# 水汽在燃煤 PM2.5 表面异质

## 核化特性数值预测

凡凤仙,杨林军,袁竹林,颜金培 (东南大学洁净煤发电及燃烧技术教育部重点实验室,江苏南京 210096)

摘要:根据 Fletcher 经典异质核化理论建立数值实验平台,将水汽在不可溶微粒表面异质核化临界过饱和度模 拟结果与文献中实验结果进行了对比,二者符合较好。在此基础上,结合燃煤 PM2.5物化性质及实测的表面张力 与接触角数据,数值预测了水汽及润湿剂溶液蒸气在燃煤 PM2.5表面异质核化晶核形成自由能、临界晶核半径、 成核速率、临界饱和度。结果表明,添加润湿剂能降低临界晶核形成自由能,减小临界晶核半径,使成核速率 急剧增加,成核临界饱和度显著降低,极大地改善了水汽的核化凝结能力,但不同润湿剂的作用效果不同,所 选用的 5 种润湿剂中,以 SDS 与 Silanol w22 效果最佳。

关键词:燃煤 PM<sub>2.5</sub>; 润湿剂; Fletcher 异质核化理论;核化特性
中图分类号: X 51
文献标识码: A
文章编号: 0438-1157 (2007) 10-2561-06

## Numerical prediction of water vapor nucleation behavior on PM<sub>2.5</sub> from coal combustion

### FAN Fengxian, YANG Linjun, YUAN Zhulin, YAN Jinpei

(Key Laboratory of Clean Coal Power Generation and Combustion Technology of the Ministry of Education, Southeast University, Nanjing 210096, Jiangsu, China)

Abstract: A numerical experiment platform was established according to Fletcher's classical heterogeneous nucleation theory, and the critical saturation of water vapor nucleation on fine particles was simulated. The simulation results were compared with experiment results from literature. It was found that the simulated critical saturation agreed well with experiments. Based on the above calculation, the free energy of embryo formation, critical embryo radius, nucleation rate, and the critical saturation of water vapor (with and without wetting agent vapor) nucleation on  $PM_{2.5}$  from coal combustion were numerically predicted, combined with the physical and chemical characteristics of  $PM_{2.5}$  from coal combustion as well as the values of contact angle and surface tension tested by experiments. The results showed that the presence of wetting agent in water vapor could lead to lower free energy of embryo formation and smaller critical saturation of water vapor to decrease remarkably. Thus, with wetting agent in water vapor, the nucleation and condensation capabilities of water vapor were greatly enhanced, but the effects of the five wetting agents used were different, among them SDS and Silanol w22 were desirable choices.

**Key words:** PM<sub>2.5</sub> from coal combustion; wetting agent; Fletcher heterogeneous nucleation theory; nucleation behavior

Received date: 2006-12-19.

**Corresponding author:** FAN Fengxian, PhD candidate. **E-mail:** fanfengxian@tom.com

**Foundation item:** supported by the National Basic Research Program of China (2002CB211604) and the National Natural Science Foundation of China (20576020).

<sup>2006-12-19</sup> 收到初稿, 2007-01-29 收到修改稿。

联系人及第一作者:凡凤仙 (1982-),女,博士研究生。

**基金项目:** 国家重点基础研究发展计划项目 (2002CB211604); 国家自然科学基金项目(20576020)。

引言

2562

PM<sub>2.5</sub>是指空气动力学直径≤2.5 μm 的可吸入 颗粒物,易于富集空气中的有毒重金属、酸性氧化 物、有机污染物、细菌与病毒,且能通过呼吸系统 到达肺泡,小于 0.1 μm 的颗粒物还可通过肺间 质,随血液循环到达其他器官,导致心、肺和血管 疾病,对人体健康造成严重危害[1-4]。燃烧过程是 PM2.5的主要来源之一,由于其体积小、质量轻、 数量多,常规除尘设备的脱除效率很低。利用蒸汽 相变促进 PM<sub>2.5</sub>凝并长大成较大颗粒后加以脱除是 一条重要的技术途径,其机理是:在过饱和蒸汽环 境中, 蒸汽以 PM25为凝结核, 通过蒸汽的冷凝作 用使颗粒质量增加、粒度增大,从而使颗粒易受惯 性碰撞而捕集<sup>[5]</sup>。蒸汽在 PM<sub>2.5</sub>表面凝结首先经历 异质核化过程,在颗粒上生成液体晶核,晶核在适 宜的条件下长大成液滴,其中异质核化特性对蒸汽 相变效果具有决定性作用,因此,研究蒸汽在燃烧 源 PM2 表面的核化特性是非常必要的。

国内外有关蒸汽异质核化的理论模型最早发展 起来的是 Fletcher 经典异质核化理论<sup>[6-7]</sup>。虽然 Fletcher 理论在处理异质核化时,成核速率表达式 中包含动能系数这一不确定的值,用宏观参数接触 角描述核化物质与固体微粒之间的相互作用是近似 的,但它仍是目前预测异质核化特性的最实用的方 法。Fletcher 理论中,水汽饱和度的变化对成核特 性有重要影响,使得成核动能系数的变化对成核特 性的影响变得不明显。吸附理论<sup>[8-9]</sup>为避免使用不 确定的动能系数,把蒸汽核化凝结当作吸附过程处 理,得到的成核临界饱和度与 Fletcher 理论预测值 的差别并不显著。密度函数理论<sup>[10]</sup>与分子动力学 理论<sup>[11]</sup>试图避免使用宏观参数接触角,从微观分 子间作用的角度来描述异质核化,但由于分子间相 互作用的复杂性,这两种理论的应用受到限制。

目前,有关蒸汽在颗粒物上异质核化特性的研究主要针对气溶胶颗粒及单一成分微粒<sup>[12-19]</sup>,直接以过饱和水汽在燃烧源 PM<sub>2.5</sub>上的核化特性为对象进行的研究还未涉及。燃烧源 PM<sub>2.5</sub>的物化性质和气溶胶颗粒存在较大差别,并且不同燃烧源 (燃煤、油、垃圾)产生的颗粒物的成分、形态也有差别,不同燃烧源 PM<sub>2.5</sub>的异质核化特性有待研究。

Seames<sup>[20]</sup>对粉煤飞灰颗粒的研究发现飞灰粒 径呈三模态分布:超微米区飞灰多为表面光滑的球 形颗粒;"中间模态"细粒子区飞灰中位粒径接近 2 µm,形状不规则,比表面积较大;亚微米区飞 灰呈球形。郭欣等<sup>[21]</sup>对某 300MW 燃煤电站锅炉 电除尘器前后的飞灰进行取样研究发现,燃煤电厂 电除尘后飞灰粒径较细,飞灰类型简单,大多数是 圆球或圆形的颗粒,而且这些圆球是无孔的,表面 较光滑,飞灰细粒子中较多的是金属氧化物、硅铝 氧化物和黏土矿物。颜金培等[22] 对燃煤电厂颗粒 形态和组分分析结果也表明, 燃煤颗粒多呈规则的 球形结构,球体表面光滑无孔,为难溶于水且吸湿 性较差的硅铝质矿物颗粒。由于蒸汽在不规则颗粒 表面的异质核化机理极其复杂,目前对不规则颗粒 的成核现象和成核特性掌握不够,理论研究遇到困 难。燃煤 PM25 中存在大量的难溶光滑球形颗粒, 因此采用数值模拟揭示水汽在光滑球形 PM25表面 的核化特性有着重要意义。基于此,本文采用 Fletcher 经典异质核化理论对水汽及润湿剂溶液蒸 气在光滑球形燃煤 PM2.5上的核化特性进行数值预 测,获得了添加不同润湿剂对晶核形成自由能、临 界晶核半径、成核速率和临界饱和度的影响规律。

# 蒸汽在燃煤 PM<sub>2.5</sub>表面的异质核化 模型

利用 Fletcher 经典异质核化理论对过饱和水汽 在光滑球形燃煤 PM<sub>2.5</sub>表面异质核化特性进行研究 探讨,假设水汽在颗粒上凝结形成的液滴晶核是球 形的一部分。Fletcher 理论的物理模型如图 1 所示。



图 1 蒸汽在不可溶颗粒表面成核过程示意图 Fig. 1 Schematic diagram of vapor nucleation on insoluble particle 1-vapor, 2-liquid embryo, 3-solid particle

水滴停留在颗粒表面时,固液气界面平衡满足 Young 方程

$$m = \cos\theta = (\sigma_{13} - \sigma_{23})/\sigma_{12} \tag{1}$$

式中  $\sigma_{12}$ 、 $\sigma_{23}$ 和  $\sigma_{13}$ 分别为气液、液固、气固的界面自由能, N・m<sup>-1</sup>;  $\theta$ 为接触角, (°); m为 $\theta$ 的 余弦值,  $-1 \leq m \leq 1$ 。

等温、等压条件下,蒸汽在颗粒表面凝结生成 一个液滴晶核,系统 Gibbs 自由能的改变 ΔG 为

$$\Delta G = \Delta G_{\rm v} V_2 + \sigma_{12} S_{12} + (\sigma_{23} - \sigma_{13}) S_{23} \tag{2}$$

式中  $\Delta G_v$ 为单位体积晶核在气相和液相时的自由 能差,J・m<sup>-3</sup>;  $V_2$  为晶核的体积,m<sup>3</sup>;  $S_{12}$ 和  $S_{23}$ 分别为气液、液固界面面积,m<sup>2</sup>。 $S_{12}$ 、 $S_{23}$ 、 $V_2$  计 算如下

$$S_{12} = 2\pi r^2 \left(1 - \cos\psi\right) \tag{3}$$

$$S_{23} = 2\pi R^2 (1 - \cos\phi) \tag{4}$$

$$V_{2} = \frac{1}{3}\pi r^{3} \left(2 - 3\cos\phi + \cos^{3}\phi\right) - \frac{1}{3}\pi R^{3} \left(2 - 3\cos\phi + \cos^{3}\phi\right)$$
(5)

式中 r 为液体晶核半径, m; R 为颗粒半径, m;  $\omega = \phi$  见图 1。

$$\cos\psi = -(r - R\cos\theta)/d = -(r - Rm)/d$$
 (6)

$$\cos\phi = (R - r\cos\theta)/d = (R - rm)/d$$
(7)

其中

$$d = (R^2 + r^2 - 2rRm)^{1/2}$$
(8)

令
$$\left(\frac{\partial G}{\partial r}\right)^* = 0$$
,得临界晶核半径  $r^*$   
 $r^* = -2\sigma_{12}/\Delta G_v$  (9)

将式(9)代入式(2),得到临界晶核形成自由能 ΔG\* 为

$$\Delta G^* = \frac{8\pi\sigma_{12}^3}{3(\Delta G_v)^2} f(m, x)$$
(10)

其中

$$f(m,x) = 1 + \left(\frac{1-mx}{g}\right)^3 + x^3 \left[2 - 3\left(\frac{x-m}{g}\right) + \left(\frac{x-m}{g}\right)^3\right] + 3mx^2 \left(\frac{x-m}{g} - 1\right)$$
(11)

$$g = (1 + x^2 - 2mx)^{1/2}$$
(12)

$$x = R/r^* \tag{13}$$

假设形成的晶核不可压缩,则有 ΔG<sub>v</sub><sup>[6-7]</sup>为

$$\Delta G_{\rm v} = -\frac{kT}{V_{\rm L}} \ln S \tag{14}$$

式中 *k*为 Boltzmann 常数, 1.38×10<sup>-23</sup> J•K<sup>-1</sup>; *T*为水汽温度, K; V<sub>L</sub>为一个水分子的体积, 2.99×10<sup>-29</sup> m<sup>3</sup>; S为蒸汽饱和度。

根据统计物理学的 Boltzmann 分布,得到成核 速率 J<sup>[7]</sup>为

$$I = 4\pi R^2 K_c \exp\left(-\frac{\Delta G^*}{kT}\right) \tag{15}$$

式中  $K_c$ 为动力常数,为一不确定的值,数量级 在  $10^{28} \sim 10^{31} \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 之间,本模拟计算中取  $K_c = 10^{29} \text{ m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

## 2 计算结果分析

利用 C 语言编程,建立水汽在光滑球形不溶 颗粒表面异质核化数值实验平台进行数值实验。其 中,计算温度 T=298 K,对临界饱和度的求解采 用逐次逼近的计算方法。

### 2.1 细微颗粒润湿性对临界饱和度的影响

颗粒润湿性对水汽在颗粒表面异质核化具有重 要影响,接触角是衡量颗粒润湿性的重要指标。经 典异质核化理论中,把成核速率J=1个/秒时的 蒸汽饱和度,称为临界饱和度,当水汽饱和度达到 临界饱和度时,水滴即以不连续的方式在颗粒上大 量形成,出现明显的核化凝结现象。图2给出了不 同接触角情况下,水汽在粒径为0.1~10  $\mu$ m的不 可溶颗粒表面异质核化临界饱和度  $S_{\rm er}$ ,图中曲线 分别为接触角 $\theta$ 为 20°、10°、5°时的临界饱和度随 微粒直径的变化关系曲线。从图2中对不同接触角 时的临界饱和度预测结果可知,通过减小接触角, 可使水汽核化临界饱和度降低,从而改善微粒的核 化性能。



图 2 不同接触角时的临界饱和度



图 2 中的离散点来自文献 [19],文献 [19] 将电动天平技术和热扩散云室有机结合(直接对云 室上下板施加直流电场),使单个不可溶光滑碱石 灰玻璃微珠(粒径为 8 μm 左右)悬浮于过饱和水 汽环境中发生核化,得到水汽成核临界饱和度。实 验点和模拟得到的曲线对比显示:除一个碱石灰玻 璃微珠的接触角在 5°以下,其余都在 5°~20°之间, 该结果与文献[19]中玻璃微珠接触角实验值 (5°~23°)一致。

### 2.2 添加润湿剂对核化特性的影响

• 2564 •

颜金培等<sup>[22]</sup>采用最大气泡压力法对水及润湿 剂水溶液的表面张力进行测试,利用 Washburn 动 态渗透压力法,采用精密数字压力计通过测量液体 在粉体床中上升时管内压力的变化对水及润湿剂水 溶液与燃煤 PM<sub>2.5</sub>之间的接触角进行测试,结果见 表1,其中,润湿剂溶液浓度均为 0.50%。从表 1 可以看出,润湿剂能降低水溶液的表面张力,不同 程度地改变水在颗粒表面的接触角,从而改善水汽 在颗粒表面异质核化性能。

## 表 1 水及润湿剂溶液的表面张力及其在燃煤 PM<sub>2.5</sub>表面的相对接触角

Table 1 Values of surface tension of water and aqueous wetting agent solutions and their relative contact angles with  $PM_{2.5}$  from coal combustion ( $25^{\circ}C$ )

Water or solution	Surface tension/mN ${\mbox{ \bullet }}\ m^{-1}$	Contact angle/(°)
water	72.90	83.02
SDBS	31.94	69.90
SDS	35.17	0
JFC	31.57	73.94
FS-310	26.09	82.14
Silanol w22	21.54	10.26

结合表1中数据,在不同润湿剂条件下,针对 水汽在粒径为0.01~2.5 µm 的燃煤 PM<sub>2.5</sub>表面异 质核化特性进行数值实验。

2.2.1 晶核形成自由能 当水汽达到一定饱和度 时,开始发生水汽到水滴晶核相变过程,生成一个 水滴晶核的 Gibbs 自由能变化  $\Delta G$  与晶核半径 r 的 关系,如图 3 所示。图 3 给出了水汽的饱和度为 2.0 时,水汽及润湿剂水溶液蒸气在粒径为 2.5  $\mu$ m 的颗粒上异质核化凝结 Gibbs 自由能变化。由 图 3 可以看出, $\Delta G$  随 r 变化存在极大值,该值即 为临界晶核形成自由能  $\Delta G^*$ ,添加润湿剂后,水 汽的临界晶核形成自由能急剧降低。一定饱和度 下,临界 Gibbs 自由能反映了水汽的成核能力,临 界 Gibbs 自由能越小,水汽在颗粒上的成核能力越 强,添加润湿剂提高了水汽在 PM<sub>2.5</sub>表面的成核 能力。

2.2.2 临界晶核半径 晶核形成自由能极大值所 对应的晶核半径为临界晶核半径,晶核形成自由能 受气液界面张力影响,与水汽饱和度有关,而与作



图 3 晶核形成自由能随晶核半径的变化关系 Fig. 3 Dependence of relative values of nucleation free energy  $\Delta G/(kT)$  on embryo radius r

为核化基底的颗粒半径无关。图 4 给出了水汽及润 湿剂水溶液蒸气在燃煤 PM<sub>2.5</sub>表面异质核化临界晶 核半径随水汽饱和度的变化关系。结果表明,临界 晶核半径随水汽饱和度的增加而减小;添加润湿剂 后,在相同饱和度下,临界晶核半径减小。这是由 于添加润湿剂,降低了气液界面张力,进而降低了 临界晶核半径。

2.2.3 成核速率 图 5 是水汽及润湿剂水溶液蒸 气在粒径为 2.5 μm 的 PM<sub>2.5</sub>表面异质核化成核速 率与水汽饱和度的关系曲线。由图可知,无润湿剂 情况下,水汽在饱和度小于 2.4 时,成核速率小于 1 个/秒,添加润湿剂后,水汽成核速率增加数十 个数量级,成核速率 J 对饱和度 S 极为敏感。润 湿剂 FS-310、SDBS、JFC 水溶液对成核速率的影 响较为接近,这是因为颗粒间接触角余弦值相差不 多;而 SDS 及 Silanol 水溶液与颗粒间的接触角较 小,在饱和度达到 1.1 时,成核速率即接近 10<sup>18</sup> 个/秒。 第 10 期







Fig. 4 Dependence of critical embryo radius  $r^*$  on vapor saturation S









图 6 临界饱和度随燃煤 PM<sub>2.5</sub>粒径的变化关系

Fig. 6 Dependence of critical saturation  $S_{cr}$  on diameter d of  $PM_{2.5}$  from coal combustion

2.2.4 临界饱和度 图 6 给出了水汽及润湿剂 JFC、SDBS、FS-310、Silanol w22、SDS 水溶液 蒸气在粒径为 0.01~2.5 μm 的 PM<sub>2.5</sub> 表面异质核 化临界饱和度。可以看出,临界饱和度随 PM<sub>2.5</sub>粒 径的增大而减小;添加润湿剂,水汽核化临界过饱 和度下降,但不同润湿剂因接触角和表面张力不 同,对临界饱和度的影响存在差别,以添加 Silanol w22 与 SDS 对临界饱和度的降低最为显著。 以水汽在粒径为 2.5 μm 的颗粒表面核化为例,添 加上述 5 种润湿剂,可使临界饱和度从 2.46168 依 次降至 1.24494、1.22787、1.20957、1.00338、 1.00041; Silanol w22 与 SDS 在粒径为 0.01 μm 的颗粒表面核化临界饱和度也不超过 1.1。3 结 论

为了验证数值模拟的准确性,将水汽在不可溶 微粒表面异质核化临界饱和度计算结果与基于实验 得到的水汽在接触角为 7.3°~17°纳石灰颗粒异质 核化临界饱和度进行对比,二者符合较好。结合燃 煤 PM<sub>2.5</sub>的物化特征与表面特性,研究了水汽及润 湿剂溶液蒸气在燃煤 PM<sub>2.5</sub>表面的异质核化特性, 得出以下结论。

(1)接触角对核化临界饱和度有重要影响,通 过减小接触角,改善微粒的润湿性,可以使水汽在 较低的饱和度下发生核化凝结。

(2)在25℃条件下,需达到2.4以上的饱和 度,才会出现水汽在颗粒表面连续凝结、颗粒粒度 显著增大的现象。

(3)添加润湿剂,可以不同程度地降低汽液界 面张力,减小接触角,使临界晶核形成自由能下 降,临界晶核半径减小,引起成核速率急剧增加和 成核临界饱和度显著降低。

(4)不同润湿剂对燃煤 PM<sub>2.5</sub>润湿能力不同, 所选用的 5 种润湿剂 JFC、SDBS、FS-310、Silanol w22、SDS 中,以 SDS 与 Silanol w22 改善燃 煤 PM<sub>2.5</sub>核化性能的效果最佳,不超过 1.1 的饱和 度,就能使水汽在粒径 0.01~2.5 μm 的燃煤 PM<sub>2.5</sub>表面迅速发生核化凝结。

#### References

- Saskia C, Ven Der Zee. Characterization of particulate air pollution in urban and non-urban areas in the Netherlands. *Atmospheric Environment*, 1998, **32** (21): 3717-3729
- [2] Dong Chen (董晨), Song Weimin (宋伟民), Shi Yewen (施烨闻). Study on the oxidative injury of the vascular endothelial cell affected by PM<sub>2.5</sub>. Journal of Hygiene Research (卫生研究), 2005, 34 (2): 169-171
- [3] Wang Wei (王玮), Tang Dagang (汤大纲), Liu Hongjie (刘红杰). The characteristics of PM<sub>2.5</sub> pollution in China. Study of the Environment Science (环境科学研究), 2000, 13 (1): 1-5
- [4] Zhu Guangyi (朱广一). Study progress on inhalable particles in atmosphere. Journal of Environmental Protection Science (环境保护科学), 2002, 28 (113): 3-5
- [5] Yang Linjun (杨林军), Yan Jinpei (颜金培), Shen Xianglin (沈湘林). Prospect and advances in growth of PM<sub>2.5</sub> from combustion by vapor condensation. *Modern Chemical Industry* (现代化工), 2005, **25** (11): 22-26
- [6] Fletcher N H. The Physics of Rainclouds. London: Cambridge University Press, 1962. 386

- [7] Fletcher N H. Size effect in heterogeneous nucleation. The Journal of Chemical Physics, 1958, 29 (3): 572-576
- [8] Hage V. Drop formation on insoluble particles. Journal of Colloid and Interface Science, 1984, 101: 10-18
- [9] Lee Yuhlang, Chou Wensheng, Chen Lianghuei. The adsorption and nucleation of water vapor on an insoluble spherical solid particle. Surface Science, 1998, 414: 363-373
- [10] Padilla K, Talanquer V. Heterogeneous nucleation on aerosol particles. Journal of Chemical Physics, 2001, 114 (3): 1319-1325
- [11] Zapadinsky E, Lauri A, Kulmala M. The molecular approach to heterogeneous nucleation. The Journal of Chemical Physics, 2005, 122: 114709
- Kotzick R, Panne U, Niessner R. Changes in condensation properties of ultrafine carbon particles subjected to oxidation by ozone. *Journal of Aerosol Science*, 1997, 28 (5): 725-735
- [13] Lee D W, Hopke P K, Rasmussen D H, Wang H C, Mavliev R. Comparison of experimental and theoretical heterogeneous nucleation on ultrafine carbon particle. *Journal of Physical Chemistry*, 2003, 107: 13813-13822
- [14] Chen Chincheng, Guo Mingsheng, Tsai Yijer. Heterogeneous nucleation of water vapor on submicrometer particles of SiC, SiO<sub>2</sub>, and naphthalene. Journal of Colloid and Interface Science, 1998, 198: 354-367
- [15] Chen Chincheng, Huang Chongcheng, Tao Chunjun. Heterogeneous nucleation of n-butanol vapor on submicrometer particles of SiO<sub>2</sub> and TiO<sub>2</sub>. Journal of Colloid and Interface Science, 1999, 211: 193-203
- [16] Chen Chincheng, Tao Chunju, Shu Howjen. Heterogeneous nucleation of *n*-butanol vapor on submicrometer charged and neutral particles of lactose and monosodium glutamate. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2000, **224**: 11-22
- [17] Chen Chincheng, Tao Chunju. Condensation of supersaturated water vapor on submicrometer particles of SiO<sub>2</sub> and TiO<sub>2</sub>. Journal of Chemical Physics, 2000, 112 (22): 9967-9977
- [18] Andrews Elisabeth. Vapor scavenging by atmospheric aerosol particles [D]. Urbana-Champaign: University of Illinois, 1996
- Sharoichenko Olga V. A new apparatus for study of heterogeneous nucleation on single micron-sized insoluble particles
  [D]. New York: State University of New York, 2000
- [20] Seames W S. An initial study of the fine fragmentation fly ash particle mode generated during pulverized coal combustion. *Fuel Processing Technology*, 2003, 81: 109-125
- [21] Guo Xin (郭欣), Zheng Chuguang (郑楚光), Sun Tao (孙涛). Physicochemical characteristics of fly ash from coal-fired power station. Journal of Combustion Science and Technology (燃烧科学与技术), 2005, 11 (2): 192-195
- [22] Yan Jinpei (颜金培), Yang Linjun (杨林军), Shen Xianglin (沈湘林). Wettability of PM<sub>2.5</sub> from combustion. Journal of Southeast University (东南大学学报), 2006, 36 (5): 760-764