

李珺煜, 齐福刚, 赵镍, 等. 气水喷雾在多种城市雾霾下的应用实验[J]. 湖南科技大学学报(自然科学版), 2019, 34(4): 104-110. doi:10.13582/j.cnki.1672-9102.2019.04.015

Li J Y, Qi F G, Zhao N, et al. Application of Air-water Spray Under Various Urban Haze Conditions[J]. Journal of Hunan University of Science and Technology (Natural Science Edition), 2019, 34(4): 104-110. doi:10.13582/j.cnki.1672-9102.2019.04.015

# 气水喷雾在多种城市雾霾下的应用实验

李珺煜<sup>1,2</sup>, 齐福刚<sup>1,2\*</sup>, 赵镍<sup>1,2</sup>, 吴传平<sup>1</sup>, 胡建平<sup>1</sup>,  
丁秋杰<sup>2</sup>, 张志强<sup>2</sup>, 王冰<sup>2</sup>, 祝文军<sup>3</sup>, 欧阳晓平<sup>2</sup>

(1. 电网输变电设备防灾减灾国家重点实验室, 湖南长沙 410007;

2. 湘潭大学材料科学与工程学院, 湖南湘潭 411100;

3. 中国工程物理研究院流体物理研究所, 四川绵阳 621900)

**摘要:** 为了研究气水喷雾的除雾霾效率和除雾霾机理, 首先人工模拟了中度污染级、重度污染级和严重污染级等典型雾霾, 以及机动车排放、海洋气溶胶、工地扬尘和燃煤发电厂等污染源产生的城市雾霾等环境, 然后基于自行设计并搭建的气水喷雾除雾霾系统, 针对上述人工环境进行雾霾沉降实验。研究发现: 气水喷雾对人工雾霾具有显著的沉降作用, 对各污染级雾霾的除霾效率均在 65% 左右, 而且随着雾霾浓度的增大, 气水喷雾对雾霾的沉降效率越高; 气水喷雾的除霾效率受颗粒物的润湿性影响较大, 当颗粒物润湿性增大时, 除霾效率越高; 气水喷雾的除霾效率也受微观形貌和密度影响, 对于微观形貌越不规则, 密度越大的颗粒物除霾效率越高。这为今后城市雾霾的治理提供了一种新的治理手段, 同时也为城市空气净化提供新的思路和方法。

**关键词:** 气水喷雾; 雾霾沉降技术; 模拟城市雾霾; 沉降效率

中图分类号: X511 文献标志码: A 文章编号: 1672-9102(2019)04-0104-07

## Application of Air-water Spray Under Various Urban Haze Conditions

Li Junyu<sup>1,2</sup>, Qi Fugang<sup>1,2\*</sup>, Zhao Nie<sup>1,2</sup>, Wu Chuanping<sup>1</sup>,  
Hu Jianping<sup>1</sup>, Ding Qiujie<sup>2</sup>, Zhang Zhiqiang<sup>2</sup>, Wang Bing<sup>2</sup>, Zhu Wenjun<sup>3</sup>, Ouyang Xiaoping<sup>2</sup>

(1. State Key Laboratory of Disaster Prevention & Reduction for Power Grid Transmission and Distribution Equipment, Changsha 410007, China;

2. School of Materials Science and Engineering, Xiangtan University, Xiangtan 411100, China;

3. Institute of Fluid Physics, China Academy Of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

**Abstract:** The main purpose was to study the efficiency and mechanism of haze mitigating by air-water spray. First, artificial haze such as moderate pollution level, heavy pollution level and severe pollution level, as well as urban haze caused by pollution sources such as motor vehicle emissions, marine aerosols, site dust and coal-fired power plants, were artificially simulated. Then, based on the self-designed and built gas-water spray defogging system, the haze sedimentation experiment was carried out for the above artificial environment. The results show that air-water spray has significant sedimentation effect on artificial haze, and the efficiency of haze mitigating for all pollution-level haze is about 65%. Moreover, as the concentration of haze increases, the

收稿日期: 2018-07-18

基金项目: 输变电设备防灾减灾国家重点实验室开放基金项目资助(2016ZKFW127)

\* 通信作者, E-mail: qifugang@xtu.edu.cn

sedimentation efficiency of the haze by the gas-water spray is higher. The efficiency of haze mitigating of air-water spray is greatly affected by the wettability of the particulate matter. When the wettability of the particulate matter is increased, the efficiency of haze mitigating of air-water spray is higher, so the greater the wettability, the higher the efficiency of haze mitigating. The efficiency of haze mitigating of air-water spray is also affected by the micro-morphology and density. The more irregular the microscopic morphology, the higher the density of the particles, the higher the efficiency of removing the particles. A new means of governance is provided for the future management of urban haze, and new ideas and methods are also provided for urban air purification.

**Keywords:** air-water spraying; haze mitigating technology; simulated urban haze; haze mitigating efficiency

现如今,雾霾作为环境公害之一,直接影响人们的生活质量,甚至危害人们的身体健康乃至生命安全,已越来越受到人们的关注<sup>[1-3]</sup>.我国城市雾霾来源复杂,呈现多污染源叠加的复合型污染特征,主要污染源有机动车排放、海洋气溶胶、工地扬尘和燃煤发电厂等<sup>[4-7]</sup>.机动车排放主要源于燃料在汽缸中的不完全燃烧而产生的有机物、碳黑和CO等污染物,以及由于大气中的氮气在汽缸中被氧化而成的NO<sub>x</sub>,汽油机动车排放的颗粒物以碳烟颗粒、球形有机颗粒和富Ca颗粒为主<sup>[8]</sup>.海洋气溶胶的自然来源是表层海水泡沫一次破碎和二次生物氧化,在强海风(>4 m/s)的作用下,鼓动海水产生泡沫,泡沫爆破后产生了包含海盐、富集的有机物质以及含藻类细菌的海洋气溶胶<sup>[9-10]</sup>.燃煤排放颗粒物主要富集Zn, Fe, Rb, Pb, Cu, Cr, Ti, Mn, Ba, Ni, As等微量元素<sup>[11-12]</sup>.

目前,国内外学者研究出来的雾霾治理手段主要分为两大类.一类是制定政策从雾霾产生的源头进行治理,如调整产业结构、提升适应能力和降低人口密度等<sup>[13-14]</sup>,但是这样做一方面是成本过高,对于国民经济的发展有一定的影响,另一方面是实行周期过长,很难在短时间取得很好的效果.另一类是利用各种除霾技术通过物理沉降的方法除霾,如王连泽等<sup>[15]</sup>研究了电除尘器对模拟重度雾霾的沉降效果;刘勇等<sup>[16]</sup>进行了在电除尘器入口烟气添加化学团聚剂以及协同脱硫废水蒸发处理促进电除尘脱除PM<sub>2.5</sub>的实验研究;何森等<sup>[17]</sup>介绍了磁化水高压喷雾除尘技术治理城市PM<sub>2.5</sub>污染的现实意义;贾广<sup>[18]</sup>提出了一种将X光的电离效应应用于工业除霾的方法.但由于治理雾霾本身的特殊性和困难性,以上方法存在着实施难度大、推广困难和除霾效果差等问题.

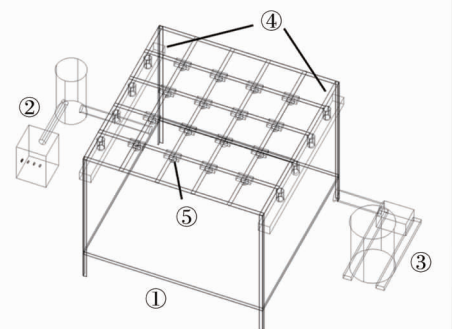
气水喷雾技术是一种以压力水和压缩空气作为双动力的新型技术,相对于现有的高压喷雾技术,具有经济性、耗水量小、水压要求低和除尘效率高的优点.国内外对于气水喷雾技术的研究大多集中在化工领域,近年来被用于呼吸性粉尘的治理,取得了一定的成果<sup>[19-21]</sup>,但有关气水喷雾除雾霾效果的理论和应用的研究还较少.因此,本课题组在电网输变电设备防灾减灾国家重点实验室的小型人工气候室内,搭建了一套气水喷雾除雾霾系统,实验其在多种城市雾霾下的降雾霾效率,为以后的应用提供理论指导.

## 1 实验系统及方案

### 1.1 实验系统

设计并搭建了气水喷雾除雾霾实验系统,如图1所示.该系统由气水喷雾支架、空压机和计量泵组成,其中,供水子系统和供气子系统都设置有调压阀,可根据实验方案进行压力调节,气水喷雾的支架尺寸约为300 mm×300 mm×275 mm,支架上固定有16个可单独控制的气水喷嘴.通过调节气压和水压,系统可持续地产生粒径在5~10 μm的水雾颗粒.

雾霾模拟利用电网输变电设备防灾减灾国家重点实验室的人工气候室雾霾发生系统.该系统主要由人工气候室热雾系统、人工气候室监控系统和气流粉碎机组成,其中,人工气候室热雾系统可产生持续稳定并且温度与湿度范围分别在5~25℃和



①气水喷雾支架;②空压机;③计量泵;  
④气水分流器;⑤气水喷嘴

图1 气水喷雾除雾霾实验系统

20%~100%之内调节的雾霾,并可模拟雾霾环境中的风流、温度和湿度等状态<sup>[22]</sup>,雾霾产生过程如图2所示.

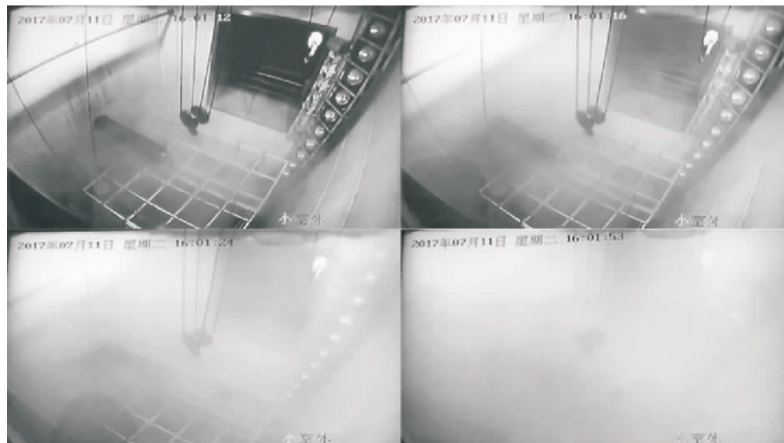


图2 气候室雾霾产生场景

## 1.2 实验方法

实验所需测定的参数主要包括风速、温度、湿度和雾霾浓度.其中,风速、温度和湿度主要由集成显示的人工气候室监控系统获得,雾霾浓度主要由3台粉尘采样器(CCZ-20A,流量 $20\text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ ,常山)和1台激光粉尘仪(LD-5K,流量 $20\text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ ,北京)测定.粉尘采样器的优点是测量精确、不受水雾干扰,激光粉尘仪的优点是操作简单、可实时读数.本实验采取两者结合测量的方式:在喷雾未开启之前采用配置有 $\text{PM}_{10}$ 切割头的激光粉尘仪进行测量,测量时间为 $1\text{ min}$ ;在喷雾开启之后采用同样配置有 $\text{PM}_{10}$ 切割头的粉尘采样器进行测量,测量时间为 $5\text{ min}$ .其中,3台粉尘采样器分别布置在与产霾位置成等差距离分布的3个点,1台激光粉尘仪布置在实验室的中心.

## 1.3 实验方案

实验在常温常压下进行,采用空气和水作为介质,将系统设置为气压 $0.3\text{ MPa}$ ,水压 $0.25\text{ MPa}$ ,即气水比为 $1.625$ .因为本次实验不考虑风速、温度等因素的影响,故统一设置为温度 $28\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,风速 $0\text{ m/s}$ .保持其他条件相同,使用混合粉尘(质量比),石墨(碳)粉, $\text{NaCl}$ , $\text{SiO}_2$ 粉和粉煤灰作为模拟雾霾的颗粒源,分别模拟典型雾霾、机动车排放、海洋气溶胶、沙尘与二次扬尘和燃煤发电厂等雾霾环境,具体实验参数如表1所示.

表1 实验主要参数设计

组别	颗粒物种类	代表环境	产霾速度/ $(\text{g}\cdot\text{min}^{-1})$	颗粒物质量/g	产霾时间/min
1	混合成分	典型雾霾	3.0	15	5
			4.0	20	5
			5.0	25	5
2	石墨	机动车排放	2.0	20	10
3	$\text{NaCl}$	海洋气溶胶	2.0	20	10
4	$\text{SiO}_2$	沙尘和二次扬尘	2.0	20	10
5	粉煤灰	燃煤电厂	2.0	20	10

首先是前期实验,主要目的是测得产生所需浓度雾霾的稳定时间.根据孙颖<sup>[23]</sup>等人的研究,本实验使用的颗粒物为 $\text{SiO}_2$ 颗粒,石墨粉和粉煤灰的混合粉尘,其质量比为 $4:3:3$ ,产霾速度设置为 $3,4,5\text{ g}\cdot\text{min}^{-1}$ ,产霾时间为 $10\text{ min}$ .根据《环境空气质量指数(AQI)技术规定》的规定,分别产生浓度为中度污染级( $300\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ )、重度污染级( $400\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ )和严重污染级( $500\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ )<sup>[24]</sup>典型雾霾并对其浓度变化进行测量.

## 2 实验结果及分析

### 2.1 前期雾霾模拟实验结果

图3是不同浓度的模拟雾霾浓度自然沉降的浓度曲线.其中,0~5 min是产霾阶段,在这段时间内模拟雾霾的浓度急剧上升;在5~25 min这段时间内,由于停止产霾且当颗粒物和热雾作用一段时间后,部分的颗粒物被沉降下来以至于模拟雾霾浓度缓慢下降;在25~60 min这段时间内,实验区域的颗粒物和热雾处于一种平衡状态时,模拟雾霾浓度开始稳定并保持30 min左右不变.经滤膜采样后使用高倍光学显微镜(OM)验证,发现该系统产生的雾霾颗粒物粒径均在 $10\ \mu\text{m}$ 左右(如图4),达到了模拟雾霾的要求.以上的结果可以为接下来的实验提供依据.

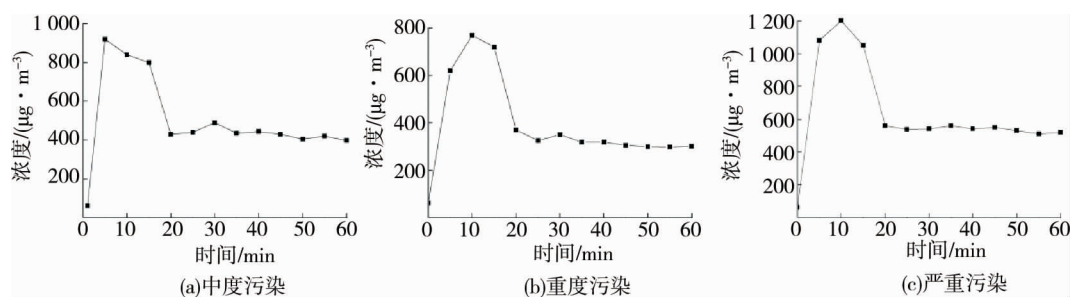


图3 不同污染级别模拟雾霾浓度自然沉降的浓度曲线

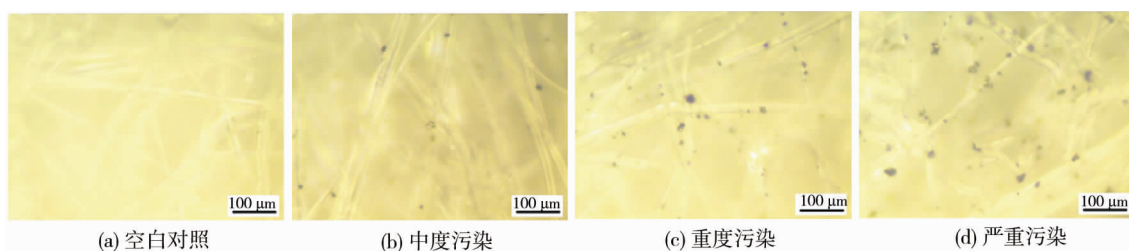


图4 不同污染级别模拟雾霾滤膜采样

### 2.2 不同浓度混合雾霾的除霾效率

图5是在气水喷雾的作用下,不同浓度的模拟雾霾的浓度曲线.当雾霾浓度稳定后,开启气水喷雾时,3个采样点的雾霾浓度都会陡然上升,其原因是空气的湿度较大时,影响了雾霾的浓度.经过一段时间的作用后,雾霾浓度开始下降直至达到稳定.由此可以得出,本实验所使用的气水喷雾对不同浓度的雾霾均有一定的降霾效果.当初始雾霾浓度在 $300\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 作用的时候,沉降雾霾的效率在62%左右,而当雾霾浓度在 $400\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 的时候,沉降雾霾的效率上升到71%,说明在其他条件一定的情况下,随着初始雾霾浓度的提升,除霾效率也在进一步增加.这是因为雾霾浓度的增加提升了颗粒物与水雾颗粒的碰撞几率,从而更容易被水雾颗粒包裹,凝聚进而沉降.

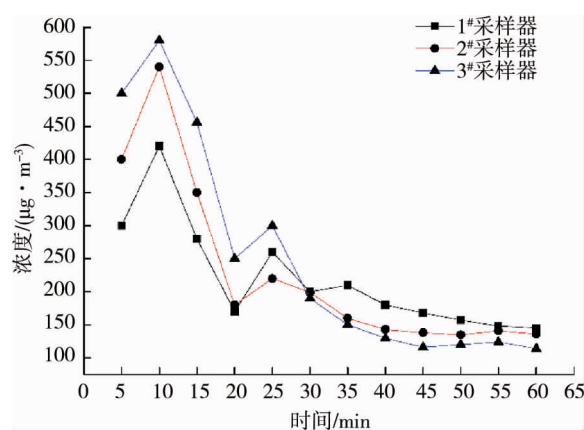


图5 气水喷雾对不同浓度雾霾的沉降过程

### 2.3 不同种类雾霾除霾效率

图6为气水喷雾对不同种类模拟雾霾的沉降效率.由图6可知:在同样的实验条件下,气水喷雾不同种类模拟雾霾的沉降效率有所差异,对NaCl产生的模拟雾霾除霾效率最高,约为81%,其余种类模拟雾霾的除尘效率相差约10%左右.



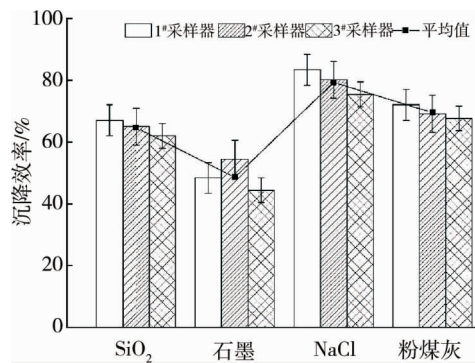


图6 气水喷雾对不同种类模拟雾霾的沉降效率

图7是本实验选用颗粒物未进行粉碎之前的微观形貌图,表2是几种颗粒物的物理性质对比.

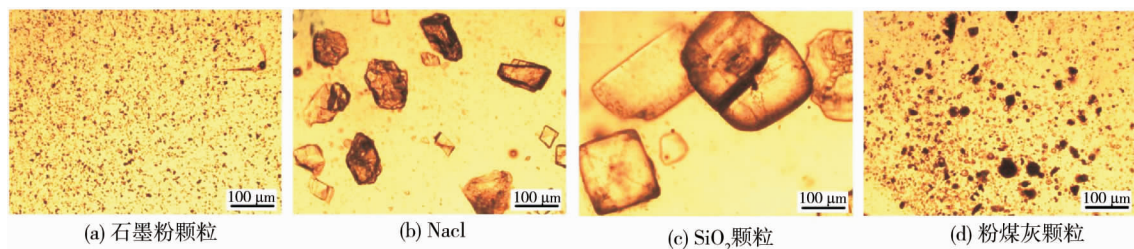


图7 本实验选用颗粒物微观形貌

表2 本实验选用颗粒物的物理性质对比<sup>[25]</sup>

雾霾种类	代表环境	物理性质				化学性质
		密度/(g·cm <sup>-3</sup> )	形状	表面形貌	润湿性	元素组成
石墨	机动车排放	2.250	不规则	鳞片状	憎水	C
NaCl	海洋气溶胶	2.165	结晶状	光滑	强亲水	Na, Cl
SiO <sub>2</sub>	工地扬尘	2.200	球状	粗糙	中等亲水	Si, O
粉煤灰	燃煤发电厂	2.600	结晶状	粗糙	中等亲水	Si, Al, O

结合上述结果,笔者将从颗粒物的微观形貌、润湿性和密度等性质对除尘效率的差异进行分析:颗粒物的润湿性对气水喷雾沉降雾霾的影响较大,润湿性越大,颗粒物越容易与水雾颗粒进行结合,从而提高沉降的效率.NaCl颗粒的润湿性较强,且易溶于水,所以极易与水雾颗粒结合进一步凝并沉降,除霾效率最高.颗粒物的微观形貌对气水喷雾沉降雾霾也有一定的影响,SiO<sub>2</sub>颗粒和粉煤灰产生的2种雾霾,两者的润湿性都是中等亲水,但是后者的效率略高,这是因为SiO<sub>2</sub>颗粒的微观形状属于结晶状,大多数成规则六面体,相比不规则的粉煤灰不易被水雾颗粒吸附或包裹,且密度大的粉煤灰颗粒与雾滴的惯性碰撞几率有所增加,从而增加了沉降速率.石墨在上述几方面都不利于其沉降,因此石墨是除尘效率最低的雾霾种类.

#### 2.4 除霾机理分析

通过对实验结果的分析,得出了气水喷雾沉降雾霾的3大原理:(1)碰撞捕捉原理.当带有一定动能的水雾颗粒和雾霾中的颗粒物相遇时,因为惯性的作用,两者会发生碰撞从而导致颗粒物被包裹、凝并<sup>[26-27]</sup>.(2)凝结沉降原理.由于气水喷雾的粒径均在5~10 μm作用,因此容易蒸发成水蒸气从而增大作用区域的湿度,湿度饱和后的水蒸气以尘粒为核凝聚形成“云”,并进一步增大成为“雨”落下来,类似于大自然中降雨的过程<sup>[28-29]</sup>.(3)扩散原理.和布朗运动相似,雾霾中的颗粒物表现出强烈的浓度梯度扩散性质,当气水喷嘴附近的雾霾浓度由于水雾颗粒的作用降低后,远处的雾霾颗粒物会在浓度梯度作用下,扩散至气水喷嘴作用范围内,达到持续不断的沉降效果<sup>[30-31]</sup>.

### 3 方案的推广应用可行性

本课题组在前期研究中着重分析了该雾霾方案的推广应用可行性:一方面是面对不同的污染情况,本方案均有较好的除霾效果;另一方面本系统设备易于搭建,可利用现有的自来水管进行改造,方便进行维护<sup>[32]</sup>.此外,本课题组对比了不同的污染情况,发现气水喷雾的耗水量比高压喷雾的耗水量大大降低,减少了水资源的浪费<sup>[33]</sup>.目前,还有学者提出一种地球工程的方法来治理中国的城市雾霾,具体是将喷头安置在高楼、高塔和广场等地点,如图8所示<sup>[34]</sup>.通过喷水的方式来沉降雾霾<sup>[34]</sup>,从侧面论证了本实验方案可采用上述方法进行大范围应用,因此具有极高的推广可行性和应用前景.

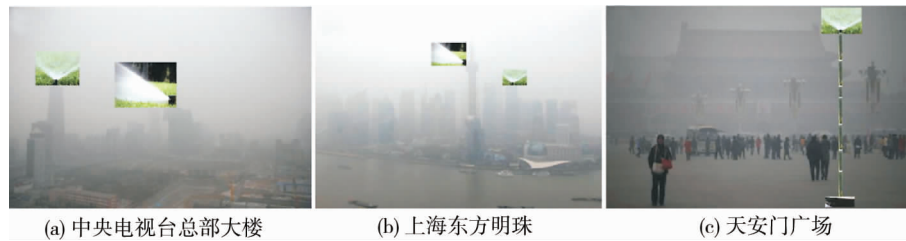


图8 气水喷雾应用在不同场景的概念

### 4 结论

1) 气水喷雾对雾霾具有显著的沉降作用,对中度污染级、重度污染级和严重污染级雾霾的除霾效率均在65%左右;随着雾霾浓度增大,气水喷雾对雾霾的沉降效率越高.

2) 气水喷雾的除霾效率受颗粒物的润湿性影响较大,当颗粒物润湿性增大时,其与水雾颗粒结合的概率越大,因此润湿性越大除霾效率越高.

3) 气水喷雾的除霾效率也受微观形貌和密度的影响,微观形貌越不规则,密度越大的颗粒物,与水雾颗粒生碰撞的几率越大,从而除霾效率越高.

### 参考文献:

- [1] Yao X, Chan C K. Air pollution in mega cities in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(1):1-42.
- [2] 乔玉霜,王静,王建英.城市大气可吸入颗粒物的研究进展[J]. *中国环境监测*, 2011, 27(2):22-26.
- [3] 马丽梅,张晓.中国雾霾污染的空间效应及经济、能源结构影响[J]. *中国工业经济*, 2014(4):19-31.
- [4] 胡敏,唐倩,彭剑飞,等.我国大气颗粒物来源及特征分析[J]. *环境与可持续发展*, 2011, 36(5):15-19.
- [5] Lei Y, Zhang Q, Nielsen C, et al. An inventory of primary air pollutants and CO<sub>2</sub> emissions from cement production in China, 1990-2020[J]. *Atmospheric Environment*, 2011, 45(1):147-154.
- [6] 耿彦红,刘卫,单健,等.上海市大气颗粒物中水溶性离子的粒径分布特征[J]. *中国环境科学*, 2010(12):1585-1589.
- [7] 孙韧,张文具,董海燕,等.天津市PM<sub>10</sub>和PM<sub>2.5</sub>中水溶性离子化学特征及来源分析[J]. *中国环境监测*, 2014, 30(2):145-150.
- [8] 幸娇萍,邵龙义,张文彬,等.汽油机动车排放PM<sub>2.5</sub>的单颗粒类型及特征[J]. *中国电机工程学报*, 2016(16):4459-4465.
- [9] 李忠,陈立奇,颜金培.气溶胶质谱技术在海洋气溶胶亚微米级颗粒物特征的研究进展[J]. *地球科学进展*, 2015, 30(2):226-236.
- [10] 郭晓霜,李小滢,闫才青,等.利用单颗粒气溶胶质谱仪研究南黄海气溶胶的变化特征[J]. *北京大学学报(自然科学版)*, 2017, 53(6):1042-1052.
- [11] 侯聪,邵龙义,王静,等.燃煤排放可吸入颗粒物中微量元素的分布特征[J]. *煤炭学报*, 2016, 41(3):760-768.
- [12] 赵承美,邵龙义,侯聪,等.燃煤电厂周边气溶胶单颗粒的微观形貌和化学组分[J]. *科学技术与工程*, 2016, 16(21):328-333.
- [13] 陈诗一,王建民.中国城市雾霾治理评价与政策路径研究:以长三角为例[J]. *中国人口·资源与环境*, 2018, 28(10):

71-80.

- [14] 戴小文,唐宏,朱琳.城市雾霾治理实证研究——以成都市为例[J].财经科学,2016(2):123-132.
- [15] 王连泽,牛洪涛,彭宁宁,等.利用扩散和相对运动原理除霾的初步试验研究[J].环境工程,2015,33(12):75-79.
- [16] 刘勇,赵汶,刘瑞,等.化学团聚促进电除尘脱除PM<sub>2.5</sub>的实验研究[J].化工学报,2014,65(9):3609-3616.
- [17] 何森,刘胜强,曾毅夫,等.磁化水高压喷雾除尘技术治理城市PM<sub>2.5</sub>[J].中国环保产业,2015(11):24-27.
- [18] 贾广.诊断X光能用来除霾吗?——X光在减少工业污染气体排放中的潜在应用[J].中国医疗设备,2014,29(4):1-3.
- [19] 王鹏飞,刘荣华,桂哲,等.煤矿井下气水喷雾雾化特性及降尘效率理论研究[J].煤炭学报,2016,41(9):2256-2262.
- [20] 蒋仲安,王明,陈举师,等.气水喷嘴雾化特征与降尘效果分析[J].哈尔滨工业大学学报,2017(2):151-157.
- [21] 孟君.综采工作面气水喷雾粉尘防治技术及管理研究[D].北京:中国矿业大学(北京),2013.
- [22] 周羽生,罗屿,赵纯,等.人工气候室雾霾模拟方法及装置[J].高电压技术,2017,43(3):909-914.
- [23] 孙颖,潘月鹏,李杏茹,等.京津冀典型城市大气颗粒物化学成分同步观测研究[J].环境科学,2011,32(9):2732-2740.
- [24] 环境保护部科技标准司.GB3095-2012 环境空气质量标准[S].2012.
- [25] 彭敏.粉煤灰的形貌、组成分析及其应用[D].湘潭:湘潭大学,2004.
- [26] 马素平,寇子明.喷雾降尘机理的研究[J].煤炭学报,2005,30(3):297-300.
- [27] Lin J, Lin P, Chen H. Research on the transport and deposition of nanoparticles in a rotating curved pipe[J]. Physics of Fluids, 2009, 21(12): 122001.
- [28] Pruppacher H R, Klett J D. Microphysics of clouds and precipitation[J]. Nature, 1980, 284: 88.
- [29] Steinfeld J I. Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change[J]. Environment: Science and Policy for Sustainable Development, 1998, 40(7): 26.
- [30] Wang L Z, Niu H T, Peng N N, et al. Research into haze removal method based on diffusion and relative motion[J]. Aerosol and Air Quality Research, 2016, 16(7): 1757-1763.
- [31] Slinn W G N, Shen S F. Anisotropic brownian diffusion and precipitation scavenging of submicron particles[J]. Journal of Geophysical Research, 1970, 75(12): 2267-2270.
- [32] 欧阳晓平,李珺煜,赵镍,等.一种基于自动控制系统的气液两相流清除雾霾装置:201710970245.0[P].2017-10-18.
- [33] 袁辉.气液两相流喷雾雾化特性的实验研究及其降尘应用[D].湘潭:湘潭大学,2018.
- [34] Yu S. Water spray geoengineering to clean air pollution for mitigating haze in China's cities[J]. Environmental Chemistry Letters, 2014, 12(1): 109-116.