carbon associated polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in urban environment: A review[J]. Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 2022, 52(3): 857-896.

[5] JAYARATHNE T, STOCKWELL C E, BHAVE P V, et al. Nepal Ambient Monitoring and Source Testing Experiment (NA-MaSTE): Emissions of particulate matter from wood- and dung-fueled cooking fires, garbage and crop residue burning, brick kilns, and other sources [J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 2018, 18: 1-51.

[6] KASKAOUTIS D G, GRIVAS G, STAVROULAS I, et al. Effect of aerosol types from various sources at an urban location on spectral curvature of scattering and absorption coefficients[J]. Atmospheric Research, 2021, 264: 105865.

[7] WANG X, JING H, DHUNGEL B, et al. Characterization of

organic and black carbon aerosol formation during coal combustion: An experimental study in a 1MW pilot scale coal combustor[J]. Fuel, 2016, 180: 653-658.

[8] 陈程, 花艳, 王瑜, 等. 连云港黑碳气溶胶污染特征研究[J]. 环境监控与预警, 2018, 10(2): 45-48.

CHEN Cheng, HUA Yan, WANG Yu, et al. The research on pollution characteristics of black carbon aerosol in Lianyungang [J]. Environmental Monitoring and Forewarning, 2018, 10(2): 45-48.

[9] HAN D, GAO S, FU Q, et al. Do volatile organic compounds (VOCs) emitted from petrochemical industries affect regional $PM_{2.5}$? [J]. Atmospheric Research, 2018, 209: 123-130.

[10] 陆钊江, 吴睿敏, 吴宗坤, 等. 臭氧对厨余垃圾产生的 VOCs 去除效率研究[J]. 能源环境保护, 2018, 32(4): 16-18+15.

LU Yijiang, WU Ruimin, WU Zongkun, et al. Study on the removal efficiency of VOCs produced by kitchen waste by ozone method[J]. Energy Environmental Protection, 2018, 32(4): 16-18+15.

[11] 刘晋宏, 孔少飞, 冯韵恺, 等. 超低排放燃煤电厂一次颗粒物和黑碳实时排放特征[J]. 地球化学, 2021, 1: 56-66.

LIU Jinhong, KONG Shaofei, FENG Yunkai, et al. Real-time emission characteristics of primary particulate matter and black carbon from an ultra-low emission coal-fired power plant[J]. Geochimica, 2021, 1: 56-66.

[12] 韦思业, 宋建中, 彭平安, 等. 来源于生物质和煤燃烧产生的 soot 和 charcoal 的 Py-GC/MS 研究[J]. 地球化学, 2017, 46(3): 240-251.

WEI Siye, SONG Jianzhong, PENG Ping'an. Py-GC/MS study on the characteristics of soot and charcoal derived from biomass materials and coal[J]. Geochimica, 2017, 46(3): 240-251.

[13] 李勤勤, 吴爱华, 龚道程, 等. 餐饮源排放 $PM_{2.5}$ 污染特征研究进展[J]. 环境科学与技术, 2018, 41(8): 41-50.

LI Qinqin, WU Aihua, GONG Daocheng, et al. Characteristics of $PM_{2.5}$ emitted from cooking emissions: A review[J]. Environmental Science & Technology, 2018, 41(8): 41-50.

[14] 吴鑫. 烹饪油烟的排放特征及颗粒物的个体暴露研究[D]. 上海: 华东理工大学, 2015: 22-77.

WU Xin. The research on emission of cooking fume and personal exposure of particles[D]. Shanghai: East China University of Science and Technology, 2015: 22-77.

[15] CAPONI L, FORMENTI P, MASSABO Dario, et al. Spectral- and size-resolved mass absorption efficiency of mineral dust aerosols in the shortwave spectrum: A simulation chamber study[J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 2017, 17(11): 7175-7191.

[16] 陈颖军. 家用蜂窝煤燃烧烟气中碳颗粒物和三环芳烃的排放特征[D]. 广州: 中国科学院研究生院(广州地球化学研究所), 2004: 24-71.

CHEN Yingjun. Emission characteristics of carbonaceous particulate and polycyclic aromatic hydrocarbons from residential

- p>honeycomb-coal-briquette combustion [D]. Guangzhou: Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, 2004:24-71.
- [17] 吕卉焘. 城市道路环境 PM_{2.5}, BC 和 UFP 行人暴露特征及预测研究[D]. 西安:长安大学, 2020: 22-42.
- LYV Huitao. Study on pedestrian exposure characteristics and prediction of PM_{2.5}, BC and UFP in urban road environment [D]. Xi'an: Chang'an University, 2020: 22-42.
- [18] MIGUEL A H, KIRCHSTETTER T W, HARLEY R A. On-road emissions of particulate polycyclic aromatic hydrocarbons and black carbon from gasoline and diesel vehicles[J]. Environmental Science & Technology, 1998, 32(4):450-455.
- [19] 张欢,樊儒,罗相林,等.不同天气状况宝鸡市黑碳气溶胶污染特征分析[J]. 资源节约与环保, 2022(3):61-63+70.
- [20] 王清川,李怀瑞,黄浩杰,等. 廊坊市 O₃ 骤增(降)过程 VOCs 浓度变化及臭氧生成潜势分析[J]. 四川环境, 2022(4): 115-123.
- WANG Qingchuan, LI Huairui, HUANG Haojie, et al. Analysis of VOCs concentration change and ozone formation potential during O₃ sudden increase(drop) process in langfang city[J]. Sichuan Environment, 2022(4): 115-123.
- [21] SUN J, WU F, HU B, et al. VOC characteristics, emissions and contributions to SOA formation during hazy episodes[J]. Atmospheric Environment, 2016, 141: 560-570.
- [22] 黄超. 武汉市区黑碳气溶胶分布规律及潜在源区分析[D]. 武汉:湖北大学, 2018: 26-31.
- HUANG Chao. The distribution law of black carbon aerosol in Wuhan city and analysis of potential source area[D]. Wuhan: Hubei University, 2018: 26-31.
- [23] HUI L, LIU X, TAN Q, et al. VOC characteristics, chemical reactivity and sources in urban Wuhan, central China[J]. Atmospheric Environment, 2020, 224: 117340.
- [24] HSIEH C C, TSAI J H. VOC concentration characteristics in Southern Taiwan[J]. Chemosphere, 2003, 50(4): 545-556.
- [25] 史旭荣,温杰,田瑛泽,等.天津不同气团来向 PM_{2.5} 中组分和污染源贡献的季节变化[J]. 中国环境科学,2018,38(7): 2406-2414.
- SHI Xurong, WEN Jie, TIAN Yingze, et al. Seasonal patterns of PM_{2.5} sources and chemical composition from different air mass directions in Tianjin[J]. China Environmental Science, 2018, 38(7): 2406-2414.
- [26] 徐振麒,尚玥,丁峰,等. 南京亚微米级颗粒物化学组成的季节变化、粒径分布和来源[J]. 环境科学, 2023, 44(3): 1310-1318.
- XU Zhenqi, SHANG Yue, DING Feng, et al. Seasonal variations, size distributions, and sources of chemical components of submicron particulate matter in Nanjing[J]. Environmental Science, 2023, 44(3): 1310-1318.
- [27] 肖玥伶,孙一鸣,罗金,等.餐饮油烟排放对大气污染的影响及管控[J]. 环境科学与技术, 2021,44(S1): 217-222.
- XIAO Yueling, SUN Yiming, LUO Jin, et al. The influence of cooking fume emission on air pollution and its control[J]. Environmental Science & Technology, 2021,44(S1): 217-222.
- [28] VASILATOU K, WLCHLI C, KOUST S, et al. Calibration of optical particle size spectrometers against a primary standard: Counting efficiency profile of the TSI Model 3330 OPS and Grimm 11-D monitor in the particle size range from 300nm to 10 μm [J]. Journal of Aerosol Science, 2021, 157(2021):105818
- [29] 赵金波. 民用煤模拟燃烧与燃煤电厂排放颗粒物的单颗粒特征[D]. 邯郸:河北工程大学,2018: 15-48.
- ZHAO Jinbo. Individual particle characteristics of simulated combustion of civil coal and particles emitted from coal-fired power plants[D]. Handan: Hebei University of Engineering, 2018: 15-48.
- [30] ZHAO Y, ZHAO B. Emissions of air pollutants from Chinese cooking: A literature review[J]. Building Simulation, 2018, 11: 977-995.
- [31] HITZENBERGER R, TOHNO S. Comparison of black carbon (BC) aerosols in two urban areas - concentrations and size distributions[J]. Atmospheric Environment, 2001, 35(12): 2153-2167.
- [32] TUNVED P, CREMER R S, ZIEGER P, et al. Using correlations between observed equivalent black carbon and aerosol size distribution to derive size resolved BC mass concentration: A method applied on long-term observations performed at Zeppelin station, Ny-lesund, Svalbard[J]. Tellus B: Chemical and Physical Meteorology, 2021, 73(1): 1-17.
- [33] 施双双. 长三角典型地区冬季气溶胶来源解析及粒径分布特征[D]. 南京:南京信息工程大学, 2018: 13-40.
- SHI Shuangshuang. Source apportionment and size distribution of aerosol over typical areas of Yangtze River Delta in winter [D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2018: 13-40.