

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第7期

Vol.38 No.7

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

基于船载走航气溶胶质谱技术的海洋气溶胶研究	颜金培, 陈立奇, 林奇, 赵淑惠, 李磊, 朱大勇 (2629)
利用 MODIS C6 数据分析中国西北地区气溶胶光学厚度时空变化特征	赵仕伟, 高晓清 (2637)
秋冬季节华北背景地区 PM ₁ 污染特征及来源	张周祥, 张养梅, 张小曳, 王亚强, 沈小静, 孙俊英, 周怀刚 (2647)
杭州市 PM _{2.5} 中水溶性离子的污染特征及其消光贡献	吴丹, 蔺少龙, 杨焕强, 杜荣光, 夏俊荣, 齐冰, 刘刚, 李凤英, 杨孟, 盖鑫磊 (2656)
青岛不同强度霾天气溶胶中二次无机离子的生成及粒径分布	谢丹丹, 祁建华, 张瑞峰 (2667)
西安市重污染与清洁天 PM _{2.5} 组分及其活性氧物质对比	王堃, 韩永明, 何世恒, 张婷, 刘随心, 曹军骥 (2679)
黄山 PM ₁₀ 中二元羧酸类化合物的季节变化特征及其来源	孟静静, 侯战方, 张二勋, 董杰, 刘晓迪, 邢继钊, 刘加珍 (2688)
泉州市大气 PM _{2.5} 铜系元素组成特征及来源解析	张云峰, 于瑞莲, 胡恭任, 孙境蔚, 许文质, 张棕巍 (2698)
西北石化区周围毒害类空气污染物污染特征及健康风险评价	许亚宣, 李小敏, 于华通, 董林艳, 赵玉婷, 姚懿函, 邹广迅, 张新民 (2707)
G20 峰会期间宜兴市大气 VOCs 特征及来源分析	张璘, 张祥志, 秦玮, 茅晶晶, 秦艳红, 谢卫平, 史文科, 陈文泰 (2718)
四川省 2005 ~ 2014 年农业源氨排放清单及分布特征	冯小琼, 陈军辉, 姜涛, 钱骏, 叶宏 (2728)
长三角地区典型城市非道路移动机械大气污染物排放清单	鲁君, 黄成, 胡馨遥, 杨强, 井宝莉, 夏阳, 卢滨, 唐伟, 楼晨荣, 陶士康, 李莉 (2738)
我国城市饮用水中 N-亚硝基二甲胺的健康风险评估及水质标准制定	张秋秋, 潘申龄, 张昱, 杨敏, 安伟 (2747)
地下水污染风险评价中污染源荷载量化方法的对比分析	赵鹏, 何江涛, 王曼丽, 崔亚丰 (2754)
胶州湾表层海水中的正构烷烃及其来源解析	张倩, 宋金明, 彭全材, 李学刚, 袁华茂, 李宁, 段雨琴, 曲宝晓, 王启栋 (2763)
桂江流域夏季水-气界面 CO ₂ 脱气的空间变化及其影响因素	张陶, 李建鸿, 蒲俊兵, 吴飞红, 李丽, 袁道先 (2773)
都柳江水系沉积物锑等重金属空间分布特征及生态风险	宁增平, 肖青相, 蓝小龙, 刘意章, 肖唐付, 赵彦龙, 吴世良 (2784)
太湖表层水体及沉积物中双酚 A 类似物的分布特征及潜在风险	陈政宏, 郭敏, 徐怀洲, 刘丹, 程杰, 李江, 张圣虎, 石利利 (2793)
洱海沉积物水提取态有机氮特征及与其他来源溶解性有机氮的差异	李文章, 张莉, 王圣瑞, 肖尚斌, 钱伟斌, 席银, 许可宸, 史玲珑 (2801)
阿哈水库沉积物-水界面磷、铁、硫高分辨率空间分布特征	孙清清, 陈敬安, 王敬富, 杨海全, 计永雪, 兰晨, 王箫 (2810)
北京市水环境中精神活性物质污染特征	张艳, 张婷婷, 陈卫平, 郭昌胜, 花镇东, 张远, 徐建 (2819)
降雨特征及污染物赋存类型对路面径流污染排放的影响	陈莹, 王昭, 吴亚刚, 赵剑强, 杨文娟 (2828)
CaO ₂ 不同投加方式对黑臭河道底泥内源磷释放抑制作用	徐焱, 李大鹏, 韩菲尔, 宋小君, 李鑫, 周婧, 黄勇 (2836)
坡耕地薄层紫色土-岩石系统中氮磷的迁移特征	鲜青松, 唐翔宇, 朱波 (2843)
微生物强化组合浮床净化微盐碱水体的效果	陈友媛, 吴亚东, 孙萍, 吴丹 (2850)
氧化镁基生物炭高效去除水体中磷的特性	王彬斌, 林景东, 万顺利, 何锋 (2859)
Pd/Fe ⁰ 双金属复合催化纤维降解水中痕量亚硝基二甲胺	张环, 傅敏, 魏俊富, 王一冰, 安慧颖, 沈书怡 (2868)
针铁矿、磁铁矿和石膏对 2,4-二氯苯酚厌氧降解的影响	孔殿超, 周跃飞, 陈天虎, 王进, 李碧 (2875)
污水再生过程中消毒副产物前体物转化规律	韩慧慧, 缪恒峰, 张雅晶, 陆敏峰, 黄振兴, 阮文权 (2883)
微生物燃料电池改性阳极处理 PTA 废水	孙靖云, 范梦婕, 陈英文, 祝社民, 沈树宝 (2893)
水稻秸秆浸泡液对蓝藻和绿藻生长选择性抑制作用	苏文, 陈洁, 张胜鹏, 孔繁翔 (2901)
沼液 SBR 处理出水养殖螺旋藻	蔡小波, 郁强强, 刘锐, 赵远, 陈吕军 (2910)
K ⁺ 强化高盐环境下厌氧氨氧化脱氮效能	吴国栋, 于德爽, 李津, 周同, 王晓静 (2917)
包埋氨氧化细菌短程硝化的高效稳定运行	于濛雨, 刘毅, 田玉斌, 石欢, 徐富, 杨宏 (2925)
ANAMMOX 的快速启动及 EPS 在 ANAMMOX 颗粒污泥中的空间分布	李惠娟, 彭聪聪, 陈国燕, 姚倩, 卓杨, 王彬斌 (2931)
厌氧氨氧化污泥中氨氧化的潜在电子受体	李祥, 林兴, 王凡, 袁砚, 黄勇, 袁怡, 毕贞, 刘忻, 杨朋兵 (2941)
基于厌氧氨氧化的含氨废气原位处理	林兴, 王凡, 袁砚, 李祥, 黄勇, 袁澄伟 (2947)
基于污泥资源化利用的粗放型绿色屋顶生长基质的组成	沈庆然, 李田, 曹熠, 潘奥 (2953)
罗红霉素短期冲击对活性污泥中氨氧化微生物丰度和多样性的影响	高景峰, 孙丽欣, 樊晓燕, 潘凯玲, 李定昌 (2961)
不同盐度下活性污泥中微生物群落变化规律及其处理模拟染料废水	周贵忠, 许硕, 姚倩, 银钗 (2972)
CO ₂ -咸水-砂岩相互作用过程中微生物群落结构动态变化特征	王博强, 李晨阳, 卢伟, 樊昊, 张冬至, 汪治, 吕聪, 沈福东 (2978)
油菜/玉米轮作农田土壤呼吸和异养呼吸对秸秆与生物炭还田的响应	田冬, 高明, 黄容, 吕盛, 徐畅 (2988)
模拟气候升温对湿地土壤微生物群落及磷素形态的影响	腾昌运, 沈建国, 王忠, 王行, 李鸿毅, 张志剑 (3000)
秦岭红桦林土壤细菌群落剖面分布特征及其影响因素	杜璨, 许晨阳, 王强, 张帆, 马武功, 和文祥, 侯琳, 耿增超 (3010)
微生物对汞矿区农田土壤汞甲基化的影响	贾钦, 朱雪梅, 王琪, 傅海辉, 郝亚琼, 何洁, 杨子良 (3020)
施用海泡石对铅、镉在土壤-水稻系统中迁移与再分配的影响	方至萍, 廖敏, 张楠, 吕婷, 黄小斌 (3028)
BS + CTMAB 复配修饰在黄棕壤吸附苯酚上的应用	刘伟, 孟昭福, 任爽, 李文斌 (3036)
1999 年与 2014 年贡嘎山峨眉冷杉枝和叶中常见重金属的生物富集特征对比	李芬, 王训, 罗辑, 袁巍, 喻子恒, 商立海 (3045)
铅锌尾矿污染区 3 种菊科植物体内重金属的亚细胞分布和化学形态特征	朱光旭, 肖化云, 郭庆军, 张忠义, 杨曦, 孔静 (3054)
膨润土调质对污泥堆肥的脱毒及重金属钝化和雌酮消除作用	周莉娜, 蔡函臻, 李荣华, 王美净, 赵军超, 王权, 张增强 (3061)
餐厨垃圾与秸秆混合中温和高温厌氧消化对比	郭香麟, 左剑恶, 史绪川, 王凯军, 李静 (3070)
我国村镇生活垃圾可燃组分基本特征及其时空差异	晏卓逸, 岳波, 高红, 李志龙, 黄启飞, 聂小琴, 汪群慧 (3078)
甲烷催化还原 NO _x 中 Co 基/分子筛催化剂的助剂和载体优化	潘华, 建艳飞, 陈宁娜, 刘红霞, 何焱, 贺亚飞 (3085)
《环境科学》征稿简则 (2737) 《环境科学》征订启事 (2809) 信息 (2867, 2971, 3027)	

G20 峰会期间宜兴市大气 VOCs 特征及来源分析

张璘¹, 张祥志^{1*}, 秦玮¹, 茅晶晶¹, 秦艳红¹, 谢卫平², 史文科², 陈文泰³

(1. 江苏省环境监测中心, 南京 210036; 2. 宜兴市环境监测站, 宜兴 214200; 3. 南京科略环境科技有限责任公司, 南京 211800)

摘要: 2016 年 G20 杭州峰会期间, 应用 TH-300B 挥发性有机物在线监测仪对江苏省宜兴市大气 VOCs 进行监测, 烷烃、烯烃、芳香烃、乙炔、氯代烃、OVOC、乙腈体积混合比分别为 11.00×10^{-9} 、 1.93×10^{-9} 、 5.78×10^{-9} 、 1.23×10^{-9} 、 4.16×10^{-9} 、 10.37×10^{-9} 、 0.27×10^{-9} , 应用臭氧最大生成潜势系数计算, 烯烃和芳香烃为 OFP 贡献最大的活性组分, VOCs 中臭氧前体物 NMHCs 主要来源为工业排放 (42.2%)、机动车尾气 (17.9%)、油气挥发 (20.8%)、溶剂挥发 (7.0%)、植物源贡献 (12.1%), 结合条件概率函数分析, 其中的人为污染源与西北、东南方向的污染源分布有关, 植物源与西南山地丘陵区域有关. 在大气污染物排放严格管控期 (2016-09-01 ~ 2016-09-06), 主要源于一次排放的大气污染物浓度均有所下降, NMHCs 中工业源占比下降至 30.5%, 植物源占比上升至 16.8%.

关键词: 长三角区域; 杭州 G20 峰会; 挥发性有机物; 二次有机气溶胶; PMF 源解析; 条件概率函数

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)07-2718-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201612096

VOCs Characteristics and Sources Apportionment in Yixing City During the G20 Summit

ZHANG Lin¹, ZHANG Xiang-zhi^{1*}, QIN Wei¹, MAO Jing-jing¹, QIN Yan-hong¹, XIE Wei-ping², SHI Wen-ke², CHEN Wen-tai³

(1. Jiangsu Environmental Monitoring Center, Nanjing 210036, China; 2. Yixing Environmental Monitoring Station, Yixing 214200, China; 3. Nanjing Intelligent Environmental Sci-Tech Co., Ltd., Nanjing 211800, China)

Abstract: A continuous measurement was conducted in Yixing city urban area from 24th August to 15th September using TH-300B continuous online GC-MS instrument during G20 summit in Hangzhou, 2016. The VOCs average mass concentrations of alkane, alkene, aromatic, acetylene, haloalkane hydrocarbons, OVOC and acetonitrile were 11.00×10^{-9} , 1.93×10^{-9} , 5.78×10^{-9} , 1.23×10^{-9} , 4.16×10^{-9} , 10.37×10^{-9} , 0.27×10^{-9} , respectively. The photochemical reaction activity was calculated by using the maximum potential coefficient of Ozone Formation Potential. Alkene and aromatic hydrocarbons were the most active components of OFP. By applying the positive matrix factorization (PMF) model, five major factors were extracted to identify the sources of NMHCs in Yixing city, including industry (42.2%), vehicle exhaust (17.9%), fuel evaporation (20.8%), paint/solvent usage (7.0%) and plant (12.1%). Combined with the conditional probability function (CPF) analysis, source of anthropogenic pollution was related to the distribution of industrial enterprises in the northwest and southeast, while the plant source was related to the forest hilly region of Southwest Yixing city. The effect of air pollutant emission reduction showed that the primary emission air pollutants had declined significantly during the strict control period from 1th to 6th September in G20 summit, 2016, and the industry proportion was reduced to 30.5%, whereas the plant proportion increased to 16.8%.

Key words: Yangtze River Delta region; G20 Hangzhou summit; volatile organic compounds (VOCs); secondary organic aerosol (SOA); PMF source apportionment; conditional probability function (CPF)

2016 年 G20 杭州峰会期间, 环境保护部在长三角组织开展在线 VOCs 同步观测, 在江苏境内的南京、苏州、宜兴市各设 1 个观测点. 宜兴市处于南京、上海、杭州市三角区域的中心位置 [见图 1 (a)], 2015 年其 GDP 总量排名位居全国县级市第 6 位, 在长三角区域县域经济体具有代表性. 近年来, 很多学者对我国北京、上海、南京等大型城市 VOCs 特征及来源进行研究^[1~7], 发现北京市机动车尾气、挥发性溶剂为夏季 VOCs 主要来源^[2], 上海市 VOCs 浓度受风速影响显著, 大气化学反应活性

和乙烯相当^[3~6]; 对我国背景区域 VOCs 特征和来源分析也有开展, 吴方堃等^[8]发现东北长白山地区 VOCs 中占比从高到低分别为烷烃、卤代烃、芳香烃、烯烃, Zhang 等^[9]发现四川贡嘎山森林生态系统 VOCs 主要受烷烃、芳香烃影响, 且受到了机动车尾气、溶剂等类型 VOCs 的长距离传输影响. 截

收稿日期: 2016-12-11; 修订日期: 2017-02-16

基金项目: 国家科技支撑计划项目 (2016YFC0201800); 江苏环保科研项目 (2016001); 江苏省环境监测基金项目 (1307)

作者简介: 张璘 (1980 ~), 男, 硕士, 主要研究方向为大气环境化学和大气监测, E-mail: zL@jshb.gov.cn

* 通信作者, E-mail: zhangxzhzz@126.com

至目前,对我国经济发达区域的县级城市大气 VOCs 深入分析还较少,本研究基于 2016-08-24 ~ 2016-09-15 期间 VOCs 监测数据,计算了宜兴市 VOCs 的臭氧最大生成潜势和二次有机气溶胶生成潜势,利用正矩阵因素分解模型(PMF)、条件概率函数

(CPF)等方法,结合 2013 年全国污染源普查工业企业分布资料[见图 1(b)],对峰会期间环境空气 VOCs 的来源进行分析,为了解长三角臭氧传输通道上 O_3 和 VOCs 浓度、分析 G20 期间减排政策实施效果提供一定参考。

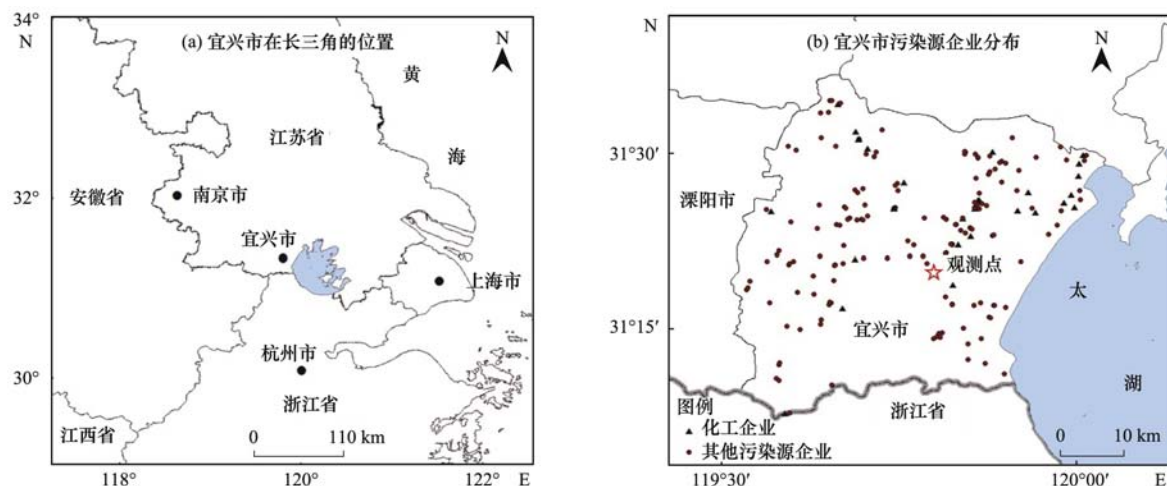


图 1 宜兴市在长三角区域所处位置及境内污染源分布

Fig. 1 Location of Yixing City in the Yangtze River Delta region and distribution of pollution sources

1 材料与方法

1.1 仪器介绍及数据采集

TH-300B 挥发性有机物在线监测仪采用超低温捕集与气相色谱-质谱联用(GC-MS)检测技术,测量范围涵盖 29 种烷烃、12 种烯烃、16 种芳香烃、乙炔、31 种卤代烃、12 种 OVOC 组分和乙腈等。该仪器主要包括超低温预浓缩、GC-MS 分析两个部分,前者有自动采样、除水管、除氧管、捕集管、制冷和加热装置、流量控制装置等;后者将样品脱附分离后进行分析,得出目标化合物的定性定量结果。环境空气 SO_2 、 NO_2 、 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 O_3 监测数据来自“宜兴市环保局”空气自动监测点($31.354^\circ N$, $119.818^\circ E$),该站为国家环保模范城市省控空气自动站,风速、风向等气象数据来自江苏省气象台在宜兴市观测结果。

1.2 采样、分析与质量控制

测点位于宜兴市环保局楼顶,距地面 13 m,挥发性有机物在线监测仪每日每隔 1 h 监测一次,采样时长为 5 min,流量为 $60 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$,每日 00:00 ~ 01:00,使用 TO15 和 PAMS 两种标准气体的混合气进行校准,各组分校准浓度稀释为 4.0×10^{-9} ,组分相对误差允许范围设为 $\leq 25\%$,102 种组分的超差率(超出所设相对误差范围的比例)所允许的范围设为 $\leq 30\%$ 。观测期间每日超差率在 $2.9\% \sim$

27.5% 之间,平均值为 11.8% ,各组分观测期间的超差率见表 1。参考北京大学刘兴隆等^[10]关于除湿管温度设置对高碳 VOCs 化合物的影响研究,将仪器除湿管温度设为 $-20^\circ C$ 。

SO_2 、 NO_2 、 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 监测仪按照国家技术规范定期进行采样和校准; O_3 监测仪每年与江苏省环境监测中心臭氧一级标准参考光度计(SRP52)进行量值溯源,SRP52 每两年与美国国家标准与技术研究院(US NIST)臭氧标准参考光度计(SRP0)进行国际量值溯源。

2 结果与讨论

2.1 大气 VOCs 污染特征

观测期间,宜兴市 102 种 VOCs 组分总的体积分数平均值为 34.68×10^{-9} ,其中 NMHCs 体积分数平均值为 19.94×10^{-9} ,其中烷烃、烯烃、芳香烃、乙炔、氯代烃、OVOC、乙腈体积分数平均值分别为 11.00×10^{-9} 、 1.93×10^{-9} 、 5.78×10^{-9} 、 1.23×10^{-9} 、 4.16×10^{-9} 、 10.37×10^{-9} 、 0.27×10^{-9} (表 1),逐时浓度变化情况见图 2;同期江苏省内苏州市区 VOCs 测点($31.373^\circ N$, $120.718^\circ E$)烷烃、烯烃、芳香烃、乙炔浓度分别为 11.31×10^{-9} 、 1.84×10^{-9} 、 6.35×10^{-9} 、 1.10×10^{-9} ;南京市 VOCs 测点($32.043^\circ N$, $118.746^\circ E$)烷烃、烯烃、芳香烃、乙炔浓度分别为 13.46×10^{-9} 、

表 1 宜兴市大气 VOCs 组分信息统计

Table 1 Information statistics of atmospheric VOCs in Yixing City

源解析组 分编号	组分/项目	检出限 × 10 ⁻⁹	平均值 × 10 ⁻⁹	中值 × 10 ⁻⁹	标准差 × 10 ⁻⁹	MIR /μg·m ⁻³	OFP /μg·m ⁻³	FAC /%	FVOCs _r /%	SOA × 100 /μg·m ⁻³	未检出 占比/%	超差率 /%	数据处 理方式
1	乙烷	0.054	1.95	1.85	0.71	0.25	0.65	—	—	—	0.4	0.0	—
2	丙烷	0.050	3.75	3.58	1.93	0.48	3.54	—	—	—	2.1	0.0	—
3	异丁烷	0.046	0.87	0.78	0.52	1.21	2.73	—	—	—	7.0	0.0	—
4	正丁烷	0.039	0.95	0.86	0.60	1.02	2.51	—	—	—	7.2	0.0	—
5	环戊烷	0.033	0.06	0.05	0.11	2.40	0.45	—	—	—	45.9	0.0	—
6	异戊烷	0.047	0.75	0.65	0.56	1.38	3.33	—	—	—	6.6	0.0	—
7	正戊烷	0.067	0.40	0.36	0.28	1.04	1.34	—	—	—	10.7	0.0	—
8	乙烯	0.046	1.27	1.08	0.91	7.40	11.77	—	—	—	6.6	0.0	—
9	丙烯	0.035	0.18	0.08	0.26	9.40	3.18	—	—	—	43.6	0.0	—
10	反-2-丁烯	0.031	0.02	0.00	0.05	10.00	0.50	—	—	—	78.8	0.0	—
11	1-丁烯	0.034	0.04	0.00	0.05	8.90	0.89	—	—	—	58.8	4.2	—
12	顺-2-丁烯	0.054	0.04	0.00	0.09	10.00	1.00	—	—	—	66.7	0.0	—
—	1-戊烯	0.050	0.01	0.00	0.02	6.20	0.19	—	—	—	81.1	33.3	①
—	1,3-丁二烯	0.015	0.00	0.00	0.00	10.90	0.00	—	—	—	99.6	54.2	①
—	异丁烯	0.034	0.17	0.07	0.24	5.30	2.26	—	—	—	0.4	83.3	①
—	反-2-戊烯	0.008	0.05	0.00	0.11	8.80	1.38	—	—	—	57.8	33.3	①
13	异戊二烯	0.010	0.10	0.06	0.16	9.10	2.77	—	—	—	26.9	4.2	—
—	顺-2-戊烯	0.012	0.00	0.00	0.01	8.80	0.00	—	—	—	95.3	16.7	②
14	2,2-二甲基丁烷	0.015	0.02	0.02	0.02	0.82	0.06	—	—	—	33.3	25.0	—
15	2,3-二甲基丁烷	0.011	0.07	0.02	0.11	1.07	0.29	—	—	—	35.8	8.3	—
16	2-甲基戊烷	0.011	0.21	0.19	0.12	1.50	1.21	—	—	—	1.0	0.0	—
17	3-甲基戊烷	0.006	0.14	0.13	0.08	1.50	0.81	—	—	—	0.2	0.0	—
18	正己烷	0.005	0.20	0.17	0.13	0.98	0.75	—	—	—	0.2	0.0	—
19	2,4-二甲基戊烷	0.012	0.02	0.01	0.02	1.50	0.13	—	—	—	20.6	0.0	—
20	甲基环戊烷	0.011	0.09	0.08	0.05	2.80	0.95	0.17	10.00	0.046	1.6	0.0	—
21	2-甲基己烷	0.005	0.06	0.05	0.05	1.08	0.29	—	—	—	0.2	16.7	—
22	环己烷	0.021	0.12	0.07	0.21	1.28	0.58	0.17	14.00	0.083	2.9	0.0	—
23	2,3-二甲基戊烷	0.007	0.04	0.04	0.03	1.31	0.23	—	—	—	1.6	0.0	—
24	3-甲基己烷	0.005	0.07	0.06	0.05	1.40	0.44	—	—	—	1.6	0.0	—
25	2,2,4-三甲基戊烷	0.009	0.04	0.03	0.03	0.93	0.19	—	—	—	0.1	0.0	—
26	正庚烷	0.006	0.08	0.07	0.06	0.81	0.29	0.06	14.00	0.019	0.2	12.5	—
27	甲基环己烷	0.006	0.09	0.06	0.10	1.80	0.71	2.70	20.00	1.047	2.3	0.0	—
28	2,3,4-三甲基戊烷	0.005	0.03	0.02	0.02	1.60	0.24	—	—	—	7.4	0.0	—
29	2-甲基庚烷	0.013	0.03	0.02	0.02	0.96	0.15	0.50	10.00	0.054	9.9	0.0	—
30	3-甲基庚烷	0.008	0.02	0.02	0.02	0.99	0.10	0.50	10.00	0.042	23.4	0.0	—
31	辛烷	0.005	0.05	0.04	0.03	0.60	0.15	0.06	17.00	0.014	0.6	0.0	—
32	正壬烷	0.006	0.05	0.04	0.04	0.54	0.15	1.50	20.00	0.390	0.4	20.8	—
33	正癸烷	0.006	0.11	0.08	0.08	0.46	0.32	2.00	22.00	1.278	0.0	20.8	—
—	十一烷	0.006	0.14	0.05	0.23	0.42	0.41	2.50	25.00	2.519	45.7	79.2	①
—	十二烷	0.005	0.91	0.59	1.35	0.38	2.63	—	—	—	35.6	75.0	①
34	1-己烯	0.010	0.11	0.06	0.11	4.40	1.82	—	—	—	1.8	4.2	—
35	乙炔	0.007	1.23	1.12	0.68	0.50	0.71	—	—	—	8.6	0.0	—
36	苯	0.010	0.59	0.55	0.27	0.42	0.86	2.00	10.00	4.181	0.0	0.0	—
37	甲苯	0.008	2.00	1.64	1.36	2.70	22.21	5.40	12.00	42.921	2.6	8.3	—
38	乙苯	0.006	0.80	0.69	0.47	2.70	12.94	5.40	15.00	26.389	0.0	4.2	—
39	间/对二甲苯	0.020	0.57	0.50	0.35	7.40	19.99	4.70	34.00	14.982	1.2	0.0	—
40	邻二甲苯	0.010	0.43	0.37	0.26	6.50	13.25	5.00	26.00	10.988	0.1	0.0	—
41	苯乙烯	0.011	0.52	0.27	0.87	2.20	5.32	—	—	—	0.0	4.2	—
42	异丙苯	0.005	0.10	0.07	0.15	2.20	1.18	4.00	13.00	3.222	0.9	0.0	③
43	正丙基苯	0.011	0.08	0.06	0.05	2.10	0.90	1.60	12.00	0.620	0.1	8.3	③
44	3-乙基甲苯	0.015	0.10	0.08	0.07	7.20	3.86	6.30	31.00	3.627	3.5	16.7	③
—	4-乙基甲苯	0.007	0.07	0.06	0.06	7.20	2.70	2.50	21.00	0.893	0.0	54.2	①
45	1,3,5-三甲基苯	0.015	0.07	0.05	0.06	10.10	3.79	2.90	74.00	2.606	1.9	16.7	③
46	2-乙基甲苯	0.015	0.07	0.05	0.05	5.59	2.10	5.60	23.00	1.924	0.0	12.5	③
47	1,2,4-三甲基苯	0.015	0.14	0.12	0.12	8.80	6.61	2.00	58.00	2.790	0.1	29.2	③
48	1,2,3-三甲基苯	0.015	0.08	0.06	0.07	8.90	3.82	3.60	51.00	2.261	0.3	8.3	③
49	1,3-二乙基苯	0.050	0.05	0.03	0.08	6.45	1.93	6.30	47.00	2.270	12.6	4.2	③
50	1,4-二乙基苯	0.100	0.11	0.07	0.11	6.45	4.25	6.30	47.00	5.082	2.1	4.2	③
—	氯代烃平均值	—	4.19	3.72	2.24	—	—	—	—	—	—	5.2	—
—	OVOC 平均值	—	10.40	8.48	9.70	—	—	—	—	—	—	27.1	—
—	乙腈	—	0.27	0.22	0.26	—	—	—	—	—	—	20.8	—

2.51×10^{-9} 、 3.41×10^{-9} 、 1.54×10^{-9} 。与王红丽^[6]在上海市夏季观测结果相比,宜兴市观测点 NMHCs 浓度水平与位于上海市区的徐汇区测点较为接近(20.6×10^{-9}),低于位于港区的临港新城测点(41.6×10^{-9}),高于位于上海郊区的青浦区测点(17.0×10^{-9})。

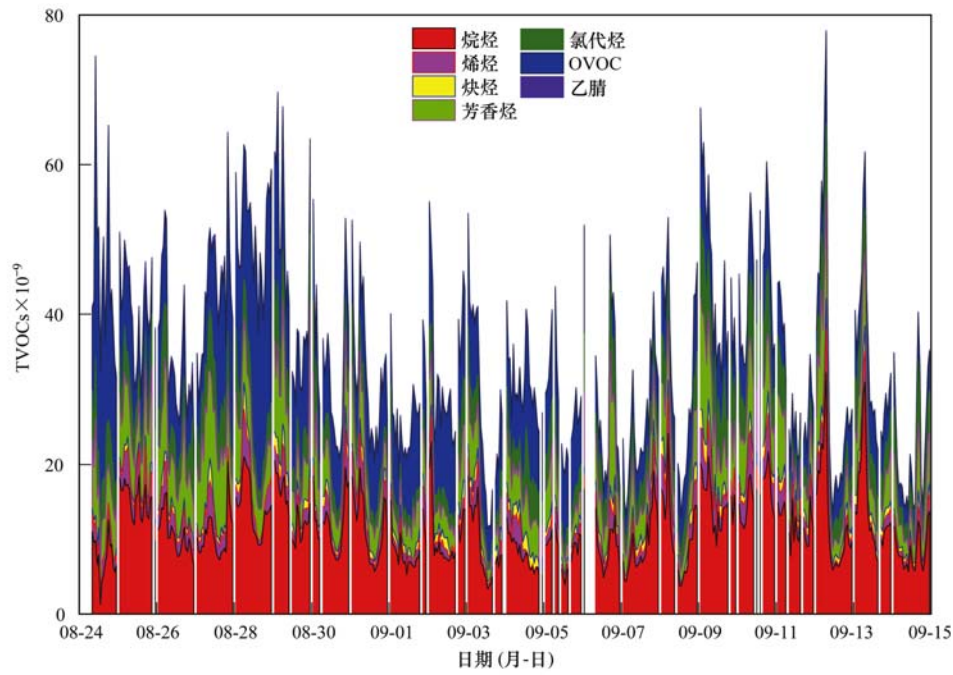


图2 G20 峰会期间宜兴市 VOCs 浓度的时间变化序列
Fig. 2 Time series of VOCs concentration in Yixing City during the G20 summit

2.2 OFP 分析

利用最大增量反应活性(max incremental reactivity, MIR)计算 VOCs 各组分最大臭氧生成潜势(ozone formation potential, OFP),见公式(1)。

$$OFP_i = MIR_i \times [VOCs]_i \tag{1}$$

式中, $[VOCs]_i$ 表示实际观测中的 VOCs 组分的大气环境质量浓度,单位为 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, MIR_i 表示某 VOCs 化合物在臭氧最大增量反应中的臭氧生成系数^[11,12]。计算得出观测期间 OFP 平均值为 $157.81 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,其中烷烃 OFP 为 $25.63 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、烯烃为 $25.76 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、芳香烃为 $105.71 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、乙炔为 $0.71 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (表1),大类贡献从高到低依次是芳香烃、烯烃和烷烃,该顺序与杨笑笑等^[4]在南京市、陈长虹等^[6]在上海市研究一致。OFP 贡献大小前5位的组分为甲苯($22.21 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、间/对二甲苯($19.99 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、邻二甲苯($13.25 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、乙苯($12.94 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)和乙烯($11.77 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)。

2.3 对 SOA 贡献推算

基于 Grosjean 等^[13,14]的烟雾箱实验气溶胶生成系数,假设 SOA (secondary organic aerosol) 前体 VOCs 物质每日 08:00 ~ 17:00 与·OH 自由基发生反应,夜间不反应,得出反演推算大气 VOCs 的 SOA 生

成潜势[公式(2)]。

$$\sum_{i=1}^n SOA_i = \sum_{i=1}^n \frac{VOCs_i \times FAC_i}{(1 - FVOCs_{ir})} \tag{2}$$

式中, $VOCs_i$ 表示第 i 种组分在上述假设条件下的实测浓度,该实测浓度通常指 VOCs 排放源初始排放出来的原始组分经过大气光化学反应后在大气中的剩余浓度,而 VOCs 初始排放的原始浓度(也称之为反演推算浓度或追溯的原始浓度,“back cast concentration”^[15]) 计算公式为 $VOCs_i/(1 - FVOCs_{ir})$,其中的 $FVOCs_{ir}$ 为第 i 种组分中参与大气光化学反应的比例系数; FAC_i 为第 i 种组分原始浓度生成 SOA 的系数。经计算,芳香烃类的 SOA 前体物有 15 种,烷烃类的 SOA 前体物有 10 种,合计 SOA 的生成量为 $1.30 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,其中芳香烃贡献为 $1.25 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,占 96.2%,与王倩等^[16]在上海市的研究结果相近(SOA 生成量为 $1.44 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,芳香烃的 SOA 贡献率为 96.6%),这反映出长三角区域内不同位置、不同规模的城市大气 VOCs 在 SOA 生成量上存在一定的共性特征。

2.4 PMF 受体模型法解析结果

PMF 受体模型法分析环境空气中 VOCs 来源通过以下几个主要公式组分析计算:

$$X = G \cdot F + E \quad (3)$$

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad (4)$$

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left[\frac{x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj}}{u_{ij}} \right]^2 \quad (5)$$

$$U = \sqrt{(EF \times c)^2 + MDL^2} \quad (c > MDL) \quad (6)$$

$$U = \frac{5}{6} \times MDL \quad (c \leq MDL) \quad (7)$$

公式(3)中,设样品 X 为 $i \times j$ 矩阵, i 表示样品个数(批次), j 表示组分数, X 矩阵可以用 G 、 F 矩阵分解,其中 G 矩阵为 $i \times p$ 的排放源贡献矩阵, p 表示污染来源的个数, F 矩阵为 $p \times j$ 矩阵,为污染源成分谱矩阵,矩阵 E 表示 X 与 $G \cdot F$ 的差值. 公式(4)、公式(5)表示 PMF 受体模型法,基本原理是首先利用权重计算出颗粒物中各化学组分的误差,然后通过最小二乘法来确定出其主要的污染源及其贡献率,通过迭代最小化算法对 Q 求解,并要求 Q 值尽可能的小. 在计算 Q 值过程中,为使污染源数量有实际的物理学意义,将来源划分为人为源、自然生物排放源两大类,具体的来源数量一般为 4 ~ 7 种^[17].

不确定度可以依据 PMF 5.0 User Guide 提供的计算公式(6)和公式(7)计算, EF 表示 error fraction, c 表示浓度, MDL 表示最低检出限,一般 EF 可根据浓度与大小关系设为 5% ~ 20%^[18,19]. 对于观测结果数据量较为丰富、数值浓度显著高于检出限的组分来说,其 EF 通常确定为 5%,而观测结果为 0 的占比较高、部分时段的数据用均值替代的组分,其 EF 可以放大为 20% ~ 30%,通过放大不确定性降低该组分的贡献影响. 观测期间,丙苯(2 种组分)、三甲苯(3 种组分)、乙基甲苯(3 种组分)、二乙基苯(2 种组分)在每日 00:00 校准之后,在 01:00 ~ 04:00 期间,这 10 种组分仍有一定浓度的外标源残留,且残留浓度高于日均浓度值的 2 ~ 3 倍以上[见图(3)],为消除残留浓度影响,将 01:00 ~ 03:00 这 3 个时段数值用全天剩余时段的平均值来替换,同时将 EF 放大为 25%.

根据环境保护部《G20 峰会长三角及周边地区协作环境空气质量保障方案》(环大气[2016]94 号)“以 $PM_{2.5}$ 为重点,兼顾臭氧稳定达标”的要求,重点选择 VOCs 当中的臭氧前驱体物质进行分析,氯代烃、OVOC 暂不考虑. 使用 EPA PMF5.0 模型进行计算时,以下 3 种类型的组分需做适当处理:

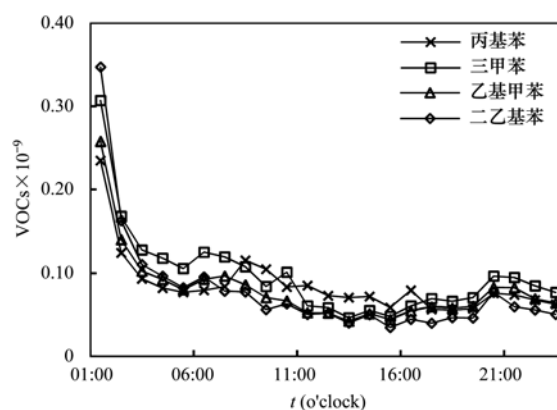


图3 C9~C10 芳香烃日内时变化

Fig. 3 Diurnal variation of C9-C10 aromatics

①校准相对误差超过允许范围(25%)的组分不纳入计算;②超过 90% 数据为 0、且大气光化学反应活性强、大气存留寿命较短的组分不纳入计算;③受外标残留干扰的组分,需要将该组分的 EF 设为 25%(表 1).

表 1 列出了源解析过程中需要处理的组分及其处理方式,最终从 58 种 NMHCs 组分中筛选出 50 种组分,并将观测期间共计 487 组的小时观测数据导入 PMF 5.0 软件进行源解析计算,参与计算的组分数共计 50 种,高于 Zhang 等^[9]、Xia 等^[20] 安俊琳等^[21] 研究,且参与计算的 50 种组分的质量浓度占 NMHCs 总质量浓度的 93.4%,仅 8 种组分不参与计算,质量浓度仅占 6.6%. 经多次运算,污染源拟确定为 5 种,其中 Factor 1 占比为 42.2%,主要成分为乙烷、丙烷以及苯、乙炔等符合工业排放特征的物质[见图 4(a)],这些组分均为大气存留寿命较长的物质^[22],因此也可以将其整体视作老化气团或者能在长三角区域内进行中长距离传输的气团. Factor 2 占比为 17.9%,主要成分为 2-甲基戊烷、正己烷、2,4-二甲基戊烷^[23],且 $T/B > 2.0$,符合机动车尾气排放特征^[24],3-甲基庚烷、辛烷等组分占比较高,这些物种主要源于汽、柴油车尾气排放^[25][见图 4(b)],因此将 Factor 2 定为机动车尾气; Factor 3 占比为 20.8%,主要成分是异丁烷、正丁烷、环戊烷、异戊烷、正戊烷等汽油及其蒸气中含量丰富的示踪物^[26],拟定为油气挥发源[见图 4(c)]; Factor 4 占比为 7.0%,主要成分为戊烷、己烷、庚烷、癸烷、丙基苯、二乙基苯等,常用于工业和民用溶剂,本因子拟定为溶剂挥发[见图 4(d)]; Factor 5 占比为 12.1%,主要成分为异戊二烯,属于植物排放源[见图 4(e)].

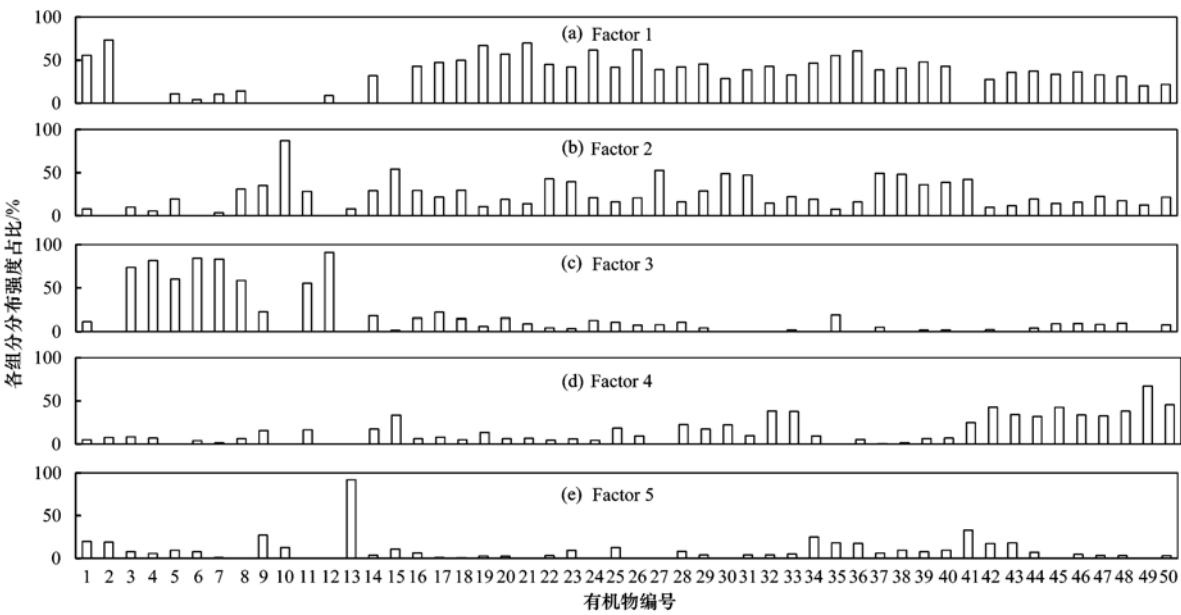


图4 PMF 解析各种源对 VOCs 组分的贡献结果

Fig. 4 Factor profile resolved from summery sample using PMF

2.5 减排管控成效分析

G20 峰会期间,宜兴市分阶段组织实施的大气污染物减排管控措施情况见表 2.

各阶段 VOCs 组分浓度见表 3,在 P2 阶段,TVOCs 浓度水平为 28.57×10^{-9} ,比 P1、P3 两个阶段的浓度平均值下降了 24.3%,降幅高于北京市 APEC 会议期间^[27] VOCs 降幅(16.4%),高于上海世博会^[28]期间 TVOCs 降幅(9.83%).在 P2 阶段,

主要源于一次排放的 NMHCs、SO₂、NO₂、氯代烃、乙炔、乙腈分别下降 24.6%、36.1%、9.3%、27.7%、0.4%、25.0%,而兼有一次排放和二次生成的 OVOC 下降 22.2%.其中,P2 阶段的烷烃、烯烃、芳香烃浓度比 P1 阶段下降了 24.7%、33.9%、32.9%,比 P3 阶段下降了 25.1%、28.2%、20.6%,而 P2 阶段的乙炔比 P1 阶段略增长了 7.0%,比 P3 阶段降低了 7.6%,总体变化不显著.

表 2 G20 会议期间宜兴市大气污染物分阶段管控情况

Table 2 Three stages of air pollutant control measurement in Yixing City during G20 summit

阶段	起始时间	结束时间	大气污染物管控措施要求
一般管控期(P1)	2016 年 8 月 24 日	2016 年 8 月 31 日	各企业二氧化硫、氮氧化物、烟尘及挥发性有机物减排 25% 以上,未开展机动车限行
强化管控期(P2)	2016 年 9 月 1 日	2016 年 9 月 6 日	化工企业、重点 VOCs 排放企业停产,关闭部分加油站,未开展机动车限行
解除管控期(P3)	2016 年 9 月 7 日	—	取消各项管控措施

表 3 G20 会议期间宜兴市环境空气污染物的浓度

Table 3 Concentrations of ambient air pollutants in Yixing City during G20 summit

阶段	TVOCs $\times 10^{-9}$	NMHCs $\times 10^{-9}$	烷烃 $\times 10^{-9}$	烯烃 $\times 10^{-9}$	乙炔 $\times 10^{-9}$	芳香烃 $\times 10^{-9}$	氯代烃 $\times 10^{-9}$	OVOC $\times 10^{-9}$	乙腈 $\times 10^{-9}$	SO ₂ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	NO ₂ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	PM _{2.5} $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	PM ₁₀ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	O ₃ -8 h $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
一般管控期(P1)	42.96	22.23	11.96	2.24	1.14	6.89	4.33	15.99	0.41	14.4	20.4	20.6	47.7	301.3
强化管控期(P2)	28.57	16.33	9.01	1.48	1.22	4.62	3.31	8.71	0.22	7.7	20.0	37.9	64.6	297.3
解除管控期(P3)	32.65	21.23	12.03	2.06	1.32	5.82	4.83	6.42	0.17	9.7	23.6	28.3	49.3	303.4
3 个阶段平均值	34.73	19.93	11.00	1.93	1.23	5.78	4.16	10.37	0.27	10.60	21.33	28.93	53.86	300.67

对 G20 期间 P1、P2、P3 阶段 NMHCs 进行源解析,有效样品数分别为 175 组、124 组、188 组,满足 PMF 输入数据组有效样品不少于 80 组的要求^[29],结果表明,在减排管控措施最严格的 P2 阶段[见图

5(c)],工业排放占比为 30.5%,均低于 P1 阶段[见图 5(b)]、P3 阶段[见图 5(d)]所占比例.根据第六次全国人口普查资料,宜兴市城区人口仅占全市 32.3%,居民分散居住在各个乡镇,属于居住

密度低的环境宜居城市,在此次 G20 峰会期间市区未施行机动车限行,从观测数据上来看,P2 阶段中工业排放源下降,而机动车尾气占比(20.5%)、挥

发性溶剂占比(14.0%)却比 P1、P3 阶段均有所上升,以上情况也验证了强化工业减排、未开展机动车限行这一措施所产生的效果.

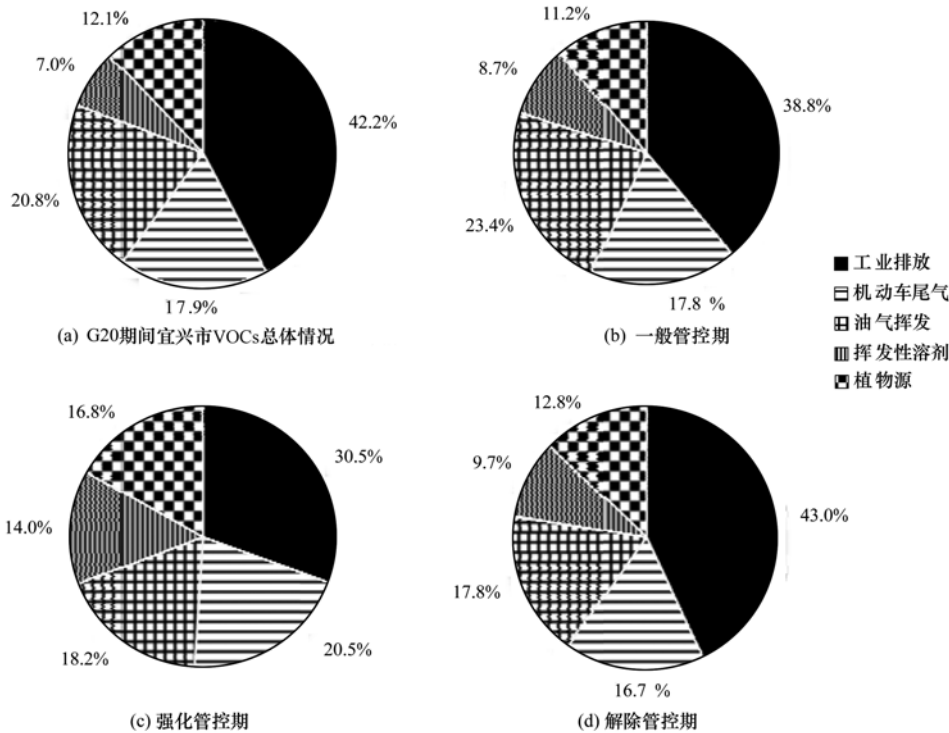


图5 宜兴市 G20 期间不同时段 VOCs 来源贡献

Fig. 5 Source apportionment of VOCs in Yixing City during different periods of G20 Summit

2.6 借助条件函数判断污染来源区域

条件概率函数(CPF)可用来统计在具有一定风速情况下,不同风向“高浓度值 M ”所占该方向全部污染物的比例,基本定义为:

$$CPF = \frac{M_{\theta}}{N_{\theta}} \quad (8)$$

式中, M_{θ} 表示在风向为 θ 时、风速 $\geq 0.75 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 的气象条件下,某类源的质量浓度大于全部观测结果第 65 百分位数的个数, N_{θ} 是风向为 θ 时全部样品个数, CPF 在 0~1 之间,越接近 1,表明该风向来向情况下,高浓度的占比越大,假设空气从排放源到受体的路径近似为直线,且城市环境 VOCs 污染具有一定的局地性,可以用 CPF 判定污染来源大致方位^[29~32]. 观测期间,宜兴市东南风频率较高,其次是西北风[见图 6],而东北和西南风较少,说明该市位于西北—东南方向气团传输的主通道之上,即位于南京市和杭州市的中间位置,有利于观察江苏省和浙江省跨界气团传输情况.

CPF 分析表明,各类源在偏南风向上均有较高浓度分布,具体来看,工业排放源主要来自偏北、北偏东、东北、偏南、南偏东等方向上[见图 7(a)],

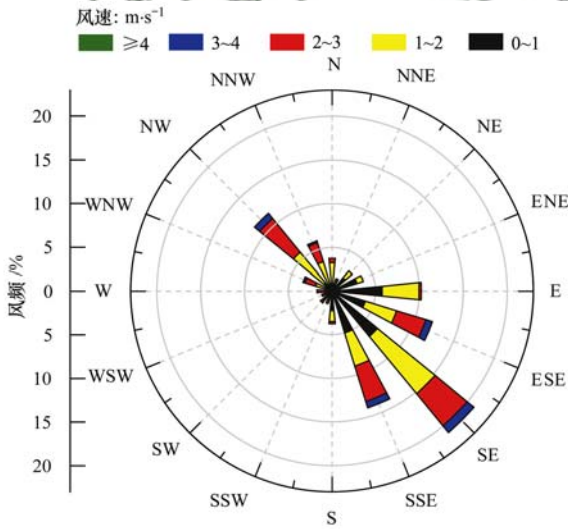


图6 观测期间宜兴市风速与风频

Fig. 6 Wind speed and wind frequency in Yixing City during the observation period

溶剂挥发源也主要来自上述风向[见图 7(d)],这一结果与污染源企业的实际分布状况较为一致[见图 1(b)]. 机动车尾气[见图 7(b)]主要来自偏北、西偏北、偏南方向,油气挥发源[见图 7(c)]更多来自于偏南风这一主导风向上,在其他风向上也有一

定贡献,考虑到测点位于市区中,道路机动车尾气和加油场站的油气挥发源来向较为复杂,因此还需要进一步结合道路车况、加油站尾气回收装置安装情

况进行进一步分析. 植物源[见图 7(e)]在西偏北、东南和偏南气流来向时浓度较高,这与宜兴市区西南方向苏浙交界的宜溧山脉植物排放 VOCs 有关.

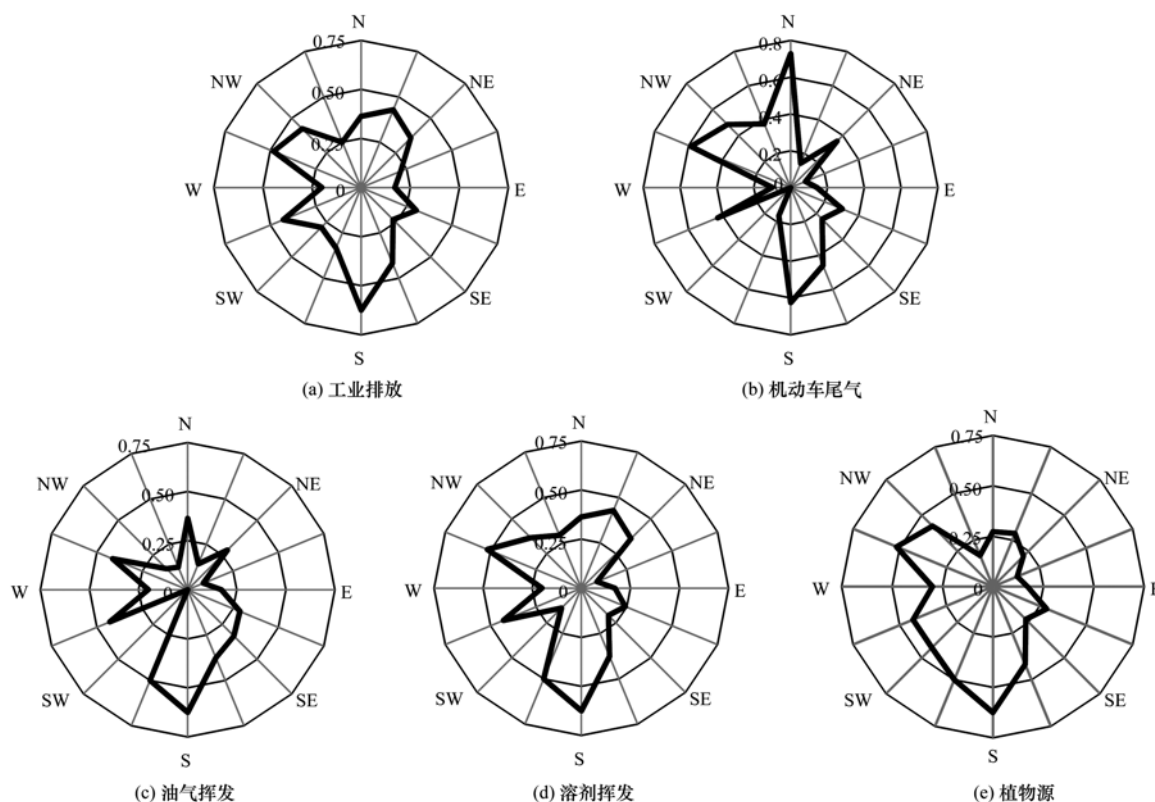


图 7. 不同风向下各类排放源的 CPF 值

Fig. 7 CPF values of different emission sources in different wind directions

3 结论

(1) 杭州 G20 峰会期间,宜兴市 TVOCs 平均体积分数为 34.68×10^{-9} , NMHCs 平均体积分数为 19.94×10^{-9} , NMHCs 低于南京市、苏州市同期同步观测结果. 宜兴市 NMHCs 组分臭氧生成潜势为 $157.81 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,对臭氧生成贡献由高到低依次为:芳香烃 > 烯烃 > 烷烃 > 乙炔;芳香烃对 SOA 贡献占 96.2%,以上两点说明芳香烃是宜兴市需要重点控制的 VOCs 污染物.

(2) 在强化管控期间, NMHCs、氯代烃、乙腈等一次排放污染物的浓度显著下降,从有效观测到的 50 种 NMHCs 组分源解析结果来看,强化管控期工业排放占比显著减少、植物源占比升高、机动车尾气排放占比变化幅度较小,且与机动车尾气排放较为密切的 NO_2 浓度降幅(9.3%)低于与工业排放有关的 SO_2 降幅(36.1%),以上数据验证了“开展化工企业和主要 VOCs 排放企业停产限排、不实施机动车限行”这一管控措施的效果.

(3) 杭州 G20 峰会期间,宜兴市测点 VOCs 总体上受到市区南部污染源影响较大,同时工业源 VOCs 还和偏北、东北方向上的污染源有关,而植物源主要来自于该地区西南方向的山地丘陵区域.

致谢:感谢武汉天虹环保产业股份有限公司易骏、黄浪先生、上海市环境监测中心段玉森、浙江省环境监测中心田旭东、王晓元先生对相关研究工作给予的帮助.

参考文献:

- [1] Yuan B, Shao M, de Gouw J, *et al.* Volatile organic compounds (VOCs) in urban air: how chemistry affects the interpretation of positive matrix factorization (PMF) analysis [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2012, **117** (D24), doi: 10.1029/2012JD018236.
- [2] 吴方堃, 王跃思, 安俊琳, 等. 北京奥运时段 VOCs 浓度变化、臭氧产生潜势及来源分析研究[J]. *环境科学*, 2010, **31** (1): 10-16.
Wu F K, Wang Y S, An J L, *et al.* Study on concentration, ozone production potential and sources of VOCs in the atmosphere of Beijing during Olympics period [J]. *Environmental Science*, 2010, **31** (1): 10-16.
- [3] Cai C J, Geng F H, Tie X X, *et al.* Characteristics and source

- apportionment of VOCs measured in Shanghai, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(38): 5005-5014.
- [4] 杨笑笑, 汤莉莉, 张运江, 等. 南京夏季市区 VOCs 特征及 O₃ 生成潜势的相关性分析[J]. *环境科学*, 2016, **37**(2): 443-451.
- Yang X X, Tang L L, Zhang Y J, *et al.* Correlation analysis between characteristics of VOCs and ozone formation potential in summer in Nanjing urban district[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(2): 443-451.
- [5] 王红丽. 上海市大气挥发性有机化学消耗与臭氧生成的关系[J]. *环境科学*, 2015, **36**(9): 3159-3167.
- Wang H L. Chemical loss of volatile organic compounds and its impact on the formation of ozone in Shanghai[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(9): 3159-3167.
- [6] 陈长虹, 苏雷燕, 王红丽, 等. 上海市城区 VOCs 的年变化特征及其关键活性组分[J]. *环境科学学报*, 2012, **32**(2): 367-376.
- Chen C H, Su L Y, Wang H L, *et al.* Variation and key reactive species of ambient VOCs in the urban area of Shanghai, China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2012, **32**(2): 367-376.
- [7] Wang H L, Chen C H, Wang Q, *et al.* Chemical loss of volatile organic compounds and its impact on the source analysis through a two-year continuous measurement [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **80**(6): 488-498.
- [8] 吴方堃, 孙杰, 余晔, 等. 长白山背景站大气 VOCs 浓度变化特征及来源分析[J]. *环境科学*, 2016, **37**(9): 3308-3314.
- Wu F K, Sun J, Yu Y, *et al.* Variation characteristics and sources analysis of atmospheric volatile organic compounds in Changbai mountain station[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(9): 3308-3314.
- [9] Zhang J K, Sun Y, Wu F K, *et al.* The characteristics, seasonal variation and source apportionment of VOCs at Gongga Mountain, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **88**(5): 297-305.
- [10] 刘兴隆, 曾立民, 陆思华, 等. 大气中挥发性有机物在线监测系统[J]. *环境科学学报*, 2009, **29**(12): 2471-2477.
- Liu X L, Zeng L M, Lu S H, *et al.* Online monitoring system for volatile organic compounds in the atmosphere[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2009, **29**(12): 2471-2477.
- [11] Atkinson R, Arey J. Atmospheric degradation of volatile organic compounds[J]. *Chemical Reviews*, 2003, **103**(12): 4605-4638.
- [12] Duan J C, Tan J H, Yang L, *et al.* Concentration, sources and ozone formation potential of volatile organic compounds (VOCs) during ozone episode in Beijing [J]. *Atmospheric Research*, 2008, **88**(1): 25-35.
- [13] Grosjean D. *In situ* organic aerosol formation during a smog episode: estimated production and chemical functionality [J]. *Atmospheric Environment*, 1992, **26**(6): 953-963.
- [14] Grosjean D, Seinfeld J H. Parameterization of the formation potential of secondary organic aerosols [J]. *Atmospheric Environment*, 1989, **23**(8): 1733-1747.
- [15] Barthelmie R J, Pryor S C. Secondary organic aerosols: formation potential and ambient data [J]. *Science of the Total Environment*, 1997, **205**(2-3): 167-178.
- [16] 王倩, 陈长虹, 王红丽, 等. 上海市秋季大气 VOCs 对二次有机气溶胶的生成贡献及来源研究[J]. *环境科学*, 2013, **34**(2): 424-433.
- Wang Q, Chen C H, Wang H L, *et al.* Forming potential of secondary organic aerosols and sources apportionment of VOCs in autumn of Shanghai, China[J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(2): 424-433.
- [17] Yakovleva E, Hopke P K, Wallace L. Receptor modeling assessment of particle total exposure assessment methodology data [J]. *Environmental Science & Technology*, 1999, **33**(20): 3645-3652.
- [18] Song Y, Shao M, Liu Y, *et al.* Source apportionment of ambient volatile organic compounds in Beijing[J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(12): 4348-4353.
- [19] Buzzu B, Fraser M P. Source identification and apportionment of volatile organic compounds in Houston, TX [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(13): 2385-2400.
- [20] Xia L, Cai C J, Zhu B, *et al.* Source apportionment of VOCs in a suburb of Nanjing, China, in autumn and winter [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2014, **71**(3): 175-193.
- [21] 安俊琳, 朱彬, 王红磊, 等. 南京北郊大气 VOCs 变化特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2014, **35**(12): 4454-4464.
- An J L, Zhu B, Wang H L, *et al.* Characteristics and source apportionment of volatile organic compounds (VOCs) in the northern suburb of Nanjing [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(12): 4454-4464.
- [22] Lau A K H, Yuan Z B, Yu J Z, *et al.* Source apportionment of ambient volatile organic compounds in Hong Kong[J]. *Science of the Total Environment*, 2010, **408**(19): 4138-4149.
- [23] 莫梓伟, 邵敏, 陆思华. 中国挥发性有机物 (VOCs) 排放源成分谱研究进展[J]. *环境科学学报*, 2014, **34**(9): 2179-2189.
- Mo Z W, Shao M, Lu S H. Review on volatile organic compounds (VOCs) source profiles measured in China[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2014, **34**(9): 2179-2189.
- [24] 乔月珍, 王红丽, 黄成, 等. 机动车尾气排放 VOCs 源成分谱及其大气反应活性[J]. *环境科学*, 2012, **33**(4): 1071-1079.
- Qiao Y Z, Wang H L, Huang C, *et al.* Source profile and chemical reactivity of volatile organic compounds from vehicle exhaust [J]. *Environmental Science*, 2012, **33**(4): 1071-1079.
- [25] Liu Y, Shao M, Fu L L, *et al.* Source profiles of volatile organic compounds (VOCs) measured in China; part I [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(25): 6247-6260.
- [26] 高蒙, 安俊琳, 杭一纤, 等. PMF 和 PCA/APCS 模型对南京北郊大气 VOCs 源解析对比研究[J]. *气象与环境学报*, 2014, **30**(1): 43-50.
- Gao M, An J L, Hang Y X, *et al.* Comparison of PMF and PCA/APCS for VOCs source apportionment in north suburb of Nanjing[J]. *Journal of Meteorology and Environment*, 2014, **30**(1): 43-50.
- [27] 杨干, 魏巍, 吕兆丰, 等. APEC 期间北京市城区 VOCs 浓度特征及其对 VOCs 排放清单的校验[J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(5): 1297-1304.
- Yang G, Wei W, Lv Z F, *et al.* Characteristics of VOCs in Beijing urban area during APEC period and its verification for VOCs emission inventory [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(5): 1297-1304.

- [28] 王红丽, 陈长虹, 黄海英, 等. 世博会期间上海市大气挥发性有机物排放强度及污染来源研究[J]. 环境科学, 2012, **33**(12): 4151-4158.
Wang H L, Chen C H, Huang H Y, *et al.* Emission strength and source apportionment of volatile organic compounds in Shanghai during 2010 EXPO[J]. Environmental Science, 2012, **33**(12): 4151-4158.
- [29] 高松, 崔虎雄, 伏晴艳, 等. 某化工区典型高污染过程 VOCs 污染特征及来源解析[J]. 环境科学, 2016, **37**(11): 4094-4102.
Gao S, Cui H X, Fu Q Y, *et al.* Characteristics and source apportionment of VOCs of high pollution process at chemical industrial area in winter of China[J]. Environmental Science, 2016, **37**(11): 4094-4102.
- [30] Zhou L M, Kim E, Hopke P K, *et al.* Advanced factor analysis on Pittsburgh particle size-distribution data special issue of *Aerosol science and technology* on findings from the Fine Particulate Matter Supersites Program[J]. Aerosol Science and Technology, 2004, **38**(S1): 118-132.
- [31] Xie Y L, Berkowitz C M. The use of positive matrix factorization with conditional probability functions in air quality studies: an application to hydrocarbon emissions in Houston, Texas [J]. Atmospheric Environment, 2006, **40**(17): 3070-3091.
- [32] Liu C H, Tian F L, Chen J W, *et al.* A Comparative study on source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments of the Daliao River, China: positive matrix factorization and factor analysis with non-negative constraints[J]. Chinese Science Bulletin, 2010, **55**(10): 915-920.

环境科学

CONTENTS

Marine Aerosol Using On-board Aerosol Mass Spectrometry	YAN Jin-pei, CHEN Li-qi, LIN Qi, <i>et al.</i> (2629)
Analysis of Spatio-temporal Distribution and Variation Characteristics of Aerosol Optical Depth over the Northwest of China by MODIS C6 Product	ZHAO Shi-wei, GAO Xiao-qing (2637)
Sources and Characteristics of Regional Background PM ₁ in North China During the Autumn and Winter Polluted Period ...	ZHANG Zhou-xiang, ZHANG Yang-mei, ZHANG Xiao-ye, <i>et al.</i> (2647)
Pollution Characteristics and Light Extinction Contribution of Water-soluble Ions of PM _{2.5} in Hangzhou	WU Dan, LIN Shao-long, YANG Huan-qiang, <i>et al.</i> (2656)
Formation and Size Distribution of the Secondary Aerosol Inorganic Ions in Different Intensity of Haze in Qingdao, China	XIE Dan-dan, QI Jian-hua, ZHANG Rui-feng (2667)
Comparison of Characteristics and Reactive Oxidative Species of PM _{2.5} in Xi'an, China During Haze and Clean Days	WANG Kun, HAN Yong-ming, Ho Steven Sai Hang, <i>et al.</i> (2679)
Seasonal Variation and Sources of Dicarboxylic Acids and Related Compounds in PM ₁₀ from Mt. Huangshan	MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, ZHANG Er-xun, <i>et al.</i> (2688)
Composition Characteristics and Sources Apportionment of Lanthanoid in PM _{2.5} of Quanzhou	ZHANG Yun-feng, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (2698)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Hazardous Air Pollutants in the Surroundings of Three Petrochemical Industries in Northwest China	XU Ya-xuan, LI Xiao-min, YU Hua-tong, <i>et al.</i> (2707)
VOCs Characteristics and Sources Apportionment in Yixing City During the G20 Summit	ZHANG Lin, ZHANG Xiang-zhi, QIN Wei, <i>et al.</i> (2718)
Agricultural Ammonia Emission Inventory and Its Spatial Distribution in Sichuan Province from 2005 to 2014	FENG Xiao-qiong, CHEN Jun-hui, JIANG Tao, <i>et al.</i> (2728)
Air Pollutant Emission Inventory of Non-road Machineries in Typical Cities in Eastern China	LU Jun, HUANG Cheng, HU Qing-yao, <i>et al.</i> (2738)
Estimation of Health Risk and Enaction of Safety Standards of <i>N</i> -nitrosodimethylamine (NDMA) in Drinking Waters in China	ZHANG Qiu-qiu, PAN Shen-ling, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (2747)
Comparison and Analysis of the Quantitative Methods for Pollutant Sources Load in Groundwater Contamination Risk Assessment	ZHAO Peng, HE Jiang-tao, WANG Man-li, <i>et al.</i> (2754)
Distribution and Sources of <i>n</i> -alkanes in Surface Seawater of Jiaozhou Bay	ZHANG Qian, SONG Jin-ming, PENG Quan-cai, <i>et al.</i> (2763)
Spatial Variations of CO ₂ Degassing Across Water-air Interface and Its Impact Factors in Summer in Guijiang River, China	ZHANG Tao, LI Jian-hong, PU Jun-bing, <i>et al.</i> (2773)
Spatial Distribution Characteristics and Potential Ecological Risk of Antimony and Selected Heavy Metals in Sediments of Duliujiang River	NING Zeng-ping, XIAO Qing-xiang, LAN Xiao-long, <i>et al.</i> (2784)
Distribution Characteristics and Potential Risk of Bisphenol Analogues in Surface Water and Sediments of Lake Taihu	CHEN Mei-hong, GUO Min, XU Huai-zhou, <i>et al.</i> (2793)
Characteristics of Water Extractable Organic Nitrogen from Erhai Lake Sediment and Its Differences with Other Sources	LI Wen-zhang, ZHANG Li, WANG Sheng-rui, <i>et al.</i> (2801)
High-resolution Distribution Characteristics of Phosphorous, Iron and Sulfur Across the Sediment-Water Interface of Aha Reservoir ...	SUN Qing-qing, CHEN Jing-an, WANG Jing-fu, <i>et al.</i> (2810)
Distribution Characteristics of Drugs of Abuse and Their Metabolites in Aqueous Environment of Beijing, China	ZHANG Yan, ZHANG Ting-ting, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i> (2819)
Impacts of Rainfall Characteristics and Occurrence of Pollutant on Effluent Characteristics of Road Runoff Pollution	CHEN Ying, WANG Zhao, WU Ya-gang, <i>et al.</i> (2828)
Inhibition of Internal Phosphorus Release in the Black-Odor Channel Under Different Adding Methods of CaO ₂	XU Yao, LI Da-peng, HAN Fei-er, <i>et al.</i> (2836)
Transport of Nitrogen and Phosphorus from Sloping Farmland with Thin Purple Soil Overlying Rocks	XIAN Qing-song, TANG Xiang-yu, ZHU Bo (2843)
Purification of Slightly Salt-alkaline Water Bodies by Microorganism Enhanced Combined Floating Bed	CHEN You-yuan, WU Ya-dong, SUN Ping, <i>et al.</i> (2850)
MgO-Biochar for the Adsorption of Phosphate in Water	WANG Bin-bin, LIN Jing-dong, WAN Shun-li, <i>et al.</i> (2859)
Degradation of <i>N</i> -nitrosodimethylamine by Palladium/ Iron Bimetallic Composite Catalytic Fiber	ZHANG Huan, FU Min, WEI Jun-fu, <i>et al.</i> (2868)
Effects of Goethite, Magnetite and Gypsum on the Anaerobic Degradation of 2,4-Dichlorophenol	KONG Dian-chao, ZHOU Yue-fei, CHEN Tian-hu, <i>et al.</i> (2875)
Transformation of Disinfection Byproduct Precursors During the Wastewater Regeneration Processes	HAN Hui-hui, MIAO Heng-feng, ZHANG Ya-jing, <i>et al.</i> (2883)
Treatment of PTA Wastewater by Modified Anode Microbial Fuel Cell	SUN Jing-yun, FAN Meng-jie, CHEN Ying-wen, <i>et al.</i> (2893)
Selective Inhibition of Rice Straw Extract on Growth of Cyanobacteria and Chlorophyta	SU Wen, CHEN Jie, ZHANG Sheng-peng, <i>et al.</i> (2901)
Cultivation of <i>Spirulina platensis</i> in Digested Piggery Wastewater Pretreated by SBR with Operating Conditions Optimization	CAI Xiao-bo, YU Qiang-qiang, LIU Rui, <i>et al.</i> (2910)
Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX Process with K ⁺ Addition in Saline Surroundings	WU Guo-dong, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (2917)
Efficient and Stable Operation of Shortcut Nitrification by Entrapping Ammonia Oxidizing Bacteria	YU Meng-yu, LIU Yi, TIAN Yu-bin, <i>et al.</i> (2925)
Fast Start-up of ANAMMOX and the Spatial Distribution of EPS in ANAMMOX Granules	LI Hui-juan, PENG Dang-cong, CHEN Guo-yan, <i>et al.</i> (2931)
Ammonia Oxidation with Potential Electron Acceptor in ANAMMOX Sludge	LI Xiang, LIN Xing, WANG Fan, <i>et al.</i> (2941)
Ammoniac Waste Gas in-situ Treatment Based on ANAMMOX Process	LIN Xing, WANG Fan, YUAN Yan, <i>et al.</i> (2947)
Extensive Green Roof Substrate Composition Based on Sludge Recycling	SHEN Qing-ran, LI Tian, CAO Yi, <i>et al.</i> (2953)
Short-term Effect of Roxithromycin on Abundance and Diversity of Ammonia-Oxidizing Microorganisms in Activated Sludge	GAO Jing-feng, SUN Li-xin, FAN Xiao-yan, <i>et al.</i> (2961)
Influence of Salinity on Microbial Community in Activated Sludge and Its Application in Simulated Dye Wastewater Treatment	ZHOU Gui-zhong, XU Shuo, YAO Qian, <i>et al.</i> (2972)
Shift of Microbial Communities During the CO ₂ -Brine-Sandstone Interaction Process	WANG Bo-qiang, LI Chen-yang, LU Wei, <i>et al.</i> (2978)
Response of Soil Respiration and Heterotrophic Respiration to Returning of Straw and Biochar in Rape-Maize Rotation Systems	TIAN Dong, GAO Ming, HUANG Rong, <i>et al.</i> (2988)
Effect of Simulated Climate Warming on Microbial Community and Phosphorus Forms in Wetland Soils	TENG Chang-yun, SHEN Jian-guo, WANG Zhong, <i>et al.</i> (3000)
Patterns of Bacterial Community Through Soil Depth Profiles and Its Influencing Factors Under <i>Betula albosinensis</i> Burkill in the Xinjiashan Forest Region of Qinling Mountains	DU Can, XU Chen-yang, WANG Qiang, <i>et al.</i> (3010)
Effects of Microbial Activities on Mercury Methylation in Farmland near Mercury Mining Area	JIA Qin, ZHU Xue-mei, WANG Qi, <i>et al.</i> (3020)
Effect of Sepiolite Application on the Migration and Redistribution of Pb and Cd in Soil Rice System in Soil with Pb and Cd Combined Contamination	FANG Zhi-ping, LIAO Min, ZHANG Nan, <i>et al.</i> (3028)
Application of Amphoteric-Cationic Combined Modification on Phenol Adsorption of Yellow Brown Soil	LIU Wei, MENG Zhao-fu, REN Shuang, <i>et al.</i> (3036)
Bioaccumulation of Heavy Metals in Twigs and Leaves of <i>Abies fabri</i> at Mount Gongga in China; A Comparison Study Between 1999 and 2014	LI Fen, WANG Xun, LUO Ji, <i>et al.</i> (3045)
Subcellular Distribution and Chemical Forms of Heavy Metals in Three Types of Compositae Plants from Lead-Zinc Tailings Area	ZHU Guang-xu, XIAO Hua-yun, GUO Qing-jun, <i>et al.</i> (3054)
Effects of Bentonite Amendment on Detoxification, Heavy Metal Passivation and Estrone Elimination of Sewage Sludge Compost	ZHOU Li-na, CAI Han-zhen, LI Rong-hua, <i>et al.</i> (3061)
Mesophilic and Thermophilic Anaerobic Co-Digestion of Food Waste and Straw	GUO Xiang-lin, ZUO Jian-e, SHI Xu-chuan, <i>et al.</i> (3070)
Basic Features of Combustible Rural Garbage Component and Its Spatial-temporal Difference in China	YAN Zhuo-yi, YUE Bo, GAO Hong, <i>et al.</i> (3078)
Optimization of Promoter and Support for Co-based/zeolites Catalysts in Catalytic Reduction of NO _x by CH ₄	PAN Hua, JIAN Yan-fei, CHEN Ning-na, <i>et al.</i> (3085)