

# 机动车排放颗粒物成分谱对比研究

郝明途<sup>1</sup>, 魏立岩<sup>2</sup>, 李燕<sup>1</sup>, 高健<sup>3</sup>

(1. 深圳市环境监测中心站, 广东 深圳 518049; 2. 衡水学院分院, 河北 衡水 053000;

3. 中国环境科学研究院, 北京 100012)

**摘要:** 对深圳、无锡、济南和美国 EPA 建立的机动车排放颗粒物成分谱进行对比研究, 建立的成分谱中各组分含量存在较大差别因为使用了不同的采样方法。

**关键词:** 颗粒物; 化学质量平衡; 成分谱; 机动车

中图分类号: X513 文献标识码: B 文章编号: 1006-2009(2012)02-0023-04

## Comparative Study on Particulate Matters Chemical Source Profile of Vehicle Exhaust

HAO Ming-tu<sup>1</sup>, WEI Li-yan<sup>2</sup>, LI yan<sup>1</sup>, GAO Jian<sup>3</sup>

(1. Shenzhen Environmental Monitoring Centre, Shenzhen, Guangdong 518049, China; 2. Hengshui University Branch, Hengshui, Hebei 053000, China; 3. Chinese Research Academy of Environmental Science, Beijing 100012, China)

**Abstract:** Vehicle exhaust particulate source profiles were analyzed in that established by Shenzhen, Wuxi, Jinan and US EPA. There was big difference of those source profiles because of sampling methods.

**Key words:** PM; CMB; Source profile; Vehicle

随着经济的高速发展, 我国机动车保有量呈快速增长态势, 近年来年均增长率超过 10%。与此同时, 机动车尾气污染也越来越严重, 目前已成为城市环境空气中的主要污染来源之一<sup>[1]</sup>。尾气中的颗粒物对城市大气中颗粒物的贡献值不容忽视, 乌鲁木齐市机动车排放尾气中的颗粒物占环境空气中 PM<sub>10</sub> 的 (35 ± 20)%<sup>[2]</sup>, 杭州市机动车排放颗粒物占环境空气中 PM<sub>10</sub> 的 16.9%<sup>[3]</sup>, 重庆市机动车排放颗粒物占环境空气中 PM<sub>10</sub> 的 22.7%<sup>[4]</sup>。机动车尾气为 PM<sub>10</sub> 中 PAHs 主要来源之一<sup>[5]</sup>。

定量计算污染源排放颗粒物对环境空气中颗粒物贡献值时采用最多的方法是化学质量平衡法 (CMB)<sup>[6-7]</sup>。该方法首先建立机动车排放颗粒物的成分谱, 建立成分谱的影响因素较多, 如颗粒物样品采集方法、城市机动车结构、燃油水平、城市路况等, 其中颗粒物样品采集方法是建立科学的成分谱最关键的一步。在底盘测功机上进行的与一定工况相结合的全流稀释风道采样法是国际上普遍采用的一种 (排放标准规定的检测方法还有部分

流采样系统) 尾气采样方法<sup>[6]</sup>。所谓全流稀释风道采样法是将机动车尾气全部排气引入稀释风道内, 用新鲜空气进行稀释, 以模拟机动车颗粒物排放的真实情况, 然后对不同粒径的颗粒物进行采集。但由于测定机动车排放颗粒物需要大量的经费和技术支持。因此, 一般采用现场实验法进行采样, 即在较长的公路隧道、大型停车场等机动车尾气排放较为集中的地方布设点位, 采集颗粒物样品, 以此作为机动车排放颗粒物样品。文献 [8-9] 在汽车库、隧道采集机动车排放颗粒物样品; 王玮等<sup>[10]</sup>在潭峪沟隧道和梧桐山隧道采集机动车排放颗粒物样品; John 等<sup>[11]</sup>在公路的交叉口采集机动车尾气尘, 采集条件很严格, 首先必须在夏季采样, 以避开居民燃烧源排放的影响, 其次采样点要设在上风向路缘处, 使其他污染源对样品的影响降到最小, 最后采样时间为上、下午行车高峰期, 各采样 1 h

收稿日期: 2011-09-17; 修订日期: 2012-03-07

作者简介: 郝明途 (1978—) 男, 河北衡水人, 工程师, 硕士, 从事环保考核、大气颗粒物源解析等方面的研究。

~2 h 在中午采集样品代表不同驾驶条件下的尾气尘。

正是因为建立科学的机动车排放颗粒物成分谱的复杂性,很多城市在进行大气颗粒物来源解析时,经常采用其他城市或国外已经建立的机动车排放颗粒物成分谱<sup>[12-13]</sup>。现对国内外基于不同采样方法而建立的成分谱进行了对比分析。

## 1 研究方法

### 1.1 成分谱的选取

根据采样方法的不同,现选取深圳<sup>[14]</sup>、无锡<sup>[9]</sup>、美国 EPA<sup>[15]</sup>、济南<sup>[16]</sup>等建立的机动车排放颗粒物成分谱。深圳的成分谱是基于在交通隧道中采集颗粒物( $PM_{10}$ )样品而建立的成分谱;无锡的成分谱是基于在火车站地下停车场采集颗粒物( $PM_{10}$ )样品而建立的成分谱;美国 EPA 是基于在交通道路的路口采集颗粒物( $PM_{10}$ )样品而建立的成分谱;济南的成分谱是基于自制的机动车尾气采样器采集的颗粒物而建立的成分谱。济南自制的采样器<sup>[16]</sup>是将装有滤膜的装置固定在各类机动车的排气管上,在道路上行驶 30 min ~ 60 min,用滤膜所采集的尘代表机动车排放颗粒物。

### 1.2 重点组分的选取

采用化学质量平衡法进行源解析拟合计算式时,拟合组分的选取非常重要,现选择在拟合计算中各污染源的特征元素(组分)进行了重点对比,主要有 Na、Al、Si、Ca、Fe、 $SO_4^{2-}$ 、TC 等 7 种组分<sup>[12,17-19]</sup>。其中 Na 主要作为海盐粒子的特征元素,Al 作为煤烟尘的特征元素, Si 作为土壤尘或扬尘的特征元素, Ca 作为水泥尘的特征元素, Fe 作为钢铁尘的特征元素,  $SO_4^{2-}$  作为二次粒子的特征元素,而总碳(TC)或有机碳(OC)作为机动车尾气尘的特征元素。

## 2 结果与讨论

### 2.1 组分特征分析

深圳等 4 组成分谱中所有分析组分含量(不含 OC,因为 TC 中已有体现)分别为 94.9%、89.4%、58.9%和 97.7%,济南成分谱的总含量明显偏低,其 TC 含量也是 4 组成分谱中最低的。

深圳成分谱中,Al、Si、K、Ca 等地壳元素<sup>[20-22]</sup>含量达到 12.7%,远高于无锡的 3.9%、济南的 1.2%和美国的 1.9%,这是由于深圳机动车排放颗粒物

样品在隧道中采集,样品在一定程度上受到道路尘、土壤尘等地壳元素含量较高尘源的影响;Fe 含量较其他 3 组成分谱含量高,可能是机动车离合器、刹车等部件磨损的颗粒在隧道地面积聚,然后在外力作用下进入空气而被采集到样品中造成的,美国 EPA 成分谱中 Fe 的含量较高也证明了这一点,而济南成分谱不会受到其他尘源污染,Fe 含量相对较低,见表 1。

表 1 4 组成分谱数据

Table 1 Composition of source profiles

| 元素名称        | 深圳    | 无锡    | 济南    | 美国 EPA <sup>①</sup> |
|-------------|-------|-------|-------|---------------------|
| Na          | 1.709 | 0.490 | 0.495 | 0.296               |
| Mg          | 0.086 | 0.290 | 0.006 | 0.219               |
| Al          | 3.651 | 0.240 | 0.237 | 0.266               |
| Si          | 7.221 | 0.670 | 0.670 | 0.694               |
| K           | 0.949 | 0.240 | 0.285 | 0.231               |
| Ca          | 0.871 | 2.270 | 0.009 | 0.599               |
| Ti          | 0.007 | 0.480 | 0.001 | 0.101               |
| V           | 0.016 |       | 0.226 | 0.033               |
| Cr          | 0.006 | 0.010 | 0.014 | 0.013               |
| Mn          | 0.017 | 0.010 | 0.026 | 0.022               |
| Fe          | 4.258 | 0.480 | 0.243 | 1.184               |
| Co          | 0.005 | 0.020 |       | 0.005               |
| Ni          | 0.005 | 0.030 | 0.012 | 0.008               |
| Cu          | 0.024 | 0.010 | 0.482 | 0.080               |
| Zn          | 0.061 | 0.230 | 2.269 | 0.216               |
| Pb          | 0.000 | 0.010 | 0.000 | 0.033               |
| TC          | 67.41 | 82.14 | 52.14 | 89.870              |
| OC          | 37.05 | 66.90 | 36.86 | 51.68               |
| $SO_4^{2-}$ | 8.570 | 1.830 | 1.829 | 3.872               |

①美国 EPA 机动车排放颗粒物成分谱中 TC 含量暂用 OC 和 EC 之和代替。

深圳成分谱中  $SO_4^{2-}$  含量最高,其次是美国 EPA 成分谱,而无锡和济南的成分谱中  $SO_4^{2-}$  的含量较低,这主要是受采样方法影响造成的。深圳成分谱和美国 EPA 成分谱是在一个开放的环境中采集样品,样品将会受到扬尘、道路尘等尘源的影响,而这类尘源中  $SO_4^{2-}$  的含量通常是比较高的<sup>[9-13]</sup>。

无锡成分谱中的 Ca 含量为 2.3%,明显高于其他 3 组成分谱,这可能是采集样品受地下停车场水泥地面磨损而形成的水泥粉尘的影响。

济南成分谱中 TC 含量最低,仅为 52.1%,Cu、Zn 含量分别为 0.5%和 2.3%,明显高于其他 3 组,这是否与自制采样器有关,还有待研究。

## 2.2 重点组分含量分析

Na、Al、Si、Ca、Fe、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、TC等7种元素经常作为污染源特征元素而被纳入拟合计算。4组成分谱中,这7种组分的总含量存在一定差异,济南成分谱最低,仅为55.6%,明显低于深圳、无锡和美国EPA的93.7%、88.1%和96.8%;深圳成分谱中Na、Al、Si、Fe、 $\text{SO}_4^{2-}$ 等组分含量明显高于其他3组成分谱,其中Al、Si分别是其他3组成分谱的26倍和11倍, $\text{SO}_4^{2-}$ 约是无锡和济南成分谱的4倍;美国EPA成分谱中 $\text{SO}_4^{2-}$ 含量约是无锡和济南的2倍多;济南成分谱中Ca含量明显低于其他3组成分谱,仅为无锡成分谱的1/252、深圳的1/97和美国EPA的1/67;美国EPA成分谱中TC含量最高,达89.9%,而济南成分谱中TC含量最低,仅有52.1%;OC在TC中比重处于55.0%~81.4%之间。

## 2.3 元素相关性分析

由于个别成分谱中无V和Co的含量值,且TC和OC含量较高,故未纳入相关性分析。将4组成分谱做相关性分析,相关性较差,相关系数的范围0.08~0.73之间,见表2。

表2 4组成分谱相关系数明细

Table 2 Details of correlation coefficient of source profiles

| 项目    | 深圳   | 无锡    | 济南   | 美国EPA |
|-------|------|-------|------|-------|
| 深圳    | 1.00 |       |      |       |
| 无锡    | 0.21 | 1.00  |      |       |
| 济南    | 0.09 | -0.08 | 1.00 |       |
| 美国EPA | 0.73 | 0.50  | 0.08 | 1.00  |

深圳成分谱和美国EPA成分谱相关性最好,相关系数达到最大值0.73;无锡和美国EPA的相关性一般,相关系数为0.50;济南成分谱与其他3组成分谱基本没有相关性。各成分谱相关性较差的主要原因可能是采样方法的不同。

## 2.4 数据验证

吴建会等<sup>[13]</sup>在太原市 $\text{PM}_{10}$ 来源解析研究中采用的机动车排放颗粒物成分谱为美国EPA成分谱数据。现根据污染源成分谱中TC和OC的含量及研究结果中各污染源的分担率倒推出环境空气中TC和OC的质量浓度,并分别与采用深圳、无锡和济南的成分谱倒推出TC和OC的质量浓度进行了对比。

根据深圳、无锡和济南成分谱倒推出TC和OC的质量浓度与根据美国EPA成分谱倒推出的结果有较大差距,TC相差幅度在-5.0%~24.1%之间,OC相差幅度在-13.6%~13.9%之间,见表3。

表3 倒推TC、OC数据明细

Table 3 TC and OC data on calculation

| 项目   | 美国EPA | 深圳     | 无锡    | 济南     |
|--|-------|--------|-------|--------|
| $\rho$ (倒推TC) $/( \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3} )$ | 66.41 | 56.88  | 63.11 | 50.40  |
| 相差百分比/%  |       | -14.35 | -4.97 | -24.10 |
| $\rho$ (倒推OC) $/( \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3} )$ | 46.21 | 40.03  | 52.65 | 39.95  |
| 相差百分比/%  |       | -13.38 | 13.93 | -13.56 |

## 3 结语

基于不同采样方法建立的机动车排放颗粒物成分谱的差异较大,甚至作为特征元素的TC和OC含量也相差较大。基于不同采样方法建立的机动车排放颗粒物成分谱相关性较差,相关系数的值为0.08~0.73。如果采用基于不同采样方法而建立的机动车排放颗粒物成分谱进行来源解析计算,得出结果将会存在一定的差异。

在机动车污染防治越来越受重视的背景下,应抓紧出台建立机动车排放颗粒物成分谱,甚至其他污染源成分谱的规范或者标准,使各地开展机动车对大气中颗粒物贡献及颗粒物成分谱分析数据具有可比性,为科学决策提供可靠依据。

### [参考文献]

- [1] 周海茵. 制定南京市机动车污染防治地方性法规的思考[J]. 环境监测管理与技术, 2009, 21(2): 8-11.
- [2] 冯银厂, 彭林, 吴建会, 等. 乌鲁木齐市环境空气中TSP和 $\text{PM}_{10}$ 来源解析[J]. 中国环境科学, 2005, 25(Suppl): 30-33.
- [3] 包贞, 冯银厂, 焦荔, 等. 杭州市大气 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{PM}_{10}$ 污染特征及来源解析[J]. 中国环境监测, 2010, 26(2): 44-48.
- [4] 周志忠, 杨三明, 张丹, 等. 重庆市主城区 $\text{PM}_{10}$ 与能见度相关性研究[J]. 环境监测管理与技术, 2009, 21(3): 65-68.
- [5] 侯辉, 郭清彬, 程学峰. 淮南市春季大气中多环芳烃的污染特征及来源[J]. 环境监测管理与技术, 2009, 21(5): 58-61.
- [6] 戴树桂, 朱坦, 白志鹏. 受体模型在大气颗粒物源解析中的应用和进展[J]. 中国环境科学, 1995, 15(4): 252-257.
- [7] KIM B M, RONALD C H. Application of SAFER model to the Los Angeles  $\text{PM}_{10}$  data [J]. Atmospheric Environment, 2000

- (34): 1747-1759.
- [8] SAMARA C T, KOUIMTZIS R, TSITOURIDOU G, et al. Chemical mass balance source apportionment of PM<sub>10</sub> in an industrialized urban area of Northern Greece [J]. Atmos Environ, 2003(37): 41-54.
- [9] 韩博, 冯银厂, 毕晓辉, 等. 无锡市环境空气中 PM<sub>10</sub> 来源解析 [J]. 环境科学研究, 2009, 22(1): 35-39.
- [10] 王玮, 叶慧海, 金大善, 等. 交通来源颗粒物及其无机成分污染特征的研究 [J]. 环境科学研究, 2001, 14(4): 27-31.
- [11] JOHN G, WASTON J C, CHOW J E, et al. PM<sub>2.5</sub> chemical source profile for vehicle exhaust, vegetative burning, geological material, and coal burning in North Colorado during 1995 [J]. Chemosphere, 2001(43): 1141-1151.
- [12] 徐光. 辽宁省三城市大气颗粒物来源解析研究 [J]. 中国环境监测, 2007, 23(3): 57-61.
- [13] 吴建会, 朱坦, 冯银厂, 等. 太原市环境空气中 TSP 和 PM<sub>10</sub> 来源解析 [J]. 城市环境与生态, 2008, 21(4): 40-42.
- [14] 张鹏飞. 天津市柴油公交车尾气颗粒物成分谱建立及特征研究 [D]. 天津: 南开大学, 2007.
- [15] WATSON J G, CHOW J C, KOHL S D, et al. Annual report for the Rpbbins particulate study [R]. Reno, USA: Desert Research Institute, 1999.
- [16] 温新欣, 崔兆杰, 张桂芹. 济南市 PM<sub>2.5</sub> 的来源解析 [J]. 济南大学学报, 2009, 23(3): 292-295.
- [17] 赵琦, 张丹, 叶堤, 等. 重庆主城大气 PM<sub>10</sub> 的源解析研究 [J]. 三峡环境与生态, 2008, 1(3): 14-17.
- [18] 郝明途, 侯万国, 屈小辉, 等. 大气颗粒物二重源解析技术的方法改进 [J]. 中国环境科学, 2005, 25(2): 138-141.
- [19] 韩斌, 白志鹏, 解以扬, 等. 天津近海夏季大气颗粒物元素特征及来源分析 [J]. 海洋环境科学, 2010, 29(6): 830-833.
- [20] KOWALCZYK G S, GORDON G E, RHEINGROVER S W. Identification of atmospheric particulate sources in Washington, DC, using chemical element balances [J]. Environmental Science and Technology, 1982(16): 79-80.
- [21] GORDON G E. Receptor models [J]. Environmental Science and Technology, 1980(14): 792-800.
- [22] YATIN M, TUNCEL S, ARAS N K, et al. Atmospheric trace elements in Ankara, Turkey: 1. factors affecting chemical composition of fine particles [J]. Atmospheric Environment, 2000(34): 1305-1318.

本栏目责任编辑 薛光璞

## · 简讯 ·

### 人口增长将使人类面对环境恶化挑战

随着发展中国家发生改变及其人民对设施越来越高的需求, 能源和环境问题将加剧。美国麻省理工学院的最新研究认为, 随着世界各地人口持续增长, 大国或者发展中国家不断上升的影响力正在塑造我们未来的全球性挑战。

据环境新闻服务网报道, 麻省理工学院针对全球科学和政策变化开展的联合项目近日发布的《2012年能源和气候展望》报告预测, 到2050年时, 能源的消耗可能会增加一倍。届时, 快速发展的G20国家的车辆保有量将达到目前的4倍以上, 其中包括俄罗斯、巴西、墨西哥、中国、印度和其他亚洲发展中国家。

“尽管我们早已知道, 除欧洲、北美和日本以外的经济大国对温室气体排放和气候的影响会越来越大, 但其(到2050年的)能源消耗和排放量的急剧增长”如报告所预测的那样“是惊人的”, 该联合项目的主管之一、报告的首要作者约翰·赖利(John Reilly)说。

赖利的合作团队的预测基础是联合国做出的到本世纪末世界人口将超过100亿的估计。他们利用计算机模拟系统来预测这种人口增长将如何影响我们的能源和气候, 并综合考虑了20国集团在2009年的哥本哈根国际会议上承诺的到2020年的减排目标。

“持续增长的温室气体排放和浓度以及气候变化——即使假设欧洲、北美和日本减排成功——尤其令人不安, 这表明需要加倍努力以减少温室气体排放。”赖利说。

报告预测, 随着俄罗斯、巴西、墨西哥、中国、印度和发展中国家的增长以及其能源消耗的大幅提高, 它们也可能将成为最大的排放源, 促使全球温室气体排放量翻番、本世纪碳排放量增至3倍。

报告显示, 随着排放量的增加, 到本世纪末, 温度将升高高达6.7℃, 这一数字略高于联合国政府间气候变化专门委员会6.4℃的升温预测。

虽然研究人员指出, 温度升高多少被认为是危险的, 仍处于争议和不确定之中, 但他们表示“我们研究中预测的增幅——到2100年为3.5℃到近7℃或更高——将构成威胁, 几乎不会有人为此辩解。”

报告显示, 除CO<sub>2</sub>之外的温室气体也将显著增加。尽管有大约三分之二的温室气体排放仍将来自于CO<sub>2</sub>, 但其他类型的来源也可能会增加, 比如化肥产生的N<sub>2</sub>O、牲畜产生的甲烷等。报告指出, 由于这些其他类型的排放可能会更加普遍, 这类减排也应成为工作重点。

报告预测, 煤炭、石油和天然气仍将是下个世纪的主要能源形式。

摘自 www.jshb.gov.cn 2012-03-14