

蚊香类散发污染物排放因子及颗粒物分布特征研究^{*}

朱 春^{1,2} 李景广² 姚小龙² 沈嗣卿² 张亚雷¹ 王丽娜^{3#}

(1. 同济大学环境科学与工程学院, 上海 200092; 2. 上海市建筑科学研究院, 上海 201108;

3. 华东理工大学, 国家环境保护化工过程环境风险评价与控制重点实验室, 上海 200237)

摘要 应用大型空气质量实验舱平台, 分别测试盘式固体蚊香、片型电蚊香和液体电蚊香的 $PM_{2.5}$ 和主要气态污染物散发量。采用定释放浓度法, 获得 $PM_{2.5}$ 和主要气态污染物排放因子。结果显示, 盘式固体蚊香、液体电蚊香、片型电蚊香的 $PM_{2.5}$ 排放因子分别为 12.9、1.3、2.6 mg/h, 总挥发性有机物 (TVOC) 排放因子分别为 103.4、69.5、58.8 mg/h, 甲醛排放因子分别为 16.0、8.9、12.5 mg/h, 3 种蚊香排放的主要苯系污染物排放水平相当, 此外盘式固体蚊香还散发 CO, 排放因子为 925.4 mg/h。对盘式固体蚊香散发颗粒物的数浓度谱分布进行了拟合分析, 发现数浓度谱分布具有良好的自模性, 拟合得出计数中位径 (CMD) 为 90 nm, 几何标准差 (GSD) 为 1.65; 假设蚊香释放颗粒物为密度 1.4 g/cm³ 的球形颗粒, 利用质量浓度和数浓度谱分布特征反算得出各类蚊香散发颗粒物的数浓度排放因子。通过案例计算, 发现房间在正常通风条件 (换气次数为 2.0 次/h) 下使用各类蚊香时散发的 TVOC 浓度将超标 1.8~3.2 倍, 甲醛超标 1.5~3.0 倍; 盘式固体蚊香散发的 $PM_{2.5}$ 超标近 1.5 倍, CO 超标 1.7 倍。对封闭环境下, 通风条件很差 (换气次数为 <0.5 次/h), 此时所有污染物浓度将增大 4 倍, 污染更加严重。

关键词 蚊香类 排放因子 (EF) $PM_{2.5}$ 颗粒物数浓度 TVOC 粒径分布 甲醛

Experimental study on pollutants emission factors and particle size distribution when using mosquito repellents ZHU Chun^{1,2}, LI Jingguang², YAO Xiaolong², SHEN Siqing², ZHANG Yalei¹, WANG Lina³. (1. College of Environmental Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092; 2. Shanghai Research Institute of Building Science, Shanghai 201108; 3. State Environmental Protection Key Laboratory of Risk Assessment and Control on Chemical Processes, East China University of Science & Technology, Shanghai 200237)

Abstract: Series experiments were carried out in a large air quality experimental cabin to determine the pollutants emission when using mosquito repellent. The experiments were operated by using constant injection method, the emission factors (EFs) of $PM_{2.5}$ and other gaseous pollutants from mosquito repellent coil, liquid electric mosquito-repellent incense and mosquito-repellent electric mat were determined respectively. Results showed that $PM_{2.5}$ EFs of mosquito-repellent coil, liquid mosquito-repellent incense and mosquito-repellent electric mat were 12.9, 1.3, 2.6 mg/h, respectively. The corresponding values of TVOC EFs were 103.4, 69.5, 58.8 mg/h, respectively. For formaldehyde, their EFs were 16.0, 8.9, 12.5 mg/h, respectively. In addition, mosquito-repellent coil emitted CO as well and the CO EFs was 925.4 mg/h. The fitting analysis of particle size distribution (PSD) for mosquito-repellent coils presented perfect self-preservation signature, and the simulation results of counted median diameter (CMD) and geometric standard deviation (GSD) were 90 nm and 1.65 respectively. Assuming that the particle matters emitted from mosquito-repellent coils was spherical shaped particles with the density of 1.4 g/cm³, this paper calculate the EFs of total particle number on the basis of particles mass concentration and the corresponding PSD modeling results. As to an ordinary bedroom with air change rate of twice per hour, application of mosquito repellent would cause TVOC and formaldehyde concentration exceeding the relative standards by 1.8-3.2 and 1.5-3.0 times. Furthermore, mosquito coil could also lead the $PM_{2.5}$ and CO concentration of 1.5 and 1.7 times more than standard level. The sealed environment and poor-ventilated condition would elevated the pollutant concentration by 4 times, the pollution of air was even worse when application the mosquito repellent.

Keywords: mosquito repellent; emission factor (EF); $PM_{2.5}$; PM number concentration; TVOC; particle size distribution; formaldehyde

蚊香是夏季室内驱蚊虫的主要用品, 以盘式固体蚊香为典型, 在其燃用过程中释放大量的颗粒物 ($PM_{2.5}$) 和气态污染物, 因此也是室内空气环境重要的污染源。目前市场上蚊香种类已呈现多样化, 主

第一作者: 朱 春, 男, 1977 年生, 博士, 高级工程师, 主要从事室内空气质量方面的研究。[#] 通讯作者。

^{*} 国家高技术研究发展计划 (“863 计划”) 资助项目 (No. 2010AA064901)。

要包括盘式固体蚊香、液体电蚊香和片型电蚊香。各类蚊香中驱虫剂成分主要是除虫菊酯,传统的盘式固体蚊香中其质量分数为0.3%~0.4%。除虫菊酯对人体有慢性毒害作用,成年人暴露在0.01~1.98 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 质量浓度下0.5~5.0 h,会产生头痛、恶心、眩晕等症状;长期暴露在蚊香烟气中可引起儿童持续哮喘;对动物试验还发现,除虫菊酯对生殖系统有危害作用^[1-2]。

各类蚊香的驱虫剂成分相同,其区别主要在于驱虫剂的载体不同。盘式固体蚊香的载体是木屑类有机填料,此外还包括粘结剂、染料等慢性阻燃物质。电蚊香的载体则是碳氢化合物,此外还会加入一些氯仿、苯、乙醚等作为溶剂。由于各类蚊香的散发载体不同,即便在相同含量的除虫菊酯等驱虫剂成分条件下,不同驱虫剂载体的各类蚊香所散发颗粒物的粒径尺度和散发浓度均不相同,这些细微粒子通过呼吸进入人体组织器官的部位和含量也具有差异性。

国内关于蚊香类污染物试验研究中,以盘式固体蚊香测试为主,主要分析某房间通风条件下燃用蚊香的散发浓度和化学成分^{[3-5]、[6]34-37}。笔者利用自主研发的大型空气质量实验舱,通过有效控制舱内通风量,利用定释放浓度法(上升法),测试分析蚊香散发 $\text{PM}_{2.5}$ 及主要气态污染物的质量浓度,确定不同种类蚊香释放 $\text{PM}_{2.5}$ 的排放因子,同时分析蚊香散发总挥发性有机物(TVOC)、甲醛、苯类气态污染物排放因子,从而掌握蚊香释放 $\text{PM}_{2.5}$ 和主要气态污染物的排放特性。

1 实验方法与材料

1.1 空气质量实验舱

空气质量实验舱主要用于研究特定污染源的释放规律或验证模型,按舱体体积划分,可分为大尺度($>5 \text{ m}^3$)和小尺度($<5 \text{ m}^3$)两类。为研究各类蚊香 $\text{PM}_{2.5}$ 和气态污染物散发特性,本实验采用大型空气质量实验舱,实验舱体积 60 m^3 (长×宽×高为5 m×

4 m×3 m),可调节室内温度和湿度、入室新风及总风量等空气参数,以及调控室内气流组织形式等,舱内配置搅拌风扇,开启时面向壁面,以便于空气参数迅速混合均匀,测试原理见图1。

测试平台空气参数可调范围:(1)新风量/总风量 20~1 000 m^3/h ,精度 $\pm 3\%$;(2)温度 10~35 $^{\circ}\text{C}$,精度 $\pm 0.2 \text{ }^{\circ}\text{C}$;(3)相对湿度 30%~90%,精度 $\pm 3\%$;(4)送风方式为侧送、下送。

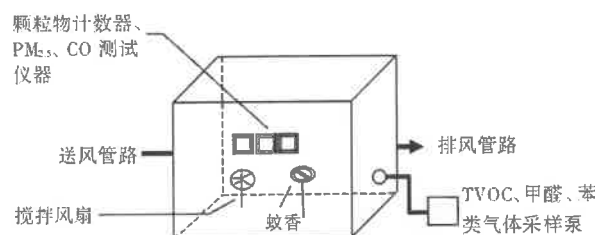


图1 空气质量实验舱示意图

Fig.1 Schematic of the air quality experimental cabin

1.2 测试仪器与方法

主要测试设备和仪器见表1。

1.2.1 $\text{PM}_{2.5}$ 计重浓度

采用气溶胶监测仪测定 $\text{PM}_{2.5}$ 计重浓度,采样流量1.4 L/min,测试分辨率 $\pm 0.002 \text{ mg}/\text{m}^3$ 。设置采样时间间隔30 s。测试前,在实验室内采用崂应2050D型空气采样器滤膜称重法与气溶胶监测仪进行测试比对,对仪器进行数据修正校核。

1.2.2 TVOC和苯类有机物

根据《室内环境和工作场所空气取样和通过吸附管/热吸/毛细气相色谱法分析挥发性有机成分》(ISO 16017-1),采用热解吸直接进样的气相色谱法测试实验舱内TVOC。利用SQC-1000采样泵采集实验舱内气体进入Tenax管,采样流量500 mL/min,并用Trace DSQ气相色谱/质谱联用仪测试分析TVOC,以及苯、甲苯、二甲苯等主要有机污染物。

1.2.3 甲醛

根据《公共场所空气中甲醛测定方法》(GB/T 18204.26—2000),利用酚试剂分光光度法测试实验舱内甲醛浓度,采样流量500 mL/min。

表1 实验测试平台及主要仪器

Table 1 The test platform and main instruments

名称	型号	测试内容	采样时频
大型空气质量实验舱平台	自制	污染物散发	
气溶胶监测仪	DUSTRAK II-8530	$\text{PM}_{2.5}$ 计重浓度	30 s
激光粒子计数器	AERO TRAK-9306-V2	0.3 μm 以上分级计数浓度	30 s
气相色谱/质谱联用仪	Trace DSQ	TVOC、苯系物	1 h以后
紫外分光光度计	Genesys II	甲醛	1 h以后
空气质量检测仪	yesAIR	CO 、 CO_2 、温度、湿度	15~30 min
电子天平	JT202N	质量	

1.2.4 CO 和 CO₂

利用空气质量检测仪检测实验舱内 CO、CO₂ 含量,同时测定室内温度、湿度。

1.3 通风量校准

应用直流通风方式,通过调节实验送风系统的风机频率和文丘里送风喷嘴数量,选定送风量。根据《公共场所室内新风量测定方法》(GB/T 18204.18—2000)中示踪气体法,利用 SF₆ 为示踪气体,采用浓度衰减法,选取室内 3 个典型测点,测试室内新风换气次数。根据现场实测, SF₆ 的浓度衰减见图 2。通风换气次数计算公式为:

$$N=(\ln c_0 - \ln c_t)/t \quad (1)$$

式中: N 为换气次数,次/h; c_0 为示踪气体初始质量浓度, mg/m³; c_t 为计算时间 t (h) 下的衰减质量浓度, mg/m³。

根据图 2, 实验舱内分别在舱体中部的同一竖杆上的 0.8、1.2、1.5 m 高度处选取测点, 3 个测点的衰减曲线有良好的重合性, 呈对数线性下降, 计算出室内换气次数为 (2.97±0.05) 次/h, 根据实验舱尺寸, 可得通风换气量为 178.3 m³/h。

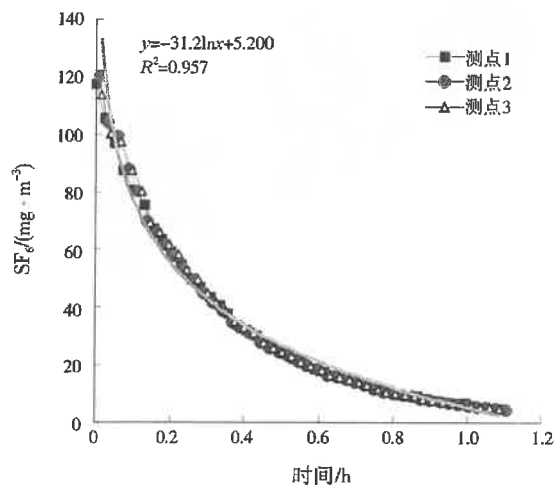


图 2 SF₆ 示踪气体浓度衰减曲线

Fig. 2 The decay curve of SF₆ trace gas concentration

1.4 蚊香选用

选择市场上常见的某品牌 3 种蚊香: 盘式固体蚊香、液体电蚊香和片型电蚊香, 驱虫剂成分均为除虫菊酯类。利用电子天平测定各类蚊香使用前后的质量, 并记录消耗时间, 计算释放速率, 结果见表 2。

表 2 蚊香散发污染物释放速率

Table 2 Release rate of mosquito-repellent

蚊香类型	释放速率/(mg·h ⁻¹)
盘式固体蚊香	2 210.0
液体电蚊香	104.3
片型电蚊香	57.1

2 测试结果

2.1 室外环境背景浓度测试

测试试验于 2013 年 7 月 8—12 日进行, 测试地点在上海市闵行区。对实验舱进行直流通风, 分别于 7 月 10 日上午和 7 月 12 日下午工作时段测试舱内 PM_{2.5}, 其背景质量浓度为 (86.5±4.7) μg/m³。同时测定其他污染物的背景浓度。

2.2 PM_{2.5} 散发浓度

在通风换气量为 178.3 m³/h 条件下, 在实验舱内分别燃用 3 种蚊香, 发现舱内颗粒物浓度迅速达到平衡稳定状态 (<5 min), 各类蚊香散发 PM_{2.5} 的浓度均值和标准差见表 3。

表 3 实验舱内蚊香 PM_{2.5} 散发浓度

Table 3 PM_{2.5} balanced concentrations of mosquito-repellent tested in the environmental cabin

蚊香类型	均值 (μg·m ⁻³)	标准差 (μg·m ⁻³)
盘式固体蚊香	158.6	2.2
液体电蚊香	93.6	1.1
片型电蚊香	101.3	3.4

2.3 气体污染物

以各类蚊香燃用 1 h 后实验舱内的 TVOC 和甲醛浓度作为典型气体污染物平衡浓度。此外分别测得 TVOC 中的主要苯类污染物 (包括苯、甲苯、乙苯和二甲苯) 以及 CO 的舱内平衡浓度。

表 4 气体污染物测试浓度

Table 4 Concentration of gaseous pollutants

种类	实验舱内平衡质量浓度/(μg·m ⁻³)			室外环境背景质量浓度 ¹⁾ (μg·m ⁻³)
	盘式固体蚊香	液体电蚊香	片型电蚊香	
TVOC	660	470	410	80
苯	4	1	2	
甲苯	10	8	9	
乙苯	7	6	7	
二甲苯	15	6	9	
甲醛	100	60	80	10
CO	5 190	0	0	0

注: ¹⁾ 室外环境的苯类污染物浓度低于仪器检测限, 忽略不计。

由表 4 可见, 各类蚊香散发 TVOC 中, 主要的苯类物质含量较低, 只占 TVOC 的 4.5%~6.5%。通过光谱分析发现, 盘式固体蚊香散发其他主要污染物有邻苯二甲酸二丁酯、十四烷和十二烷; 液体蚊香和片型电蚊香主要为邻苯二甲酸二丁酯、2,6-二叔丁基苯醌和 2-苯异丙醇。

3 污染物排放因子

3.1 排放因子计算方法

假设 3 种蚊香的污染物释放强度稳定, 采用定

释放浓度法,在换气次数一定条件下,测试实验舱内污染物平衡浓度,则可计算出各类污染物的排放因子,计算公式如下:

EF_i=(c_{i,b}-c_{i,0})×Q (2)

式中:EF_i为*i*类污染物排放因子,μg/h;c_{i,b}为第*i*类污染物在实验舱内一段时间后的平衡质量浓度,μg/m³;c_{i,0}为室外背景质量浓度,μg/m³;Q为通风换气量,m³/h。实验舱中使用蚊香假设为定浓度散发,本实验的通风换气次数约为3次/h。

3.2 污染物排放因子

由表5可见,盘式固体蚊香PM_{2.5}排放因子为12.9 mg/h,约为液体电蚊香的10倍,片型电蚊香的5倍。盘式固体蚊香TVOC排放因子也显著高于其他两种蚊香。3种蚊香的甲醛排放因子较苯类污染物大,其中盘式固体蚊香的甲醛排放因子最大,为16.0 mg/h。盘式固体蚊香、液体电蚊香、片型电蚊香的TVOC排放因子分别为103.4、69.5、58.8 mg/h,而它们的苯类污染物排放因子相当,且占TVOC排放因子的比例均较小。此外,盘式固体蚊香在燃烧过程中还散发CO,其排放因子达925.4 mg/h,其他两种蚊香未发现散发CO。

表5 各类污染物排放因子

Table 5 Pollutant emission factors for each type of mosquito-repellent mg/h

污染物	盘式固体蚊香	液体电蚊香	片型电蚊香
PM _{2.5}	12.9	1.3	2.6
TVOC	103.4	69.5	58.8
甲醛	16.0	8.9	12.5
苯	0.7	0.2	0.4
甲苯	1.8	1.4	1.6
乙苯	1.2	1.1	1.2
二甲苯	2.7	1.1	1.6
CO	925.4		

3.3 计数浓度谱分布

采用激光粒子计数器测定颗粒物数浓度,测试结果全部超过仪器量程(1.4×10⁸个/m³)。王海霞等^{[6]34-37}研究了盘式固体蚊香燃烧产生的粒径为14~723 nm的颗粒物浓度分布情况,笔者利用对数正态分布模型对该研究结果进行数据拟合,结果见图3。

对数正态分布模型表达式为:

$$f(D_p, D_{pi}, N_i, \sigma_i) = \sum_{i=1}^n \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \lg \sigma_i} \times \exp \left[-\frac{(\lg D_p - \lg D_{pi})^2}{2(\lg \sigma_i)^2} \right] \quad (3)$$

式中:D_p为排放颗粒物粒径,nm;D_{pi}为单模态峰值粒径,nm;σ_i为不同模态下对数正态分布的分散度,或称几何标准差(GSD);N_i为对应模态下峰值粒

的数浓度分布密度。

由图3可见,盘式固体蚊香释放颗粒物数浓度谱呈单峰对数正态分布,根据室内蚊香燃烧结束后0、30、60 min的颗粒物数浓度谱3条拟合曲线发现计数中位径(CMD)均为90 nm,GSD均为1.65,可见盘式固体蚊香散发颗粒物数浓度分布具有良好的自模性。

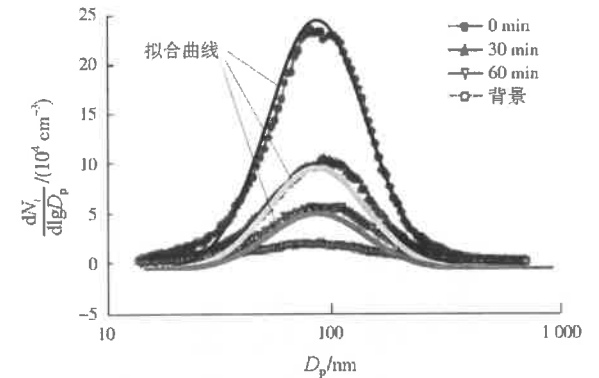


图3 盘式固体蚊香散发颗粒物数浓度谱拟合曲线
Fig. 3 Fitting curves of mosquito repellent coil particle size distribution

为计算蚊香类散发颗粒物的数浓度排放因子,本文假设蚊香散发颗粒物主要为有机碳类,根据文献^[7],设定颗粒物密度为1.4 g/cm³,各粒径谱颗粒团为均质球形。根据盘式固体蚊香PM_{2.5}质量浓度排放因子为12.9 mg/h,利用对数正态分布模型计算得到颗粒物数浓度排放因子为6.53×10¹²个/h;在相同假设下,计算得到液体电蚊香和片型电蚊香数浓度排放因子分别为6.58×10¹¹、1.32×10¹²个/h。应用单模态颗粒物对数正态分布模型,得到各种蚊香颗粒物数浓度排放因子分布图(见图4)。

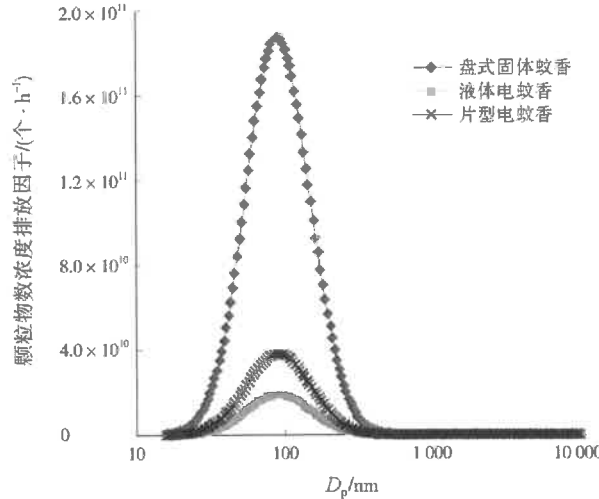


图4 各种蚊香颗粒物数浓度排放因子分布
Fig. 4 The emission factors of PM number concentration for each type of mosquito-repellents

为讨论蚊香散发各粒径段颗粒物的排放水平,分5个粒径段给出蚊香散发颗粒物的计数和计重百分比(见表6)。由表6可见,数量上,蚊香主要散发 $50\text{ nm}<D_p\leq 300\text{ nm}$ 的积聚态颗粒,占85%以上,其次为 $D_p\leq 50\text{ nm}$ 的核态颗粒物,更大的颗粒物散发数量可以忽略;质量上,仍以 $50\text{ nm}<D_p\leq 300\text{ nm}$ 的积聚态颗粒为主,占80%以上,其次为 $300\text{ nm}<D_p\leq 500\text{ nm}$ 的较大颗粒物,核态颗粒物和 $>500\text{ nm}$ 的颗粒物比重很小。

4 实例分析

应用上面得到的3种蚊香污染物排放因子,判

断一定通风条件下房间使用不同蚊香的室内污染物浓度水平。设定一般住宅房间体积为 27 m^3 ,房间相对封闭,换气次数为2.0次/h,计算使用不同蚊香时房间内人群污染物暴露浓度,结果见表7。

表6 盘式固体蚊香散发不同粒径颗粒物百分比
Table 6 Proportions of different size PM emitted from mosquito-repellent coil

粒径范围/nm	计数百分比/%	计重百分比/%
15~50	12.40	0.40
50~100	46.00	9.40
100~300	40.90	72.70
300~500	0.70	14.90
500~2 500	0.03	2.61

表7 典型房间下使用各类蚊香的污染物浓度与标准限值

Table 7 Concentration of pollutants emitted from mosquito repellent and the standard value

项目	盘式固体蚊香	液体电蚊香	片型电蚊香	标准限值
$\text{PM}_{2.5}/(\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3})$	114.3	11.5	23.0	75 ¹⁾
计数浓度 ⁴⁾ /(个 $\cdot\text{m}^{-3}$)	1.17×10^{14}	1.25×10^{13}	2.43×10^{13}	
$\text{TVOC}/(\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3})$	1 914.8	1 287.0	1 088.9	600 ²⁾
甲醛/ $(\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3})$	296.3	164.8	231.5	100 ³⁾
$\text{CO}/(\text{mg}\cdot\text{m}^{-3})$	16.7			10 ³⁾

注:1)为《环境空气质量标准》(GB 3095—2012)中24 h平均浓度二级标准限值;2)为《室内空气质量标准》(GB/T 18883—2002)8 h均值限值;3)为GB/T 18883—2002中1 h均值限值;4)采用对数正态分布模型计算所得。

由表7可见,房间在正常通风条件(换气次数2.0次/h)下使用各类蚊香时散发的TVOC浓度将超标1.8~3.2倍,甲醛超标1.6~3.0倍;盘式固体蚊香散发的 $\text{PM}_{2.5}$ 超标1.5倍,CO超标1.7倍。封闭环境下,通风条件很差(换气次数 <0.5 次/h),所有污染物浓度将增大4倍,污染更加严重。由此可见,人群不应过久停留在蚊香使用环境中,尤其是盘式固体蚊香,人群在睡眠期间使用蚊香时应注意及时通风稀释,避免长时间处于封闭的高浓度污染环境中。

5 结 语

蚊香是夏季家用驱蚊的常用产品,也是室内污染物的散发源之一。通过实验平台测定盘式固体蚊香、液体电蚊香、片型电蚊香的污染物排放因子,发现3类蚊香中盘式固体蚊香释放颗粒物、TVOC、甲醛水平显著大于其他两类蚊香,TVOC中的苯系污染物散发量较小,3类蚊香散发水平相当。此外,盘式固体蚊香还散发CO污染物,对房间空气质量影响较大。通过研究评价典型房间在2.0次/h换气次数下,使用蚊香释放污染物对室内空气质量的影响效应,发现其中盘式固体蚊香散发 $\text{PM}_{2.5}$ 、TVOC和甲醛类气态污染物对室内环境污染影响最大,需要

通过加强通风换气改善室内环境。

参考文献:

- [1] LIU Weili, ZHANG Junfeng, HASHIM J H, et al. Mosquito coil emissions and health implications[J]. Environmental Health Perspectives, 2003, 111(12): 1454-1460.
- [2] LUKWA N, CHANDIWANA S K. Efficacy of mosquito coils containing 0.3% and 0.4% pyrethrins against *An. gambiae* sensu lato mosquitoes[J]. The Central African Journal of Medicine, 1998, 44(4): 104-107.
- [3] 方圆, 茅清希, 邱济夫. 盘式蚊香对室内空气品质的影响[J]. 建筑热能通风空调, 2006, 25(1): 80-83.
- [4] 陆宁霞, 魏叶, 陈文森, 等. 两种类型蚊香烟雾对室内空气污染的研究[J]. 江苏预防医学, 2004, 15(3): 28-31.
- [5] 周宏仓, 宋园园, 陆建刚, 等. 蚊香燃烧过程中多环芳烃的排放特征[J]. 环境化学, 2009, 28(6): 864-868.
- [6] 王海霞, 陈新华, 李海洋. 空气及蚊香燃烧产生的亚微米气溶胶的粒径谱[J]. 环境科学与技术, 2007, 30(10): 10-13.
- [7] HAND J L, KRELDENWEIS S M, SHERMAN D E, et al. Aerosol size distributions and visibility estimates during the Big Bend regional aerosol and visibility observational (BRAVO) study[J]. Atmospheric Environment, 2002, 36(32): 5043-5055.

编辑:陈泽军 (修改稿收到日期:2013-12-24)

