УДК 551.511.61

## В.Ф. Рапута, А.П. Садовский, С.Е. Олькин, В.В. Коковкин, С.В. Морозов, А.И. Вялков

# ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ И ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ВЫБРОСОВ ПАУ УГОЛЬНЫМИ КОТЕЛЬНЫМИ И ЭЛЕКТРОСТАНЦИЯМИ

ИВМ и МГ СО РАН, ГНЦ ВБ «Вектор», НИИ аэробиологии, Новосибирская обл., ИНХ СО РАН, ИОХ СО РАН, г. Новосибирск

Поступила в редакцию 3.03.99 г.

Принята к печати 30.03.99 г.

На основе данных маршрутных снегосъемок проводится восстановление полей удельных концентраций бенз(а)пирена в районе Беловской ГРЭС и Новосибирского завода конденсаторов. Анализируются вопросы оптимального размещения точек пробоотбора. Приведены оценки относительных скоростей аэрозольного осаждения различных компонентов ПАУ и их вклада в загрязнение снежного покрова. Установлена связь относительных молекулярных весов компонентов ПАУ со скоростью их аэрозольного оседания.

#### Введение

Процессы, связанные со сжиганием или термической обработкой органических веществ, сопровождаются выбросами мутагенных и канцерогенных соединений. Значительную часть всех канцерогенных соединений составляют полициклические ароматические углеводороды (ПАУ). Прямое измерение выбросов ПАУ в атмосферу и математическое моделирование полей загрязнения представляют собой сложную задачу. Это обусловлено значительными неопределенностями в задании мощности эмиссии источников ПАУ, описании процессов физико-химических трансформаций газовых и аэрозольных сред, текущих метеоусловий [1–4].

Образование и деградация ПАУ при сжигании являются конкурирующими процессами, интенсивность протекания которых определяется температурным режимом, избытком воздуха в топке, рециркуляцией дымовых газов и другими факторами, поэтому оценка ПАУ расчетным путем вследствие наличия многих влияющих факторов различной интенсивности и направленности весьма приблизительна. Загрязнение атмосферного воздуха ПАУ зависит и от эффективности улавливания их при золоочистке выбросов.

Индикатором для ПАУ принято считать бенз(а)пирен (БП). Он весьма стоек и широко распространен в окружающей среде. Низкая степень улавливания БП при золоочистке обусловлена его адсорбцией на мелкодисперсных фракциях летучей золы [2].

На основе данных маршрутных снегосъемок, проведенных авторами статьи в районе Беловской ГРЭС и Новосибирского завода конденсаторов (НЗК), обсуждаются возможности восстановления картины загрязнения снежного покрова, оценки суммарного выброса ПАУ. В статье также рассматриваются вопросы размещения точек пробоотбора с использованием математических методов планирования эксперимента и с учетом характера местности, системы дорог, климатических характеристик ветра.

Основное внимание в работе уделено восстановлению загрязнения БП снегового покрова по данным наблюдений. Несмотря на значительное различие выбранных объектов, результаты моделирования показали подобие полей удельного содержания БП в снеге. Соответствие прогнозируемого и измеренного содержания БП в контрольных точках оказалось достаточно высоким. Показано влияние выбора плана наблюдений на точность восстановления полей загрязнения. На примере котельной НЗК проведено оценивание относительного содержания и скоростей аэрозольного оседания других компонентов ПАУ. Обсуждаются возможности построения количественных зависимостей.

## 1. Восстановление аэрозольного загрязнения снега по данным наблюдений

Для описания картины длительного загрязнения местности аэрозольными выбросами примеси в атмосферу в работах [5, 6] была построена следующая регрессионная зависимость:

$$p(r, \varphi, \boldsymbol{\theta}) = \theta_1 g(\varphi) r^{\theta_2} e^{-2r_m/r}, \tag{1}$$

где  $p(r, \varphi, \theta)$  — удельное содержание примеси в снеге (почве, воздухе);  $r, \varphi$  — полярные координаты расчетной точки с началом в месте расположения источника;  $g(\varphi)$  — вероятность противоположного  $\varphi$  направления ветра;  $r_m$  — точка максимальной приземной концентрации для невесомой примеси, выбрасываемой из заданного точечного источника;  $\theta = (\theta_1, \theta_2)$  — вектор неизвестных параметров.

Регрессионная зависимость (1) получена в предположении гипотезы узкого ( $10-15^{\circ}$ ) факела. Ее апробация на ряде химических и металлургических предприятий показала неплохое согласие с экспериментальными данными [5, 6].

Если ограничиться рассмотрением среднегодовых или среднезимних значений скорости ветра, температуры воздуха и характерного для этих местностей турбулентного обмена, то согласно [7] можно оценить величину  $r_m$  по геометрическим характеристикам источников и параметрам выбрасываемой газовоздушной смеси. В частности, для Беловской

ГРЭС величина  $r_m$  приблизительно составляет 3,5 км, а для котельной НЗК около 0,8 км.

Оценка вектора неизвестных параметров  $\theta$  может быть найдена по данным удельного содержания примеси в определенных точках местности, например методом наименьших квадратов [5].

Компонента  $\theta_1$  пропорциональна мощности эмиссии и имеет достаточно сложную структуру, зависящую от климатических характеристик скорости ветра, коэффициентов турбулентного обмена, скоростей оседания аэрозольной примеси. Другая компонента вектора  $\theta$  имеет вид

$$\theta_2 = -2 - w/[k_1(n+1)],\tag{2}$$

где w — скорость седиментации аэрозольных частиц;  $k_1$  — коэффициент вертикальной турбулентной диффузии на высоте 1 м; n — показатель степени в аппроксимации горизонтальной компоненты скорости ветра степенным профилем. Случай  $\theta_2 = -2$  или соответственно w = 0 отвечает случаю невесомой примеси, т.е.  $\theta_2 \le -2$ .

## 2. Планирование измерений при проведении маршрутных снегосъемок

В конце зимнего сезона 1997/98 гг. авторами статьи проводился отбор проб снега в окрестностях Беловской ГРЭС Кемеровской области и котельной НЗК в г. Новосибирске. На обоих объектах в качестве топлива используется каменный уголь.

С целью оптимизации размещения точек отбора проб был проведен предварительный анализ картографического материала о рельефе местности, системе дорог, размещении застройки, лесных насаждениях, состоянии снежного покрова. С учетом регрессионной зависимости (1), данных об источниках ПАУ, среднезимней повторяемости скоростей и направлений ветра были численно промоделированы положения наиболее информативных точек пробоотбора. Предпочтительными оказались маршруты, ориентированные на север и северо-восток, в соответствии с самой высокой повторяемостью для рассматриваемых территорий ветров южного и юго-западного направлений.

Оптимальные планы состоят из двух точек, которые, например, в случае слабо оседающей примеси следует располагать примерно на 0.5 и  $1.5r_m$  от источника [8]. При значительной скорости оседания выбрасываемой примеси численное построение оптимального плана может быть обеспечено при наличии априорных сведений о векторе параметров  $\theta$ . В противном случае локально оптимальный план может быть получен в результате применения поэтапной процедуры последовательного анализа и планирования наблюдений [8, 9].

## а) Беловская ГРЭС

Эта тепловая электростанция расположена в местности со сравнительно пологим рельефом. Выброс примесей, полученных в результате сжигания местных углей, производится из трех 150-метровых труб, диаметр которых составляет 6 м, со скоростью выхода газовоздушной смеси около 15 м/с. Состояние снежного покрова в момент отбора было критическим, однако условия местности и технические возможности позволили провести снегосъемку по маршруту на северо-восток с

учетом требований оптимального размещения и количества точек отбора, а также обеспечить дополнительный запас точек для контроля восстановления поля концентрации. Схема отбора приведена на рис. 1. Характеристики проб и результаты химического анализа содержания бенз(а)пирена в снеге содержатся в табл. 1.

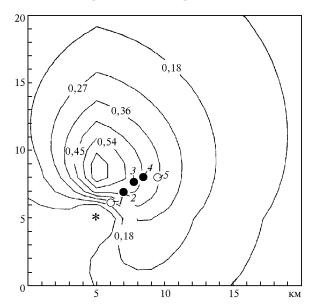


Рис. 1. Восстановленное поле удельного содержания (мкг/л) бенз(а)пирена в снеге в окрестности Беловской ГРЭС: # – положение источника; ○, ● – точки наблюдения

#### б) Котельная НЗК

Промплощадка завода расположена в левобережной части Советского района г. Новосибирска. С юга и запада к ней примыкают жилая застройка и промышленные предприятия. Местность к северу от промплощадки ровная, свободна от строений и в незначительной степени покрыта растительностью. Снежный покров на момент отбора (конец февраля) был довольно чистым. В окрестности котельной не расположено других достаточно мощных источников загрязнения атмосферы. Выброс примеси производится из двух близко расположенных труб высотой 40–50 м.

Поскольку южные и юго-западные ветры являются преобладающими в зимнее время для данной местности, то с учетом вышесказанного был выбран маршрут к северу от котельной. Проходящая неподалеку с юга на север автотрасса существенно облегчила размещение точек, проведение в них отбора, определение расстояний до труб. Результаты снегосъемки приведены в табл. 1.

### 3. Численное моделирование

Полученные экспериментальные данные позволяют провести их интерпретацию средствами математического моделирования. Использование зависимости (1) и данных наблюдений в табл. 1 дают возможность осуществить обоснованный выбор опорных точек — планов наблюдений для восстановления полей загрязнения снежного покрова бенз(а)пиреном в окрестностях Беловской ГРЭС и котельной НЗК.

Номер точки	Расстояние, км	Концентрация, нг/л	Вес пробы, г	Площадь отбора, дм <sup>2</sup>
	Γ	 РЭС, северо-восточное на	правление	
1	1,5	270	1490	1
2	2,5	680	860	1
3	3,5	710	1080	1
4	4,25	360	1241	1
5	5,5	570	817	2
	К	отельная НЗК, северное на	аправление	
1	0,3	2,4	1120	1,45
2	0,45	10,2	1330	1,45
3	0,6	15	1120	1,45
4	1,15	11,1	1390	1,45
5	1.85	6.9	1210	1.45

3,9

Загрязнение снега бенз(а)пиреном Беловской ГРЭС и котельной НЗК

На рис. 1, 2 приведены результаты восстановления удельного содержания БП в направлении выбранных маршрутов. Сравнение наблюдений с расчетом показывает их хорошее соответствие, которое подтверждает адекватность выбранной модели протекающим процессам длительного загрязнения и достаточно высокую точность химических анализов проб снега.

2,85

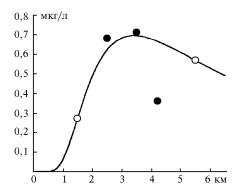


Рис. 2. Концентрация бенз(а)пирена в снеге к северу-востоку от Беловской ГРЭС: — – расчет;  $\bullet$ ,  $\bigcirc$  – данные наблюдений в контрольных и опорных точках

Степень влияния выбора плана наблюдений на качество оценивания представлена на рис. 3.

Несмотря на значительные различия параметров источников, объемов и режимов сжигания угля ГРЭС и котельной, оценки параметра  $\theta_2$  оказались близкими и составили 2,05 и 2,21 соответственно. Это означает, что основная масса БП сосредоточена на мелких слабо оседающих аэрозольных частицах. Следует также отметить, что кривые на рис. 2 и 3 подобны друг другу при переходе к безразмерному расстоянию  $\xi = r/r_m$ .

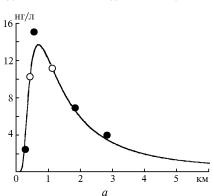
Представленное на рис. 1 поле удельной концентрации БП и данные табл. 1 позволяют найти суммарный выброс БП для ГРЭС за зимний период. Интегрируя по области  $50 \times 50$  км, приходим к оценке 7,7 кг.

В табл. 2 приведены оценки вектора параметров  $\theta$  для пятнадцати компонентов ПАУ, полученных по результатам снегосъемки в районе котельной НЗК. С учетом соотношения (2) анализ табл. 2 показывает значи-

тельную дифференциацию в скоростях оседания различных ПАУ. Например, скорости оседания частиц, содержащих нафталин, примерно в 20 раз выше, чем для бенз(а)пирена. Из табл. 2 видно, что существует прямая связь между относительной молекулярной массой компонентов ПАУ и эффективной скоростью оседания. По достаточно близким скоростям оседания их условно можно разбить на следующие группы в зависимости от молекулярной массы: 228–276, 178–202, 128–166. Более детальная градация и построение эмпирических зависимостей на данном этапе исследований нецелесообразны.

1,45

730



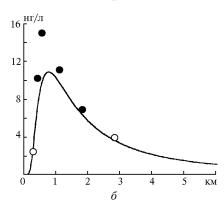


Рис. 3. Рассчитанная и измеренная концентрации бенз(а)пирена в снеге к северу от котельной НЗК при относительно оптимальном (a) и неоптимальном ( $\delta$ ) размещении опорных точек

Оценка другой составляющей  $\theta_1$  также представляет определенный интерес, поскольку дает возможность устано-

вить связь между относительными суммарными выбросами котельной НЗК компонентов ПАУ.

Таблица 2

### Оценка параметров регрессии для различных компонентов ПАУ

Вещество	Оценки п	Относительная	
	$\theta_1$	$\theta_2$	молекулярная масса
Нафталин	1301,2	-6,35	128
Аценафтилен	391,9	-6,25	152
Аценафтен	112,0	-5,20	154
Флуорен	982,3	-4,48	166
Антрацен	225,1	-3,47	178
Фенантрен	3238,4	-3,32	178
Пирен	962,7	-2,66	202
Флуорантен	1999,5	-2,63	202
Бенз(а)антрацен	90,6	-2,39	228
Хризен	175,8	-2,24	228
Бенз(б)флуорантен	118,4	-2,30	252
Бенз(а)пирен	60,9	-2,21	252
Перилен	14,0	-2,00	252
Дибенза(ah)антрацен	9,2	-2,12	278
Бенз(ghi)перилен	77,2	-2,00	276

#### Заключение

Проведенные исследования позволяют сделать следующие выводы.

Модели восстановления на планах, близких к оптимальным, вполне адекватно описывают загрязнение БП снегового покрова в широком диапазоне расстояний. Полученные кривые распределения удельных концентраций БП для ГРЭС и котельной НЗК подобны друг другу при переходе к безразмерному расстоянию.

Численный анализ данных наблюдений для других компонентов ПАУ позволяет установить количественную связь между скоростями аэрозольного оседания и относительным молекулярным весом, оценить их относительный выброс из источника в течение длительного времени. Предлагаемый метод оценивания относительного выброса компонентов ПАУ может быть использован для идентификации источников, а также эффективности сжигания органического топлива.

Наличие компонентов ПАУ с большими скоростями оседания требует дополнительной корректировки

моделей восстановления и размещения систем наблюдения

- 1. *Макаров В.Н., Самсонов Ю.Н., Королев В.В., Рапута В.Ф.* // Оптика атмосферы и океана. 1996. Т. 9. N 6. C. 837–842.
- 2. *Болтнева Л.М., Брюханов П.А., Назаров И.М. и др. //* Дальний атмосферный перенос загрязняющих веществ. М.: Гидрометео-издат, 1988. С. 143–149.
- 3. *Брюханов П.А.* // Дальний атмосферный перенос загрязняющих веществ. М.: Гидрометеоиздат, 1988. С. 33–38.
- 4. *Беляев С.П., Бесчастнов С.П., Хомушку Г.М. и др.* // Метеорология и гидрология. 1997. N 12. C. 54–62.
- 5. *Рапута В.Ф., Садовский А.П., Олькин С.Е.* // Метеорология и гидрология. 1997. N 2. C. 33–41.
- 6. *Рапута В.Ф., Садовский А.П., Олькин С.Е.* // Оптика атмосферы и океана. 1997. Т. 10. N 6. C. 616–622.
- 7. *Берлянд М.Е.* Современные проблемы атмосферной диффузии и загрязнения атмосферы. Л.: Гидрометеоиздат, 1975. 448 с.
- 8. Крылова А.И., Рапута В.Ф., Суторихин И.А. // Метеорология и гидрология. 1993. N 5. C. 5–13.
- 9. Федоров В.В. Теория оптимального эксперимента. М.: Наука, 1971. 312 с.

V.F. Raputa, A.P. Sadovskii, S.E. Olkin, V.V. Kokovkin, S.V. Morozov, A.I. Vyalkov. Experimental and Theoretical Investigation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Pollution by Coal Boiler-Houses and Electric Power Stations.

The reconstruction of benz[a]piren specific concentration levels on the basis of snow field (area) measurements along a path near electric power station in Belovo (Kuzbass region) and capacitor plant in Novosibirsk was carried out. The problem of optimal distribution of sampling points is analyzed. Relative velocities of aerosol deposition of different polycyclic aromatic hydrocarbon derivatives (PAH) and their contribution to the snow contamination are given. The relation between relative molecular weights of PAH and the velocities of aerosol deposition are discussed.