

缸内直喷汽油机排放 PM_{2.5} 的理化特征及影响因素

秦艳红¹, 胡敏^{1*}, 李梦仁¹, 王银辉², 彭剑飞¹, 郑荣², 郑竞¹, 王玉珏¹, 吴宇声¹, 王渝¹, 顾芳婷¹, 杜卓菲¹, 帅石金² (1. 北京大学环境科学与工程学院, 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 北京 100871; 2. 清华大学汽车安全与节能国家重点实验室, 北京 100084)

摘要: 通过发动机台架实验研究了发动机的转速、负荷对缸内直喷(GDI)汽油机排放 PM_{2.5} 的排放水平、化学组成及颗粒物数浓度等的影响。结果表明: GDI 汽油机排放 PM_{2.5}, OC, EC 的排放因子分别为 (49.8±28.2), (21.6±6.9), (11.4±10.8) mg/kg。低转速时, PM_{2.5} 排放量随着负荷的增加先减少后增加, 中、高转速时随着负荷的增加逐渐增加。碳质气溶胶是 GDI 汽油机排放的 PM_{2.5} 的主要组成成分, 有机物(OM)和元素碳(EC)分别占 PM_{2.5} 的 45.6%~70.6% 和 7.9%~42.7%。PM_{2.5} 数浓度呈核态 (10nm<Dp<30nm) 和积聚态 (30nm<Dp<200nm) 的双峰分布, 数浓度排放量比进气道喷射(PFI)汽油机高 2 个数量级, 不同转速下积聚态颗粒数浓度随着负荷的增加而增加。

关键词: 缸内直喷汽油机; PM_{2.5}; 化学组成; 排放特征; 数谱分布

中图分类号: X513

文献标识码: A

文章编号: 1000-6923(2016)05-1332-08

Physical and chemical characteristics of PM_{2.5} emissions from gasoline direct injection engine and its influence factors. QIN Yan-hong¹, HU Min^{1*}, LI Meng-ren¹, WANG Yin-hui², PENG Jian-fei¹, ZHENG Rong², ZHENG Jing¹, WANG Yu-jue¹, WU Yu-sheng¹, WANG Yu¹, GU Fang-ting¹, DU Zhuo-fei¹, SHUAI Shi-jin² (1. State Key Joint Laboratory of Environmental Simulation and Pollution Control, College of Environmental Sciences and Engineering, Peking University, Beijing 100871, China; 2. State Key Laboratory of Automotive Safety and Energy, Tsinghua University, Beijing 100084, China). *China Environmental Science*, 2016, 36(5): 1332~1339

Abstract: This paper investigated the effect of engine speed and load on the emission factors, characteristics of chemical composition and size distribution of the PM_{2.5} from a GDI engine. Results demonstrated that the emission factors of PM_{2.5}, OC and EC were (49.8±28.2), (21.6±6.9), (11.4±10.8) mg/kg. At low engine speed, with the increase of engine load, PM_{2.5} firstly decreased and then gradually increased. While it showed an increasing trend with the increase of load in media and high engine speed. The major components of PM_{2.5} produced from GDI engine were organic matters and element carbons, respectively, accounting for 45.6%~70.6% and 7.9%~42.7%. Particles from GDI engine were bimodal distribution including nucleation mode (10nm<Dp<30nm) and accumulation mode (30nm<Dp<200nm). The number concentration of GDI engine was two orders of magnitude higher than that of port fuel injection (PFI) engine. At different engine speeds, accumulation mode particles increased as the load increased.

Key words: gasoline direct injection engine; PM_{2.5}; chemical composition; emission characterization; size distribution

随着我国社会经济的迅速发展,城市机动车保有量迅速增加,机动车尾气已成为我国城市大气颗粒物的重要来源^[1-3]。研究显示机动车排放的颗粒物含有机碳(OC)、元素碳(EC)、微量元素和无机离子等,其中有机碳主要由未燃和未完全燃烧的燃油、润滑油及其裂解产物及部分氧化产物形成的碳氢化合物在排气管中凝结、吸附到颗粒物上形成的^[4-5],元素碳主要来源于燃料的不完全燃烧。机动车排放的颗粒物中

含有重金属、致癌的 PAHs 和醛类等物质,这些物质能够严重的影响人体健康,包括呼吸系统、神经退行性疾病等^[6-9];尾气中的黑碳成分具有很强的光吸收能力,对大气能见度和气候效应

收稿日期: 2015-10-15

基金项目: 国家自然科学基金(91544214);国家重点基础研究发展计划(2013CB228503,2013CB228502);中国科学院战略性先导科技专项(XDB05010500)

* 责任作者, 教授, minhu@pku.edu.cn

具有重要影响^[10]。

缸内直喷汽油机(GDI)将燃油直接喷入燃烧室,具有喷油时刻控制灵活、燃油经济性高、CO₂ 排放低等优点,因此,GDI 汽油机正受到国内外的广泛关注,成为乘用车满足 2020 年油耗法规的主导技术之一.但由于燃油缸内直接喷射,油气混合时间缩短,油束容易碰壁,造成油气混合不均、局部过浓,从而造成 GDI 汽油机尾气颗粒物排放水平高,其中 GDI 汽油车排放的颗粒物数浓度高于进气道喷射汽油车和加装了颗粒物过滤器的柴油车^[11-16],因此 GDI 汽油机排放颗粒物的环境影响同样引起国内外的高度关注.GDI 汽油机排放颗粒物水平、化学组成、排放特征等受多种因素的影响.随着发动机负荷的增加,喷油量增加,颗粒物数浓度排放量增加^[17-18].不同的缸内混合气形成方式(气流引导、壁面引导、喷雾引导)也会影响颗粒物的化学组成,壁面引导汽油机排放颗粒物的化学组成与柴油机类似,元素碳约占总颗粒物质量的 72%^[19];喷雾引导汽油机排放颗粒物依赖于发动机运行状态,颗粒物排放主要由低挥发性物质组成,元素碳含量小于 30%^[20].空燃比、点火时刻、喷油时刻、燃油理化特性(例如芳烃含量、蒸汽压、挥发性、氧含量等)等同样会影响颗粒物的排放^[21-23].国内学者对 GDI 汽油机排放的研究集中在发动机运转模式(如转速、负荷、过量空气

系数、点火时刻、喷油时刻等)及处理技术(如废气再循环技术等)对颗粒物数浓度和质量浓度排放的影响^[24-28],但对排放颗粒物全化学组成、排放水平及环境影响研究较少.本研究采集了 GDI 汽油机排放颗粒物样品,对颗粒物浓度水平、化学组成、数谱分布等方面进行研究,探讨转速和负荷等因素对 GDI 汽油机颗粒物排放的影响,为制定我国机动车排放标准提供理论依据和数据支持.

1 研究方法

1.1 样品采集

本研究基于已量产的国产自主品牌 GDI 汽油机进行台架实验,该发动机符合国 IV 排放标准,其发动机的结构参数和实验条件如表 1 所示.

表 1 GDI 汽油机结构参数及实验条件
Table 1 Specifications and experiment conditions for GDI engine

参数	指标
喷油形式	缸内直喷、侧置喷嘴
进气方式	涡轮增压
压缩比	10
排气量(L)	1.497
转速(r/min)	1600,2000,3000
负荷(%)	25,50,75
燃油	93#及以上
排放标准	国 IV

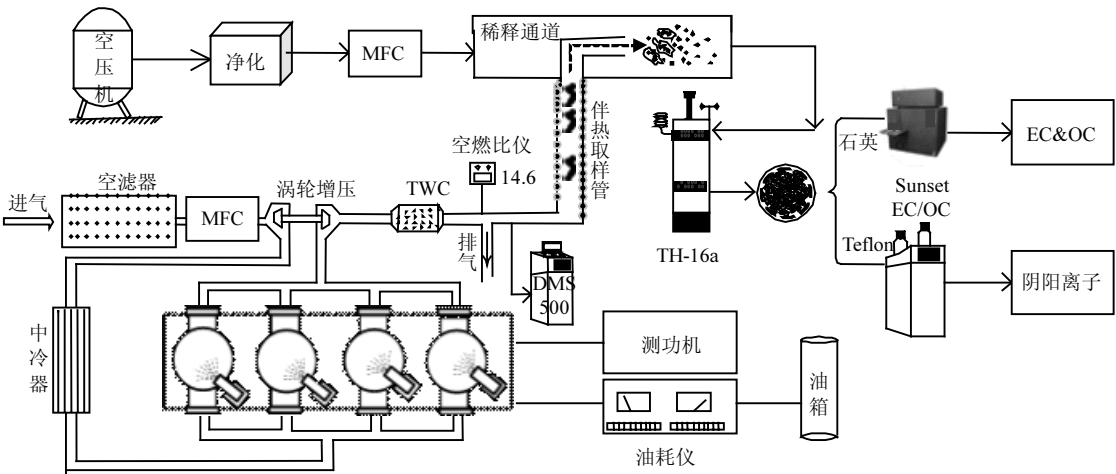


图 1 GDI 汽油机发动机台架、采样、分析系统
Fig.1 Sampling and analysis system for GDI engine

发动机台架、采样和分析系统如图 1 所示,采样时,调整发动机采样工况,稳定运行一段时间后,打开采样管路,GDI 汽油机排放的尾气经 200℃ 伴热取样管进入稀释通道稀释,稀释气为经过去水、去油、过滤颗粒物的压缩空气.尾气经过稀释之后利用 TH-16A 大气颗粒物智能采样仪(武汉天虹公司)采集 $PM_{2.5}$ 样品,根据需要对采样器进行改装,采集 3 个通道样品,分别为 1 张 Teflon 膜(Whatman Inc, USA, 47mm)和 2 张石英纤维滤膜(Whatman Inc, USA, 47mm),采样时间 20~30min.

为了保证实验的可靠性,每个工况进行 3 次重复性实验.石英纤维滤膜采样前经过 550℃ 高温灼烧 5.5h,以去除有机物,采样后的滤膜放置在洁净的 Petri Dish 中,其中石英纤维滤膜放在经 550℃ 高温灼烧 5.5h 的铝箔包好的膜盒中,放入密封袋置于冰箱冷冻避光保存.

1.2 样品分析

1.2.1 颗粒物质量浓度分析 采样前后将 Teflon 膜放置在恒温恒湿(温度 $(20\pm 1)^{\circ}C$,RH $(40\pm 5)\%$)超净室平衡 24h 后,利用十万分之一天平(AX105DR 型,瑞士 Mettler Toledo)进行称量,根据每张膜采样前后的质量差除以采样体积计算质量浓度.

1.2.2 颗粒物化学组成分析 将已称量的 Teflon 膜用 10mL 去离子水(Milli-Q Gradient 纯水机,18.2M $\Omega\cdot cm$)室温下超声提取 30min,提取液经 0.45 μm PTFE 滤膜(Gelman Sciences)过滤.阳离子分析采用 Dionex ICS-2500 型离子色谱仪,阴离子采用 Dionex ICS-2000 型离子色谱仪,其中 Na^{+} , NH_4^{+} , K^{+} , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^{-} , NO_3^{-} , 丁二酸, SO_4^{2-} 和乙二酸的提取液监测限依次为 0.002, 0.007, 0.004, 0.004, 0.006, 0.0006, 0.002, 0.005, 0.003, 0.004mg/L.具体方法和质量控制详见文献[29].

利用美国 Sunset EC/OC 分析仪分析石英纤维滤膜上采集的有机碳(OC)和元素碳(EC),分析方法为热光透射法(NIOSH5040 方法),仪器原理、分析方法和质量控制详见文献[30].仪器的精密密度是 $\pm 5\%$,最低检出限是 0.2 $\mu g/m^2$.

1.2.3 颗粒物数谱分布 应用 DMS500 型快速

颗粒物分析仪(英国 Cambustion 公司)和 AVL CPC489(奥地利 AVL List GmbH 公司),DMS500 型快速颗粒物分析仪用来测量颗粒物粒径分布,该仪器有 22 级测量单元,能够对 5~1000nm 范围内的颗粒物进行测量.AVL CPC489 测量颗粒物数量前会加热去除可挥发物质^[18].

2 结果与讨论

2.1 GDI 汽油机 $PM_{2.5}$ 的浓度水平

图 2 给出了 GDI 汽油机分别在 25%,50%,75%负荷和 1600,2000,3000r/min 转速下 $PM_{2.5}$ 的排放因子(催化剂后,以单位燃油排放量表示),其中除 3000r/min、75%负荷外,其余工况采用化学计量比均质混合气组织燃烧.GDI 汽油机排放 $PM_{2.5}$ 在 9 个实验工况下的平均浓度水平为 $(49.8\pm 28.2)mg/kg$,在转速 3000r/min、25%负荷时 $PM_{2.5}$ 的排放水平最低, $PM_{2.5}$ 的排放因子为 $(22.0\pm 3.4)mg/kg$;转速 3000r/min、75%负荷时排放水平最高,排放因子为 $(109.9\pm 16.9)mg/kg$.

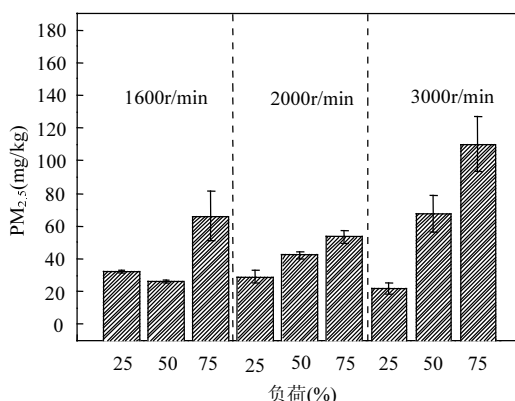


图 2 GDI 汽油机排放 $PM_{2.5}$ 的排放因子

Fig.2 Emission factors of $PM_{2.5}$ from GDI engine

发动机低转速运行时(转速 1600r/min),随着负荷的增加, $PM_{2.5}$ 的排放量先减少后增加,这是由于当负荷从低到高增加时,气缸内燃烧温度升高,对 $PM_{2.5}$ 氧化能力增强, $PM_{2.5}$ 排放量降低;随着负荷的进一步增加,缸内喷油量逐渐增多,缸内局部燃油混合不均匀增强,燃油燃烧不充分起主导作用,因此 $PM_{2.5}$ 排放量增加.转速为 2000, 3000r/min 时,随着发动机负荷的增加, $PM_{2.5}$ 排放

量增加,当发动机采用混合气加浓方式时,PM_{2.5} 的排放量急剧增加.这主要是由于转速升高时,缸内喷油量增加量造成的 PM_{2.5} 增加比温度升高造成的 PM_{2.5} 减少的幅度显著,从而在中、高转速时局部燃油燃烧不充分起主导作用,PM_{2.5} 排放量随负荷增加逐渐增加.

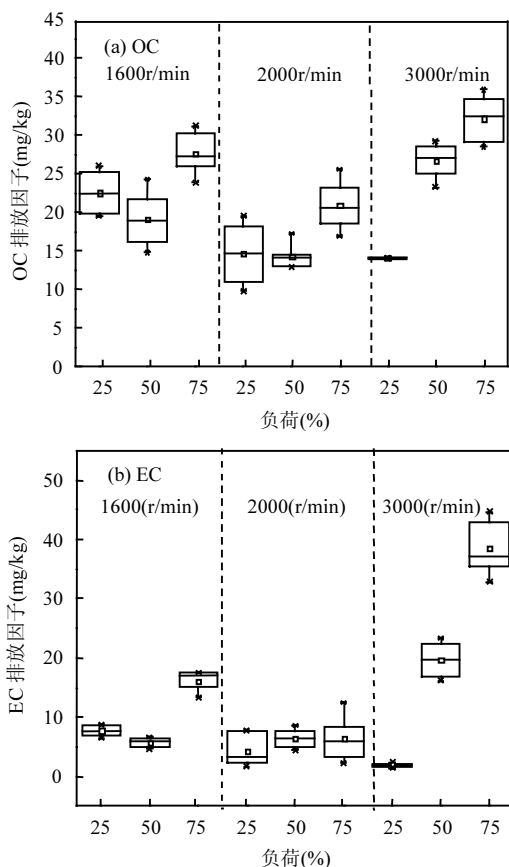


图3 GDI汽油机排放OC及EC的排放因子

Fig.3 Emission factors of OC and EC from GDI engine

柱图横线边缘由上至下分别表示最大值、上四分位数、中位数、下四分位数和最小值,方块表示平均值

图3表示GDI汽油机在25%,50%,75%负荷和1600,2000,3000r/min转速下催化器后PM_{2.5}中OC、EC排放因子,其中GDI汽油机排放OC、EC在9个实验工况下的平均浓度水平为(21.6±6.9),(11.4±10.8)mg/kg.转速在3000r/min、25%负荷时OC和EC的排放因子最小,分别为(14.0±0.1),(1.9±0.4)mg/kg;在转速3000r/min、75%负荷

时OC和EC的排放因子最大,分别为(32.2±3.1),(38.6±5.0)mg/kg,值得注意的是EC的排放超过OC,由于EC很强的吸光特性,因此GDI汽油机排放颗粒物造成的大气能见度降低和气候效应等问题值得关注.

2.2 与已有排放因子研究的对比

图4将本次实验结果与已有隧道实验、汽油车源采样等研究获得的排放因子进行对比,文献中源排放结果选用中值进行比较,对比发现,不同研究得到的排放因子差异较大,除了车型差异(车的生产时间、发动机喷油方式、冷/热启动等),还与研究方法(研究者使用的采样方法、分析方法)有关.

本研究测得的颗粒物排放因子介于国外隧道实验和进气道汽油车排放因子之间,高于国外GDI汽油车排放因子,低于换算的国V排放因子限值(国V排放因子限值为4.5mg/km).GDI汽油车排放颗粒物质量可能容易达到我国目前的颗粒物排放标准,但是GDI汽油车排放颗粒物的具体数值需要在底盘测功机上运行规定的工况循环,因此未来需要针对GDI汽油车在运行工况循环方面开展更多的研究.

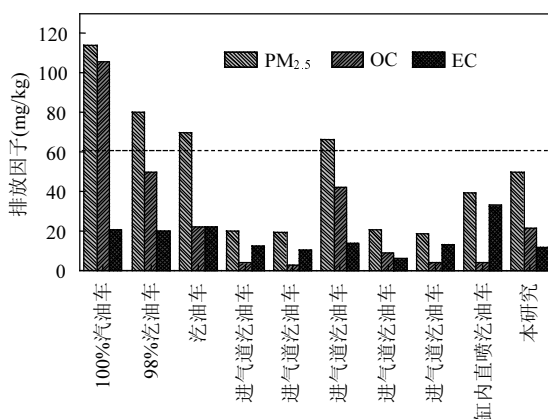


图4 与隧道实验和汽油机车排放因子对比

Fig.4 Comparison of emission factor with tunnel experiment and chassis dynamometer

数据从左到右分别是CA-10高速公路排放结果^[31];隧道实验,其中98%为轻型汽油车^[32];1995~2003年间生产的汽油车、2004年之后生产的汽油车结果中值^[31];1994年前生产的汽车,1994~2004年生产的汽车、2004年生产的汽油车的中值和附录中的GDI汽油车结果中值^[34];其中虚线为假设百公里油耗为10L/100km,密度为0.7469kg/L后计算的国V颗粒物限值排放因子

本研究测得的 GDI 汽油机的 OC 排放因子高于 May 等^[34]GDI 汽油车测得的结果,EC 排放因子低于 May 等 GDI 汽油车测得的结果,这首先可能是由于采样设备和研究方法不同,本次研究是利用发动机台架进行实验,与整车实验的结果有一定差距;另外在 ECOC 的分析方法上 May 等使用的是美国沙漠研究所(DRI,Desert research institute)的碳分析仪器,采用的是应用 TOR (thermal-optical reflectance)方法的 IMPROVE-A 升温程序,本研究使用的是 Sunset 的碳分析仪,使用的是应用 TOT(thermal-optical transmittance)方法的 NIOSH5040 升温程序,一般 TOT 方法测得的 EC 含量比 TOR 测得的 EC 含量低^[35]。

2.3 GDI 汽油机 PM_{2.5} 的化学组成

图 5 表示 GDI 汽油机排放 PM_{2.5} 的化学组成,其中有机物(OM)利用公式 $OM=1.2 \cdot OC$ 进行计算.研究表明,碳质气溶胶是 GDI 汽油车排放 PM_{2.5} 中最主要的成分,与国内王刚等^[36]和何立强等^[37]的关于机动车化学组成的研究结果比较一致,其中在不同的转速和负荷下,OM 和 EC 分别占到 PM_{2.5} 的 45.6%~70.6%和 7.9%~42.7%.除碳质气溶胶外, SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 分别占 PM_{2.5} 的 2.9%~6.5%、2.9%~5.8%、1.1%~4.3%, SO_4^{2-} 和 NO_3^- 的含量接近.金属含量占到 PM_{2.5} 的 0.4%~6.6%,主要金属为钙、钠、锰、锌等。

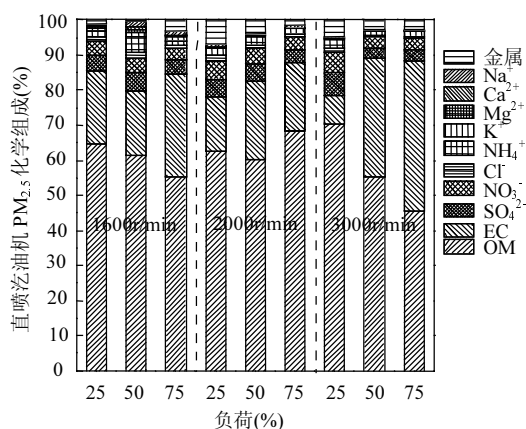


图 5 GDI 汽油机排放 PM_{2.5} 的化学组成

Fig.5 Chemical composition of PM_{2.5} from GDI engine

与其他转速相比,转速在 3000r/min 时,颗粒物的化学组成变化最大,负荷 25%时 OC 占颗粒

物的比例最大,EC 占颗粒物的比例最小,负荷 75%时 OC 占颗粒物的比例最小,EC 占颗粒物的比例最大.这可能由于高转速、低负荷时,高转速使得气缸内湍流运动增强,燃油和空气混合更加均匀,燃油能够较充分燃烧,产生 EC 少,未燃和未完全燃烧的燃油、润滑油及其裂解产物和部分氧化产物形成的 OC 贡献量增加.在高转速、高负荷时,为保证高功率的输出,汽油喷射系统增大燃油喷射量,发动机采取混合气加浓的方式,空燃比减少(空燃比为 12.5),燃烧向缺氧方向发展,不完全燃烧产生的 EC 的贡献量增大。

2.4 GDI 汽油机 PM_{2.5} 颗粒物数谱分布

由图 6 所示,在实验工况下,GDI 汽油机排放的颗粒物数浓度呈含核态颗粒物($10nm < D_p < 30nm$)和积聚态颗粒物($30nm < D_p < 200nm$)的双峰分布,峰值粒径范围分别在 10~20nm 和 50~80nm 之间,颗粒物总数浓度平均值为 $(6.9 \pm 5.3) \times 10^6$ 个/cm³,比北京环境大气颗粒物数浓度高 2 个数量级^[38]。

颗粒物总数浓度排放因子平均值为 $(6.4 \pm 4.3) \times 10^{12}$ 个/km,比欧 VI 排放标准规定的点燃式汽油车排放因子(6×10^{11} 个/km)高 1 个数量级,比 2000r/min 25%,50%,75%(排放因子分别为 5.2×10^{10} , 4.7×10^{10} , 5.2×10^{10} 个/km)下市面上常用的满足国 IV 标准的进气道喷射汽油机高了 2 个数量级.GDI 汽油机颗粒物质量浓度达到了国 V 的限值,但是其数浓度却高于欧 VI 排放标准.高浓度的细颗粒物能够深入人体内部,对人体健康具有重要影响,同时其重力沉降作用小,存在时间长,大气物理过程和化学转化活跃,在我国高氧化性的大气氛围下^[39],一旦长大到可见光波长范围内,将对我国的大气灰霾产生重要影响.面对我国灰霾事件频发,机动车尾气是我国城市大气颗粒物重要来源的现状,亟需改进现有 GDI 发动机尾气处理技术,降低颗粒物排放。

目前我国《轻型车汽车污染物排放限值及测量方法(中国第五阶段)》仅对汽油车颗粒物的质量浓度进行限制(国 V 颗粒物排放因子限值为 4.5mg/km),并未限制颗粒物的数浓度,面对 GDI 汽油机排放超高颗粒物数浓度和汽油车保有量

逐步上升的现状,未来制定标准时亟需加入颗粒 采取相应措施降低颗粒物排放,缓解我国大气灰
物数浓度的限值并严格执行,从而促使汽车厂家 霾问题.

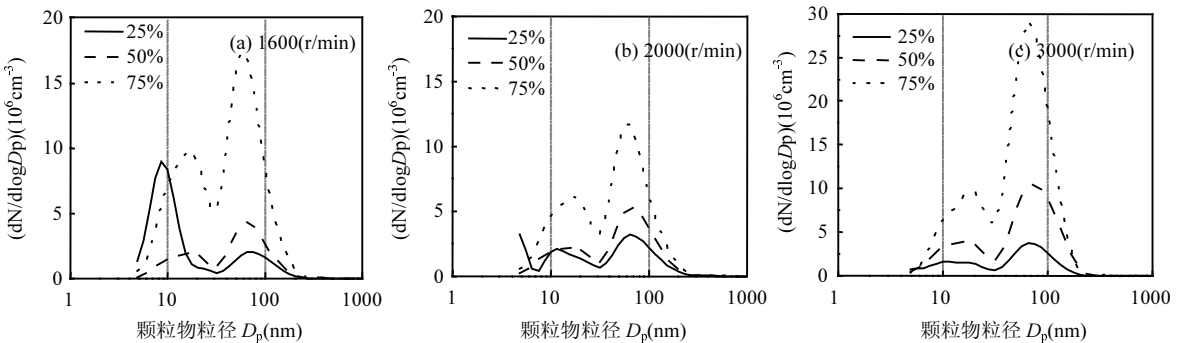


图 6 GDI 汽油机排放颗粒物数谱分布
Fig.6 Size distribution of PM from GDI engine

表 2 GDI 汽油机排放颗粒物数谱分布的模式拟合

Table 2 Fitting message of particle number concentration from GDI engine

转速 (r/min)	负荷 (%)	总数浓度 ($\times 10^{12}$ 个/km)	GMD (nm)	GSD (nm)	CMD (nm)	核态数浓度 ($\times 10^{11}$ 个/km)	核态 CMD(nm)	核态 GSD(nm)	积聚态数浓度 ($\times 10^{12}$ 个/km)	积聚态 CMD(nm)	积聚态 GSD(nm)
1600	25	4.4	15.9	2.6	10.6	36	8.8	1.5	1.1	73.0	1.6
1600	50	2.9	40.9	2.4	51.7	9.5	14.3	1.6	1.9	68.6	1.6
1600	75	1.2	36.2	2.3	44.1	50	15.4	1.6	7.1	64.3	1.5
2000	25	2.8	34.6	2.8	46.0	12	10.7	1.8	1.7	69.0	1.7
2000	50	3.5	42.6	2.5	54.4	11	13.3	1.6	2.4	71.1	1.6
2000	75	8.0	38.2	2.4	47.0	27	13.7	1.5	5.3	63.5	1.6
3000	25	2.6	38.2	2.6	51.7	8.9	12.4	1.6	1.6	71.2	1.5
3000	50	7.0	46.8	2.4	59.7	19	13.3	1.6	5.1	75.3	1.6
3000	75	14	46.2	2.2	56.7	38	15.8	1.6	10	69.3	1.5

注:颗粒物数浓度单位:个/km,假设百公里油耗量为10L/100km;GMD(Geometric Mean Diameter):几何中值粒径;GSD(Geometric Standard Deviation of Diameter):几何粒径标准偏差;CMD(Count Median Diameter):数浓度中值粒径.

由图 6 和表 2 所示,在转速 1600r/min、25% min 时,随着负荷的增加,核态和积聚态颗粒物
负荷时核态颗粒数浓度高于积聚态颗粒数浓度, 数浓度逐渐增加.
这与 Craskow 等^[40-41]得到的 GDI 汽油机在低转 研究表明,在各转速下,随着负荷增加,颗粒
速低负荷时有较多核态颗粒生成的结果相一致. 物数浓度中值粒径和几何中值粒径都表现为先
其他工况下核态颗粒物数浓度低于积聚态颗粒 增加后减少的趋势;核态数浓度中值粒径随着负
物数浓度. 荷的增加而增加;积聚态数浓度中值粒径在
低转速 1600r/min 时,随着负荷的增加,核态 1600r/min 时随着负荷的增加,粒径逐渐减小;
颗粒物呈现先减少后增加的趋势,该研究结果 2000 和 3000r/min 时随着负荷的增加积聚态的数
与潘锁柱^[24],Maricq 等^[42]研究基本一致,积聚态 浓度中值粒径呈现先增加后降低的趋势.

3 结论

3.1 实验用 GDI 汽油机排放 PM_{2.5} 的平均浓度
颗粒物随着负荷的增加逐渐增加;中等转速 水平为(49.8±28.1)mg/kg,本研究测得的颗粒物排
2000r/min 时,中、低负荷时核态颗粒物排放水
物随着负荷的增加逐渐增加;高等转速 3000r/

放因子介于隧道实验和进气道汽油车排放因子之间,高于国外GDI汽油车排放因子,低于换算的国V排放因子.发动机低转速时颗粒物的排放量随着负荷的增加先减少后增加,中、高转速时随着负荷的增加颗粒物排放量逐渐增加.

3.2 碳质气溶胶是 GDI 汽油机排放 $PM_{2.5}$ 中最主要的组成成分.尾气颗粒物中离子和金属含量低.在不同的负荷和转速下 $PM_{2.5}$ 的化学组成有较大差异,OM 占 $PM_{2.5}$ 的 45.6%~70.6%,EC 占 $PM_{2.5}$ 的 7.9%~42.7%,在高转速高负荷时 EC 排放量超过 OC 排放量,可见 GDI 汽油车排放高浓度的 EC,由此产生的大气能见度、空气质量和气候变化等问题值得关注.

3.3 GDI 汽油机颗粒物数浓度呈双峰分布,峰值粒径范围分别在 10~20nm 和 50~80nm 之间.不同转速下积聚态颗粒物数浓度随着负荷的增加而增加,核态颗粒物数浓度在不同转速下随着负荷增加增长趋势不同.随着负荷的增加,GDI 汽油机中颗粒物平均中值粒径呈现先增加后减少的趋势,其颗粒物浓度排放量比进气道喷射汽油机颗粒物排放量高 2 个数量级.

参考文献:

- [1] Zheng M, Wang F, Hagler S W, et al. Sources of excess urban carbonaceous aerosol in the Pearl River Delta Region, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2011,45(5):1175-1182.
- [2] Ni T. Source Apportionment of PM_{10} in Four Cities of Northeastern China [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2012, 12:571-582.
- [3] Yu L, Wang G F, Zhang R J, et al. Characterization and Source Apportionment of $PM_{2.5}$ in an Urban Environment in Beijing [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2013,13(2):574-583.
- [4] D'alessio A, D'anna A, Minutolo P, et al. Nanoparticles of organic carbon (NOC) formed in flames and their effects in urban atmospheres [J]. *Combustion Generated Fine Carbonaceous Particles*, Karlsruhe University Press, Karlsruhe, 2009:205-230.
- [5] Sgro L A, Sementa P, Vaglieco B M, et al. Investigating the origin of nuclei particles in GDI engine exhausts [J]. *Combustion and Flame*, 2012,159(4):1687-1692.
- [6] Pope C A, Dockery D W. Health Effects of Fine Particulate Air Pollution: Lines that Connect [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2006,56(6):709-742.
- [7] Gauderman W J, Vora H, McConnell R, et al. Effect of exposure to traffic on lung development from 10 to 18 years of age: a cohort study [J]. *The Lancet*, 2007,369(9561):571-577.
- [8] Meuer K, Pitzer C, Teismann P, et al. Granulocyte-colony stimulating factor is neuroprotective in a model of Parkinson's disease [J]. *Journal of neurochemistry*, 2006,97(3):675-686.
- [9] Seagrave J, McDonald J D, Bedrick E, et al. Lung Toxicity of Ambient Particulate Matter from Southeastern U.S. Sites with Different Contributing Sources: Relationships between Composition and Effects [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2006,114(9):1387-1393.
- [10] Bond T C, Doherty S J, Fahey D W, et al. Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2013,118(11): 5380-5552.
- [11] Andersson J, Giechaskiel B, Munoz-Bueno R, et al. Particle Measurement Programme (PMP) light-duty inter-laboratory correlation exercise (ILCE-LD) final report [J]. *Institute for Environment and Sustainability*. EUR, 2007,22775.
- [12] Thompson N, Ntziachristos L, Samaras Z, et al. Overview of the European "Particulates" project on the characterization of exhaust particulate emissions from road vehicles: results for heavy-duty engines [J]. *SAE Technology Paper*, 2004:1985-2005.
- [13] Maricq M M, Podsiadlik D H, Brehob D D, et al. Particulate emissions from a direct-injection spark-ignition (DISI) engine [R]. *SAE Technical Paper*, 1999:1-11.
- [14] Aakko P, Nylund N O. Particle emissions at moderate and cold temperatures using different fuels [R]. *SAE Technical Paper*, 2003:1-20.
- [15] Kokko J, Rantanen L, Pentikäinen J, et al. Reduced particulate emissions with reformulated gasoline [R]. *SAE Technical Paper*, 2000:1-16.
- [16] Mohr M, Forss A M, Steffen D. Particulate emissions of gasoline vehicles and influence of the sampling procedure [R]. *SAE Technical Paper*, 2000:1-12.
- [17] Farron C, Matthias N, Foster D, et al. Particulate Characteristics for Varying Engine Operation in a Gasoline Spark Ignited, Direct Injection Engine [J]. *SAE Technical Paper*, 2011:1-11.
- [18] Maricq M M, Podsiadlik D H, Brehob D D, et al. Particulate Emissions from a Direct-Injection Spark-Ignition (DISI) Engine [J]. *SAE Technical Paper*, 1999:1-11.
- [19] Andersson J, Collier A, Garrett M, et al. Particle and sulphur species as key issues in gasoline direct injection exhaust [J]. *Nippon Kikai Gakkai*, 1999,15:449-452.
- [20] Price P, Stone R, OudeNijeweme D, et al. Cold start particulate emissions from a second generation DI gasoline engine [J]. *SAE Technical Paper*, 2007:1738-1752.
- [21] Pei Y Q, Qin J, Pan S Z. Experimental study on the particulate

- matter emission characteristics for a direct-injection gasoline engine [J]. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part D: Journal of Automobile Engineering*, 2014,228(6):604–616.
- [22] Chen L, Stone R, Richardson D. A study of mixture preparation and PM emissions using a direct injection engine fuelled with stoichiometric gasoline/ethanol blends [J]. *Fuel*, 2012,96:120–130.
- [23] Liang B, Ge Y, Tan J, et al. Comparison of PM emissions from a gasoline direct injected (GDI) vehicle and a port fuel injected (PFI) vehicle measured by electrical low pressure impactor (ELPI) with two fuels: Gasoline and M15methanol gasoline [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2013,57:22–31.
- [24] 潘锁柱,裴毅强,宋崇林,等.汽油机颗粒物数量排放及粒径的分布特性 [J]. *燃烧科学与技术*, 2012,46(7):181–185.
- [25] 潘锁柱,宋崇林,裴毅强,等. EGR 对 GDI 汽油机燃烧和排放特性的影响 [J]. *内燃机学报*, 2012,30(5):749–754.
- [26] 李超,宋崇林,潘锁柱,等.空燃比和 EGR 对 GDI 汽油机多环芳烃排放的影响 [J]. *燃烧科学与技术*, 2014,20(2):164–169.
- [27] 帅石金,郑荣,王银辉,等.缸内直喷汽油机微粒排放特性的试验研究 [J]. *汽车安全与节能学报*, 2014,5(3):304–310.
- [28] 潘锁柱,宋崇林,裴毅,等.缸内直喷汽油机颗粒物粒径分布特性 [J]. *天津大学学报(自然科学与工程技术版)*, 2013,46(7):629–634.
- [29] Guo S, Hu M, Wang Z B, et al. Size-resolved aerosol water-soluble ionic compositions in the summer of Beijing: implication of regional secondary formation [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010,10:947–959.
- [30] 郇宁,曾立民,邵敏,等.北京市冬季 PM_{2.5} 中碳组分的测量与分析 [J]. *北京大学学报(自然科学版)*, 2006,42(2):265–270.
- [31] Ning Z, Polidoria A, Schauer J, et al. Emission factors of PM species based on freeway measurements and comparison with tunnel and dynamometer studies [J]. *Atmospheric Environment*, 2008,42(13):3099–3114.
- [32] Fujita E M, Campbell D E, Zielinska B, et al. Comparison of the MOVES2010a, MOBILE6.2, and EMFAC2007mobile source emission models with on-road traffic tunnel and remote sensing measurements [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2012,62(10):1134–1149.
- [33] Gordon T D, Presto A A, May A A, et al. Secondary organic aerosol formation exceeds primary particulate matter emissions for light-duty gasoline vehicles [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014,14(9):4661–4678.
- [34] May A A, Nauyen N T, Presto A A, et al. Gas- and particle-phase primary emissions from in-use, on-road gasoline and diesel vehicles [J]. *Atmospheric Environment*, 2014,88:247–260.
- [35] Chow J C, Wastson J G, Chen A, et al. Equivalence of Elemental Carbon by Thermal/Optical Reflectance and Transmittance with Different Temperature Protocols [J]. *Environ Sci Technol*, 2004, 38(16):4414–4422.
- [36] 王刚,郎建奎,程水源,等.重型柴油车 PM_{2.5} 和碳氢化合物的排放特征 [J]. *中国环境科学*, 2015(12):3581–3587.
- [37] 何立强,胡京南,祖雷,等.国 I~国 III 重型柴油车尾气 PM_{2.5} 及其碳质组分的排放特征 [J]. *环境科学学报*, 2015,35(3):656–662.
- [38] 郎凤玲,闫伟奇,张泉,等.北京大气颗粒物数浓度粒径分布特征及与气象条件的相关性 [J]. *中国环境科学*, 2013,33(7):1153–1159.
- [39] Guo S, Hu M, Zamora M L, et al. Elucidating severe urban haze formation in China [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2014,111(49):17373–17378.
- [40] Graskow B R, Kittelson D B, Ahmadi M R, et al. Exhaust Particulate Emissions from a Direct Injection Spark Ignition Engine [J]. *SAE Technical Paper*, 1999:1–11.
- [41] 李新令,黄震,王嘉松,等.汽油机排气颗粒粒径分布特征试验研究 [J]. *环境化学*, 2008,27(1):64–68.
- [42] Maricq M M, Podsiadlik D H, Chase R E. Gasoline vehicle particle size distributions: Comparison of steady state, FTP, and US06measurements [J]. *Environmental science & technology*, 1999,33(12):2007–2015.
- 致谢:** 感谢胡伟在采样技术上的指导;感谢郭松老师和张文彬在论文写作方面的指导;感谢清华大学汽车安全与节能国家重点实验付海超和商轶等同学在提供采样设备和实验方面的支持和指导。
- 作者简介:** 秦艳红(1990–),女,山东日照人,北京大学硕士研究生,主要从事大气气溶胶化学组成及有机物测量方面的研究工作。