

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第10期

Vol.38 No.10

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

中国城市热岛时空特征及其影响因子的分析	曹畅, 李旭辉, 张弥, 刘寿东, 徐家平 (3987)
卫星遥感在 NO ₂ 总量控制中的应用	武卫玲, 薛文博, 王燕丽, 雷宇 (3998)
京津冀城市群空气污染的模式总结与治理效果评估	王振波, 梁龙武, 林雄斌, 刘海猛 (4005)
南京北郊冬春季气溶胶数浓度变化特征分析	吴丹, 张璠, 刘刚, 吴明, 夏俊荣, 盖鑫磊, 李凤英, 杨孟 (4015)
冬季临安大气本底站气溶胶来源解析及其粒径分布特征	施双双, 王红磊, 朱彬, 林旭, 郭婷, 沙丹丹, 蒋琳, 张玉欣, 师远哲 (4024)
成都市大气颗粒物粒径分布及水溶性离子组成的季节变化特征	陶月乐, 李亲凯, 张俊, 李斯奇, 李晓东 (4034)
泉州市大气 PM _{2.5} 中水溶性离子季节变化特征及来源解析	张云峰, 于瑞莲, 胡恭任, 孙境蔚, 张棕巍, 许文质 (4044)
2011~2012 年北京大气 PM _{2.5} 中重金属的污染特征与来源分析	周雪明, 郑乃嘉, 李英红, 段菁春, 谭吉华, 张元勋, 贺克斌, 马永亮 (4054)
厦门海沧区 PM _{2.5} 中金属元素污染评价及来源分析	赵莉斯, 于瑞莲, 徐玲玲, 胡恭任, 吴鑫, 陈衍婷 (4061)
道路扬尘 PM _{2.5} 中金属元素污染特征及健康风险评估	张静, 张衍杰, 方小珍, 李凤华, 吴琳, 毛洪钧 (4071)
福建九仙山大气 PM ₁₀ 及部分化学组成的季节变化	魏雅, 林长城, 胡清华, 吴水平 (4077)
北京城区冬季空气污染时期 C2~C6 碳氢化合物含量特征	李月, 魏巍, 杨干, 陈东升, 程水源, 韩力慧 (4084)
2016 年北京市春节大气颗粒物污染特征激光雷达监测分析	石琳琳, 李令军, 李倩, 姜磊, 周一鸣, 李云婷, 刘保献, 张大伟 (4092)
廊坊市夏季臭氧体积分数影响因素及生成敏感性	李磊, 赵玉梅, 王旭光, 刘炜, 佟洁, 宋丽芸, 李怀瑞, 王清川 (4100)
人类活动对漓江地表水体水-岩作用的影响	赵海娟, 肖琼, 吴夏, 刘凡, 苗迎, 蒋勇军 (4108)
岩溶区水库冬季溶解有机质组成特征及来源:以桂林五里峡水库为例	卢晓斌, 彭文杰, 李强, 房君佳, 靳振江, 宋昂, 黄炳惠, 于爽 (4120)
岩溶关键带微量元素运移的时空变化:以豫西鸡冠洞为例	梁沙, 杨琰, 张娜, 孙喆, 张萍, 田宁, 凌新有, 任小敏 (4130)
龟石水库夏季富营养化状况与蓝藻水华暴发特征	苟婷, 马千里, 王振兴, 王丽, 姚玲爱, 许振成, 赵学敏, 梁荣昌, 蓝郁 (4141)
阿哈水库叶绿素 a 时空分布特征及其与藻类、环境因子的关系	罗宜富, 李磊, 李秋华, 焦树林, 李红梅, 陈峰峰 (4151)
天目湖沙水库浮游植物群落结构的时空异质性	孙祥, 朱广伟, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽, 史浩辰, 杭心语, 徐涤非 (4160)
程海沉积物重金属时空变化及人为污染与潜在生态风险	于真真, 刘恩峰, 张恩楼, 林琪, 沈吉, 王荣, 李艳玲 (4169)
自然降雨条件下红壤坡地磷素随径流垂向分层输出特征	左继超, 郑海金, 奚同行, 王凌云, 聂小飞, 刘昭 (4178)
邻苯二甲酸酯在三峡库区消落带非淹水期土壤中污染特征及健康风险	杨婷, 何明靖, 杨志豪, 魏世强 (4187)
滦河干流水体多环芳烃与有机氯农药季节性分布、组成及源解析	王乙震, 张世禄, 孔凡青, 袁媛 (4194)
潍坊滨海经济技术开发区饮用水中有机磷酸酯的水平及人体暴露风险评估	董政, 马玉龙, 李珺琪, 袁浩东, 金军, 王英 (4212)
道路灰尘中有机磷阻燃剂污染特征及人体暴露	李静, 王俊霞, 许婉婷, 尚荣双, 顾海东, 温耀进, 张丽君 (4220)
居民经手口途径摄入含 PAHs 颗粒物的致癌风险评价	佟瑞鹏, 杨校毅, 张磊, 程蒙召 (4228)
基于空间自相关的地下水脆弱性时空演变	刘宇, 兰双双, 张永祥, 李芳春, 侯树楷 (4236)
Ag-AgI/CN/MA 复合物的制备及其可见光催化性能	张塞, 张丽丽, 胡春 (4245)
凤眼莲对富营养化水体中氨氮化和反硝化微生物的影响	李洁, 蒋丽娟, 王晓琳, 肖琳 (4253)
利用含 Cu(II) 废水强化微生物燃料电池处理含 Cr(VI) 废水	熊晓敏, 吴夏芳, 贾红华, 雍晓雨, 周俊, 韦萍 (4262)
生态高负荷土地快速渗滤系统处理猪场废水的效能及微生态	宿程远, 刘凡凡, 钟余, 黄智, 郑鹏, 农志文, 卢宇翔 (4271)
细菌对城市污水中小球藻生长和油脂积累的影响	涂仁杰, 金文标, 韩松芳, 陈洪一 (4279)
污水处理厂消毒技术对抗生素抗性菌的强化去除	刘亚兰, 马岑鑫, 丁河舟, 邱勇, 李冰, 王硕, 李激 (4286)
AnMBR-A-MBR 和 A ² -MBR 工艺处理焦化废水效果与急性毒性物质特征对比	朱佳迪, 李菲菲, 陈吕军 (4293)
基于实时控制技术的 CANON 工艺稳定性运行	孙延芳, 韩晓宇, 张树军, 李星, 曹相生 (4302)
新型硫铁复合填料强化再生水深度脱氮除磷	周彦卿, 郝庆霞, 刘思远, 王雨沙 (4309)
连续流亚硝化中试反应器的启动及其能力提升	朱强, 刘凯, 董石语, 顾澄伟, 王凡, 李祥, 黄勇 (4316)
基于不同接种污泥复合型厌氧氨氧化反应器的快速启动特征	闫刚, 李田, 徐乐中, 沈耀良, 吴鹏, 张婷, Samwine Thomas (4324)
两段式曝气对好氧颗粒污泥脱氮性能的影响	王文啸, 卞伟, 王盟, 阚睿哲, 赵青, 梁东博, 李军 (4332)
醋糟高效厌氧消化体系构建	周云龙, 许之扬, 赵明星, 施万胜, 黄振兴, 何迪, 阮文权 (4340)
基于总量及形态的土壤重金属生态风险评价对比:以龙岩市适中镇为例	王蕊, 陈明, 陈楠, 刘冠男, 张二喜, 刘晓端, 张佳文 (4348)
锌冶炼区耕地土壤和农作物重金属污染状况及风险评价	陈凤, 董泽琴, 王程程, 韦雪花, 胡宇, 张丽娟 (4360)
三峡库区典型消落带 CH ₄ 排放的变化特征及影响因素	柴雪思, 郝庆菊, 黄哲, 范志伟, 江长胜 (4370)
地膜覆盖对菜地生态系统 N ₂ O 排放的影响	冯迪, 郝庆菊, 张凯莉, 石将来, 石孝均, 江长胜 (4380)
不同用量竹炭对污泥堆肥过程温室气体排放的影响	向秋洁, 杨雨洽, 张成, 相欣奕, 木志坚 (4390)
半固态培养条件下烟曲霉去除土壤中镉	陈耀宁, 汪元南, 黎媛萍, 李辉, 陈艳容, 伍艳馨, 苟宇, 朱福造, 张道利, 刘耀, 曾光明 (4398)
猪粪堆肥过程中金霉素去除及重金属形态变化	温沁雪, 曹永森, 陈志强 (4405)
堆肥-生物强化对重度石油污染土壤的修复作用	吴蔓莉, 陈凯丽, 叶茜琼, 祁燕云, 徐会宁, 王卓, 薛鹏飞, 朱常琳 (4412)
微生物多样性对土壤碳代谢特征的影响	安丽芸, 李君剑, 严俊霞, 李洪建 (4420)
冬小麦田 O ₃ 气孔与非气孔沉降及风险评估	徐静馨, 郑有飞, 赵辉, 储仲芳, 黄积庆, 袁月 (4427)
中国西南酸雨区降水化学特征研究进展	周晓得, 徐志方, 刘文景, 武瑶, 赵童, 蒋浩 (4438)
《环境科学》征稿简则 (4261) 《环境科学》征订启事 (4270) 信息 (4186, 4404, 4446)	

冬季临安大气本底站气溶胶来源解析及其粒径分布特征

施双双¹, 王红磊¹, 朱彬^{1*}, 林旭², 郭婷³, 沙丹丹¹, 蒋琳¹, 张玉欣¹, 师远哲¹

(1. 南京信息工程大学, 气象灾害教育部重点实验室, 气候与环境变化国际合作联合实验室, 气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室, 南京 210044; 2. 杭州市环境监测中心站, 杭州 310007; 3. 蚌埠市气象局, 蚌埠 233040)

摘要: 利用宽范围粒径谱仪(WPS)、EMS系统、KC-120H中流量采样器、850 professional IC型离子色谱分析仪和热/光碳分析仪(DRI2001A)分别观测了临安大气本底站2015年1月9~31日10 nm~10 μm 气溶胶数浓度粒径分布、常规污染气体浓度、 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度及水溶性离子和OC、EC的浓度, 利用PMF模式对 $\text{PM}_{2.5}$ 进行来源解析, 并分析了不同污染源下气溶胶粒子的谱分布及日变化特征。结果表明, 临安大气本底站大气气溶胶数浓度平均为 $5\,062\text{ cm}^{-3}\cdot\text{nm}^{-1}$, 主要集中在10~400 nm。 $\text{PM}_{2.5}$ 的平均浓度和 NO_2 、 SO_2 、CO的平均体积分数分别为 $123.6\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 22.6×10^{-9} 、 34.0×10^{-9} 和 2.2×10^{-6} 。水溶性离子以 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 为主, 平均浓度分别为19.2、15.4和 $10.8\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别占总水溶性离子的37.9%、30.4%、21.4%。OC和EC的平均浓度分别为 $24.4\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $6.6\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。冬季临安大气本底站 $\text{PM}_{2.5}$ 主要来自二次相关源、燃煤排放、机动车排放、扬尘和生物质燃烧, 贡献率分别为42.3%、21.4%、17.1%、8.7%和10.6%。不同来源气溶胶数浓度谱分布差异较大, 二次相关、机动车排放、扬尘和生物质燃烧气溶胶数浓度谱均为单峰型分布, 峰值分别位于120、50、100和90 nm。燃煤颗粒物数浓度谱分布为双峰型分布, 峰值分别位于25 nm和100 nm, 浓度为 $19\,842\text{ cm}^{-3}\cdot\text{nm}^{-1}$ 和 $18\,372\text{ cm}^{-3}\cdot\text{nm}^{-1}$ 。二次相关源、燃煤源、机动车排放、扬尘和生物质燃烧表面积浓度谱均为三峰型分布, 最大峰值分别位于650、210、160、180和575 nm。不同排放源气溶胶颗粒物数浓度和表面积浓度日变化特征基本一致, 多呈双峰型分布, 主要受边界层日变化和人类活动影响。

关键词: $\text{PM}_{2.5}$; 源解析; 正矩阵因子分解法(PMF); 粒径分布; 日变化特征

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)10-4024-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201703239

Source Apportionment and Size Distribution of Aerosols at Lin'an Atmosphere Regional Background Station During Winter

SHI Shuang-shuang¹, WANG Hong-lei¹, ZHU Bin^{1*}, LIN Xu², GUO Ting³, SHA Dan-dan¹, JIANG Lin¹, ZHANG Yu-xin¹, SHI Yuan-zhe¹

(1. Key Laboratory of Meteorological Disaster, Ministry of Education(KLME), Joint International Research Laboratory of Climate and Environment Change(ILCEC), Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 2. Hangzhou Environmental Monitoring Center, Hangzhou 310007, China; 3. Bengbu Meteorological Bureau, Bengbu 233040, China)

Abstract: Using a wide-range particle spectrometer (WPS), an environmental management system (EMS), KC-120H middle volume sampler, a 850 professional ion chromatography analyzer, and heat/light carbon analyzer (DRI2001A), we observed the number concentration of aerosols with sizes ranging from 10 nm to 10 μm , gas concentrations, and concentrations of $\text{PM}_{2.5}$, water-soluble ions, OC, and EC in a Lin'an atmospheric background station from January 9 to 31, 2015. The positive matrix factorization (PMF) model was applied for source apportionment, and the size distribution and diurnal variations of emission sources were analyzed based on the meteorological data. The average aerosol concentration was $5\,062\text{ cm}^{-3}\cdot\text{nm}^{-1}$ and $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration was $123.6\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. The average concentrations of NO_3^- , SO_4^{2-} , and NH_4^+ , the main water-soluble ions in $\text{PM}_{2.5}$ were 19.2, 15.4, and $10.8\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, which accounted for 37.9%, 30.4%, and 21.4% of total water-soluble ions, respectively. The average concentrations of OC and EC were $24.4\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ and $6.6\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Secondary aerosol formation, coal combustion, motor vehicle emissions, dust, and biomass burning were the main sources of $\text{PM}_{2.5}$ in Lin'an during winter with contributions of 42.3%, 21.4%, 17.1%, 8.7%, and 10.6%, respectively. Different sources had different aerosol number concentration distributions. The aerosol number concentration spectra of secondary sources, vehicle emissions, dust, and biomass burning followed unimodal-type distributions with peaks at 120, 50, 100, and 90 nm. Coal particle number concentration was a bimodal distribution which exhibited peak values at 25 nm and 100 nm ($19\,842$

收稿日期: 2017-03-27; 修订日期: 2017-04-28

基金项目: 国家自然科学基金项目(91544229); 国家重点研发计划项目(2016YFA0602003); 南京信息工程大学人才启动经费资助项目(2016r040)

作者简介: 施双双(1993~), 男, 硕士, 主要研究方向为大气环境与大气化学, E-mail: sss@nuist.edu.cn

* 通信作者, E-mail: binzhu@nuist.edu.cn

$\text{cm}^{-3} \cdot \text{nm}^{-1}$ and $18\,372 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{nm}^{-1}$, respectively). The spectra of surface concentrations of secondary sources, coal combustion, motor vehicle emissions, dust, and biomass burning followed a three-peak distribution. The peaks were at 650, 210, 160, 180, and 575 nm. The diurnal variations of particle number concentrations influenced by diurnal variations in the boundary layer and human activities were consistent with the variations in surface concentrations, which displayed bimodal-type distribution.

Key words: $\text{PM}_{2.5}$; source apportionment; positive matrix factorization (PMF); size distribution; diurnal variation

气溶胶是造成大气环境质量下降、能见度降低的主要原因,严重时甚至形成霾^[1],同时颗粒物通过散射吸收太阳辐射以及作为云凝结核影响地球辐射平衡^[2,3].颗粒物携带有毒物质进入人体后可能引发呼吸道、心血管等方面的疾病,危害人体健康^[4].鉴于气溶胶在环境、气候、健康等很多方面起着重要作用,连续监测气溶胶颗粒物谱分布及其日变化具有重要意义.气溶胶粒子在大气环境中的行为取决于其粒径大小及其谱分布特征,认识气溶胶颗粒物的粒径分布特征是研究气溶胶污染的基础^[5].

长三角地区作为全国经济繁荣的区域,大气气溶胶污染比较严重,冬季更甚.近些年开展了众多长三角地区气溶胶数浓度粒径分布及影响因素的研究^[6-12].尚倩等^[13]对南京冬季大气气溶胶粒子谱进行观测分析并且探讨了粒子谱对能见度的影响.苏捷等^[14]研究发现在重污染过程中积聚模态的气溶胶对 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度起决定作用.陈秋方等^[15]通过研究杭州连续霾天气和霾消退过程发现超细颗粒物是引起杭州霾污染的主要原因.同时也开展了对该区域气溶胶颗粒物来源解析的相关研究,如王苏蓉等^[16]利用 PMF 方法研究了南京市大气细颗粒物的来源,得出该市大气颗粒物主要来源有二次无机气溶胶(25.0%)、燃煤(23.5%)、机动车排放(20.4%)、地面扬尘(17.1%)、冶金(3.0%)和其他源(11.0%).杨东贞等^[17]进行了临安大气本底站气溶胶的特征分析,得出自然源主要来自地壳、土壤尘和海盐,人为源主要是煤飞灰、冶炼工业和道路机动车排放、废物处理、垃圾焚烧及建筑工业粉尘等. Hua 等^[18]通过研究长三角区域五个城市(上海、苏州、南京、杭州、宁波)的气溶胶特性,得出二次污染物和来自机动车与生物质燃烧的一次污染物是该区域 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要来源.目前大气颗粒物源解析在国内外都得到了广泛应用^[19-29].

虽然目前气溶胶颗粒物粒径分布研究和颗粒物的源解析研究已经相对成熟,但是根据源解析结果对主导排放源气溶胶粒径分布特征的研究较少,认识还不全面.因此,本研究主要利用 WPS、KC-120H 中流量采样器、热/光碳分析仪(DRI2001A)

和瑞士万通离子色谱仪观测分析了2015年1月9~31日气溶胶数浓度, $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度,以及 $\text{PM}_{2.5}$ 中的 OC、EC 与水溶性离子,结合 PMF 模型解析冬季临安大气本底站 $\text{PM}_{2.5}$ 的来源.同时本文根据 PMF 源解析结果分析各排放源主导下气溶胶颗粒物的数浓度谱分布和日变化特征,以期了解主要污染源颗粒物粒径分布特征和减少大气颗粒物污染提供一定的科学依据.

1 材料与方法

1.1 观测点和观测时间

临安大气本底站($30^{\circ}18'N$, $119^{\circ}44'E$,海拔高度为138.6 m),是我国最早建设的3个区域大气本底观测站之一,也是联合国世界气象组织全球大气观测网(GAW)区域大气本底站.其位于长三角腹地,代表长三角地区大气污染状况.该站东部约50 km处为杭州市,北部约100 km处是苏锡常等城市,上海市位于其东北方约200 km处.临安大气本底站周围约2 km内多为丘陵地区,植被覆盖良好.本实验采样时间为2015年1月9~31日.

1.2 观测仪器和分析方法

使用美国 MSP 公司生产的宽范围颗粒粒径谱仪(WPS)以5 min 时间分辨率对气溶胶数浓度进行观测,测量直径在0.01~10 μm 之间的气溶胶粒子数浓度.仪器原理介绍参见文献[30].由于 WPS 适应的环境湿度为0%~90%、非冷凝,根据观测的实施情况,经数据处理后剔除了部分无效数据,多于95%的数浓度数据可以利用.

KC-120H 型智能中流量采样器使用石英膜(美国 Pall 公司)对颗粒物进行采样,采样流量为100 $\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$,采样时长多为6 h,由于观测过程中出现不可控因素,部分样品采样时间稍有偏差,最后得到100个样本.滤膜采样前在马弗炉以800 $^{\circ}\text{C}$ 烘烤5 h 去除有机杂质,冷却至室温后放入恒温恒湿箱中平衡72 h,用十万分之一的精密电子天平称重后放入冰箱中低温保存.采样后将采样膜放入恒温恒湿箱中72 h,称重后同样将样品低温保存在冰箱中等待分析.

使用瑞士万通公司 850professional IC 型离子色

谱分析仪检测 10 种水溶性无机离子, 分别为: Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 F^- 、 Cl^- 、 NO_2^- 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} , 离子的检测限分别: 0.02、0.02、0.01、0.02、0.05、0.04、0.05、0.04、0.006 和 0.01 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 并筛选良好的数据. 阴、阳离子分离柱型号分别为 Supp5-150 和 Metrosep C4-150. 阳淋洗液为 1.7 $\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 HNO_3 溶液和 0.7 $\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 吡啶二羧酸水溶液. 阴淋洗液为 3.2 $\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 Na_2CO_3 溶液和 1.0 $\text{mmol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 NaHCO_3 溶液. 流速: 阴淋洗液为 0.7 $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$, 阳淋洗液为 0.9 $\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$, 进样体积为 10 mL. 仪器原理详见文献[31].

EC 和 OC 的分析采用美国沙漠研究所 (DRI) 研制的 DRI-2001A 热/光碳分析仪, 该仪器采用 IMPROVE 协议的热光反射法 (TOR) 进行检测, 详细的测量方法描述请见文献[32,33], 检出限 EC 为 0.20 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$, OC 为 0.82 $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$, 再根据有氧无氧加热时段不同的温度台阶分离出 OC1、OC2、OC3、OC4、EC1、EC2 和 EC3. EC3 由于含量较少, 本文不作考虑. EC、OC 数据测量控制采用美国沙漠所 (DRI) 质量控制标准[34].

SO_2 、 NO_x 和 CO 的观测均采用美国热电公司 EMS 系统, 型号分别为 43i 脉冲荧光法 SO_2 分析仪、Model 42i 化学发光法 NO - NO_2 - NO_x 分析仪、Model 48i 红外吸收法 CO 分析仪. 仪器主要参数参见文献[35].

1.3 PMF 模型基本原理

PMF (正矩阵因子分析) 由芬兰赫尔辛基大学的 Dr. Paatero 在 20 世纪 90 年代中期开发. 该模式已广泛地应用于空气质量中的源解析研究. 模式原理参见文献[36].

在 PMF 受体模型解析前需要对观测数据进行相应的处理, 主要包括观测样本中缺测、信噪比、零值和低值 (非 0 值) 个方面. 样本中缺测的数据采用了单个物种时间插值方法替换; 样本中物种浓度大于零且小于方法检测限 (MDL) 的低值用方法检测限的一半替换[37]. PMF 受体模型运算需要相应的不确定度 (uncertainty, UNC). UNC 的计算方法有很多种, 文中使用样品物种浓度的 0.05 倍与方法检测限之和的算法[38].

运用 PMF 模型结合颗粒物化学成分和气态污染物数据对冬季临安大气本底站 $\text{PM}_{2.5}$ 进行来源解析, 所得结果的物质残差大部分在 $-3.0 \sim 3.0$ 之间. 将信噪比低于 1 的物质定义为差 (bad), 信噪比在 1.0 ~ 4.0 之间的物质定义为弱 (weak), 大于

4.0 的定义为强 (strong), 模式直接使用. 在 PMF 分析不确定中, 使用 20 个基准运行 (base run), 并选择最小 Q 值所得的运行结果为基准运行的最终结果, 应用自助法运行 (bootstrap runs) 随机取 50 个样本及相关的 R 值为 0.6, 来检测基准运行的不确定性和稳定性, 所有引导因子达到 80% 符合. 选择不同的 F_{peak} 值, 从 $-1 \sim 1$, 步长 0.5, 然后分别运行得到对应的 Q 值, 以 Q 值对 F_{peak} 值作图, 图形为典型的“U”, 所得结果中 dQ 的值均小于 5%, 验证基准运行结果中 $Q(\text{robust})$ 值可以接受.

2 结果与讨论

2.1 污染物浓度分布与天气形势

图 1 所示, 观测期间临安大气气溶胶平均数浓度为 5062 $\text{cm}^{-3}\cdot\text{nm}^{-1}$, 主要集中在 10 ~ 400 nm, 占总数浓度的 97.8%. 其中数浓度谱图中红线代表 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度, 平均质量浓度为 123.6 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. $\text{PM}_{2.5}$ 中主要水溶性离子 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 平均浓度为 19.2、15.4 和 10.8 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别占总水溶性离子的 37.9%、30.4%、21.4%. OC 和 EC 的平均浓度分别为 24.4 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 6.6 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 观测期间主要污染气体 NO_2 、 SO_2 和 CO 的平均体积分数分别为 22.6×10^{-9} 、 34.0×10^{-9} 和 2.2×10^{-6} . 平均相对湿度 (RH) 为 76%, 平均温度 (T) 为 5.8℃, RH 与 T 之间存在反相关. 平均风速为 2.4 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, 以偏西和偏北风为主.

1 月中旬东亚大槽减弱东移至太平洋上空, 长三角地区受弱高压脊的控制, 冷空气势力弱, 1 月 9 ~ 11 日平均风速为 1.8 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, 天气相对静稳, $\text{PM}_{2.5}$ 平均浓度为 133.1 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 出现轻度污染. 1 月 13、14 日, 高原北部短波槽东移南下与南支槽合并, 配合低空西南气流的加强, 为浙江东部地区带来一次降水过程. 1 月 13、14 日气溶胶平均数浓度较 1 月 9 ~ 11 日平均数浓度下降 21.1%, 平均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度下降 48.1%, 化学成分 OC、EC、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 分别下降 46.7%、57.0%、59.1%、45.0% 和 41.4%.

1 月 15 日降水结束, 1 月 16 ~ 18 日天气转晴, 温度下降, 平均风速为 1.9 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, 颗粒物凝结增长后积累出现霾污染, 平均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度为 157.6 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 较 1 月 12 ~ 15 日增长 107.1%.

1 月 21 ~ 26 日长三角地区位于冷高压前的均压场中, 气压梯度小, 地面风速偏小, 在这种静稳形势下, 大气水平扩散能力较弱, 出现大范围霾污

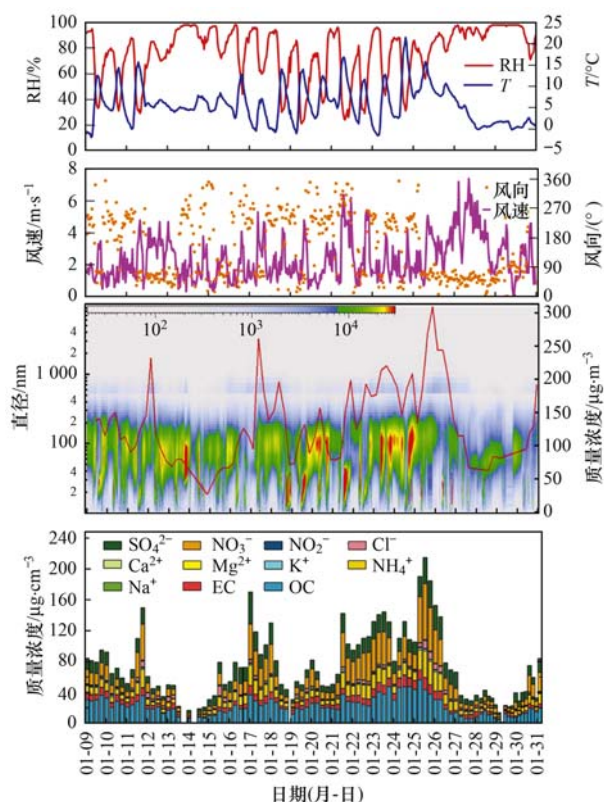
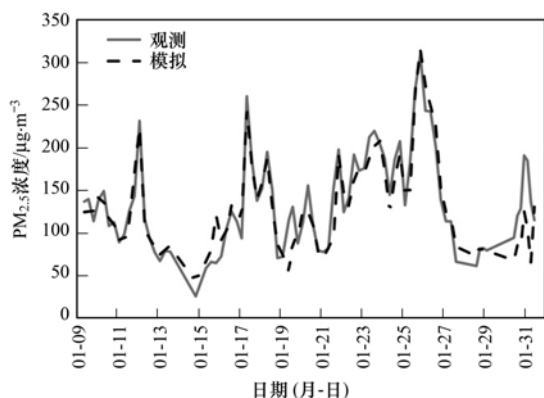


图1 污染物浓度与气象条件时间序列

Fig. 1 Time series of pollutant concentrations and meteorological conditions

染. 期间本底站平均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度较 1 月 19、20 日增长 98.0%, OC 、 EC 、 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 浓度分别增长 83.8%、83.9%、215.8%、245.1%、134.7%.

1 月 27~30 日随着西西伯利亚低槽东移南压, 引导冷空气南下, 污染过程结束. 高空短波槽东移过程中配合低层低涡切变线和低空急流, 出现大范围雨雪天气, 平均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度、 OC 、 EC 、 NH_4^+ 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 浓度较 1 月 21~26 日重污染时期分别下降 42.2%、62.2%、70.5%、61.7%、71.5% 和 52.4%.

图2 $\text{PM}_{2.5}$ 模拟值和观测值对比Fig. 2 Comparison of simulated and observed $\text{PM}_{2.5}$ values

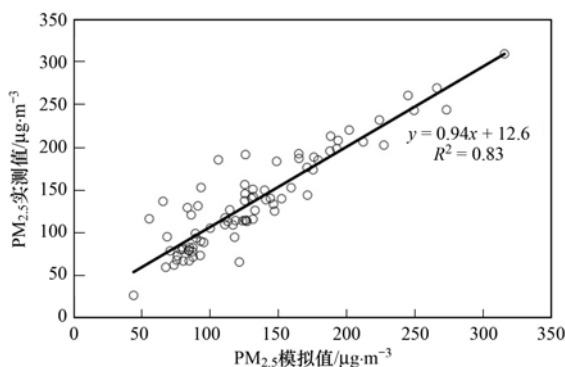
2.2 PMF 源解析结果

本研究通过多次运行程序, 实验不同因子参数和不确定性参数, 寻找最小目标函数值, 同时观察残差矩阵值, 使其尽可能小, 以此保证模拟结果和观测结果有较好的相关关系, 最终得到 5 类因子的贡献率和成分谱.

图 2 显示了实际观测与模型模拟的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度时间序列以及 $\text{PM}_{2.5}$ 模拟浓度与实测浓度的相关性. 模拟和观测的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度时间变化基本一致, 两者的相关性较高, R^2 达到 0.83, 模型的拟合性较好. 表明所选的 5 个因子能够很好地解释原始数据所包含的信息.

图 3 所示, 因子 1 主要由 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和有机碳等颗粒物化学组分组成, Yin 等^[39] 和 Viana 等^[40] 认为 NH_4^+ 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 这些无机离子代表着二次气溶胶. Pandis 等^[41] 研究发现经大气化学反应生成的二次有机物中含有有机碳成分. 气态污染物 SO_2 和 NO_2 与该因子相关, 可能参与了大气中气粒转化过程, 致使气粒变化趋势基本一致. 由于 PMF 源解析方法主要为最小二乘法, 没有相应的化学转化机理, 对大气中化学反应生成的 $\text{PM}_{2.5}$ 源解析还存在部分缺陷, Liu 等^[42] 运用 PMF 模型对北京夏季细颗粒物进行来源解析, 发现二次硫酸盐与 SO_4^{2-} 和 SO_2 密切相关, 二次硝酸盐与 NO_3^- 和 NO_2 密切相关, 本研究结果与之相符. 因此, 将因子 1 定性为二次相关源, 包括二次生成的无机气溶胶和有机气溶胶, 占比为 42.3%. 此外, 图 4(a) 显示本底站的西北方、偏东方对二次相关的颗粒物贡献较大, 对应的风速为 $3 \sim 4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 风速相对较大, 说明二次颗粒物主要来自西北方和偏东方地区的区域输送.

如图 3 所示, 因子 2 中 SO_4^{2-} 贡献较大, 其固态化学组分与燃煤排放颗粒物的化学成分一致. SO_2 、



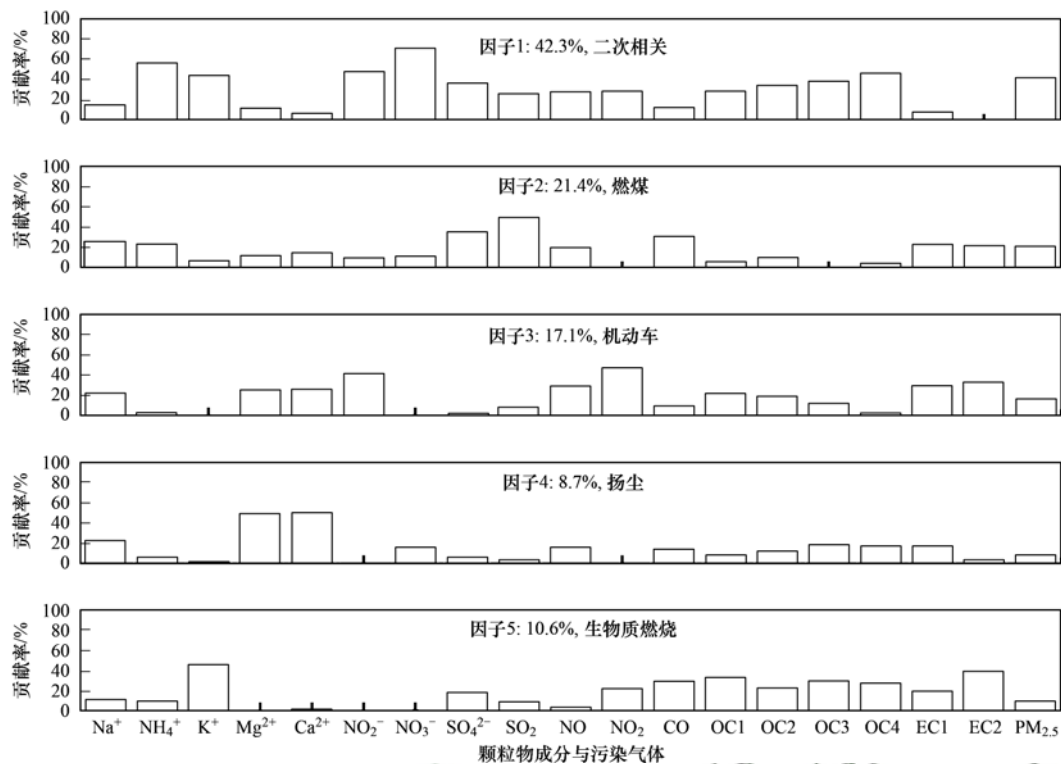


图3 不同因子化学成分与污染气体占比

Fig. 3 Contributions of component spectrum and gaseous species from different sources

NO_x 和 CO 与该因子密切相关,可能是由于燃煤燃烧所致. Tan 等^[43]在北京密云观测站的细颗粒物研究中指出,较高的 SO_2 是由于村庄的燃煤造成. 因此,因子2可认为是燃煤源,占比为 21.4%. 图 4(b)所示偏西风风速在 $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 左右对因子2存在贡献,与本底站偏西方的天屹工业园区和周边横畈工业园区相对应. 东北风风速为 $5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 左右,对因子2影响较大,说明东北方较远距离地区存在排放贡献. Zhuang 等^[44]和 Kerminen 等^[45]研究发现硫酸盐颗粒物可以通过本地或远距离排放的 SO_2 经过大气氧化过程形成,因此可认为该因子主要来源于临安本地排放和周边地区的区域输送.

因子3与污染气体 NO_x 密切相关, NO_2^- 和 EC2 等物质成分在该因子中所占比重较大. Ke 等^[46]给出了 PMF 模型中的示踪物,指出 EC2 主要由柴油车排放. Kang 等^[47]在一次南京严重霾污染的研究中指出 NO_x 与机动车排放密切相关. 因此,因子3可认为是机动车排放源,占比为 17.1%. 图 4(c)所示在西南风风速在 $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 左右机动车排放存在少量贡献,说明在西南方存在近距离排放源,与观测点南部东西走向的杭瑞高速相对应. 东北风风速在 $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 左右存在贡献,与观测站东北方相

对密集的交通网对应.

如图3所示,因子4中 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 的比重较大,分别为 48.7% 和 49.9%. Lestari 等^[48]在印度尼西亚爪哇岛西部城市万隆市干旱期的颗粒物源解析中指出 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 是扬尘的示踪物. 因此可认为主导因子4为扬尘源,占比为 8.7%. 图 4(d)所示该因子在观测点周边存在少量贡献,显示出本地源的特征.

因子5中 K^+ 的比重较大,为 46.4%,此外有机物在该因子中也存在一定的比重,EC2 和 CO 可能是不完全燃烧所致. 目前众多研究表明可溶性钾离子是生物质燃烧的重要指示物. Lee 等^[49]研究认为生物质燃烧气溶胶主要由有机物和钾离子等物质组成. 因此可将因子5定性为生物质燃烧源,占比为 10.6%. 图 4(e)所示偏南风 $1.5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 和偏北风 $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 左右存在贡献,可能与南北相对密集的村落有关.

2.3 不同排放源下气溶胶数浓度粒径分布特征

2.3.1 不同排放源下气溶胶数浓度谱和表面积浓度谱分布特征

根据 PMF 模型输出的不同时间段内各因子的贡献结果,若某一因子在某一时间段内的贡献超过 60%,则将该因子定义为该时间段内的主导因子.

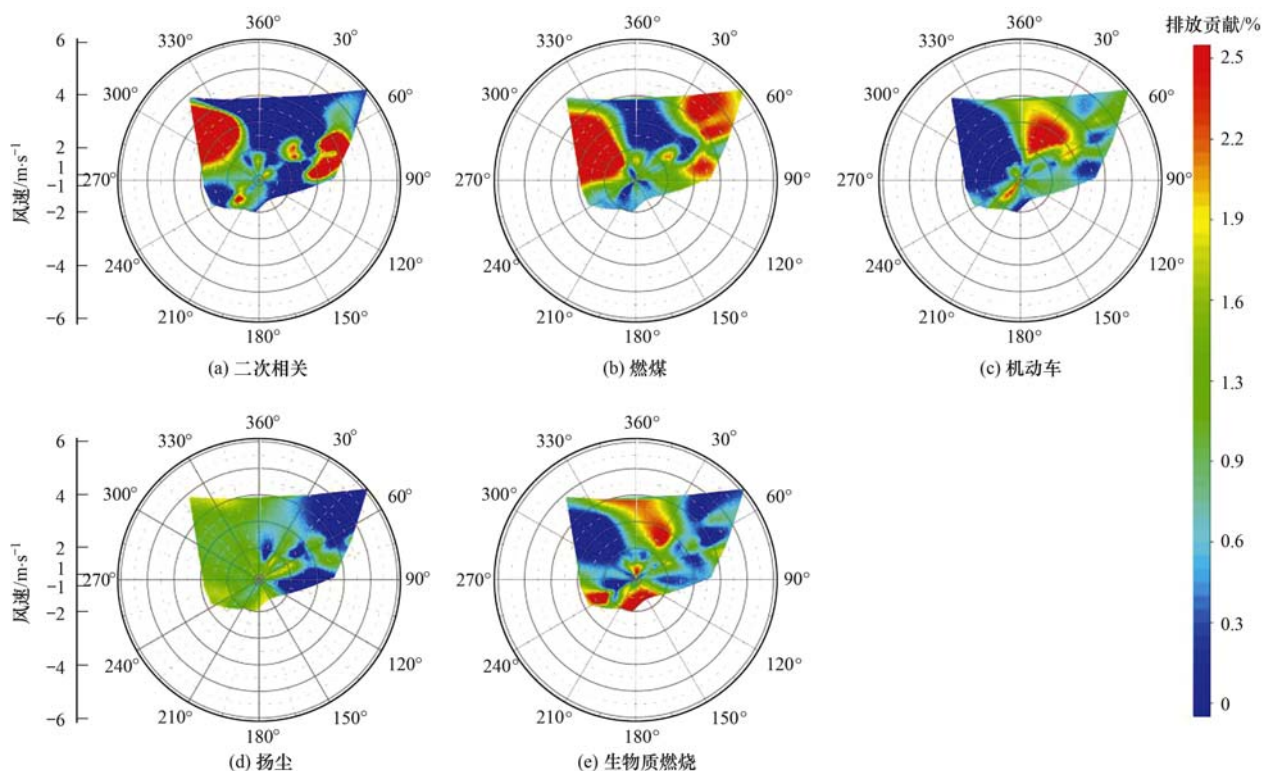


图4 到达监测点的各排放源排放贡献风速玫瑰图

Fig. 4 Contribution of each emission source to the rose diagram of the wind speed at the time it reaches the monitoring site

图5分别为不同主导因子数浓度谱、表面积浓度谱和粗粒径段气溶胶数浓度谱,其中二次相关源主导的颗粒物数浓度谱整体呈单峰分布,峰值出现在120 nm处,峰值浓度为 $7704 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{nm}^{-1}$ 。表面积浓度谱呈三峰分布,峰值粒径为210 nm、650 nm和 $1.3 \mu\text{m}$,在650 nm处峰值浓度达最大,为 $2038 \mu\text{m}^2 \cdot (\text{cm}^3 \cdot \text{nm})^{-1}$ 。颗粒物的吸湿和碰并增长导致其数浓度峰值较小,峰值粒径往大粒径方向偏移,表面积峰值浓度较大。Ogulei等^[50]研究发现这类颗粒物由于尺寸较小而不能惯性沉降,尺寸偏大不易扩散迁移,因此该类颗粒物能在大气中停留较长时间,可能在远方的反应地产生并积累。

燃煤排放主导的颗粒物数浓度谱整体呈双峰分布,峰值出现在25 nm和100 nm处。表面积浓度峰值粒径为210 nm和575 nm和 $1.3 \mu\text{m}$,在210 nm处峰值浓度达最大,为 $680 \mu\text{m}^2 \cdot (\text{cm}^3 \cdot \text{nm})^{-1}$ 。尺寸分布与Brock等^[51]对燃煤发电厂所排放烟羽的观测结果相似。白天由于本地与周边地区燃煤排放,大气中的 SO_2 被已存在的颗粒物吸附并经过大气氧化过程形成硫酸盐,经过老化,颗粒物相对较大,主要集中在100 nm处。

机动车排放主导的颗粒物数浓度谱整体呈现单

峰分布,峰值粒径较小,出现在50 nm处,峰值为 $18944 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{nm}^{-1}$ 。表面积浓度峰值粒径为160 nm、575 nm和 $1.3 \mu\text{m}$,在160 nm处峰值浓度达最大,为 $575 \mu\text{m}^2 \cdot (\text{cm}^3 \cdot \text{nm})^{-1}$ 。Harris等^[52]研究发现机动车排放的颗粒物尺寸范围大约在40~50 nm,本研究结果与之相符。

扬尘主导的颗粒物数浓度谱呈单峰分布,峰值粒径出现在100 nm处,峰值浓度为 $9510 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{nm}^{-1}$ 。表面积浓度呈三峰分布,峰值粒径为174 nm、575 nm和 $1.3 \mu\text{m}$ 。在180 nm处峰值浓度最大为 $587 \mu\text{m}^2 \cdot (\text{cm}^3 \cdot \text{nm})^{-1}$ 。马新成等^[53]通过对北京地区沙尘天气气溶胶观测发现扬尘天气下粒子谱峰值主要集中在0.1~0.3 μm 的细粒子段,随后在2.8 μm 处出现一弱峰。图5所示扬尘主导的颗粒物数浓度在2.8 μm 处峰值浓度最大。

生物质燃烧主导的颗粒物数浓度谱呈单峰分布,峰值粒径出现在90 nm处,峰值浓度为 $12772 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{nm}^{-1}$ 。王振等^[54]研究南京市市区大气颗粒物的粒径谱发现生物质燃烧源的数浓度峰值出现在70~100 nm,本研究结果与之相符。表面积浓度谱主要呈三峰分布,峰值粒径为210 nm、575 nm和 $1.3 \mu\text{m}$ 。在575 nm处峰值浓度最大,为 $853 \mu\text{m}^2 \cdot (\text{cm}^3 \cdot \text{nm})^{-1}$ 。

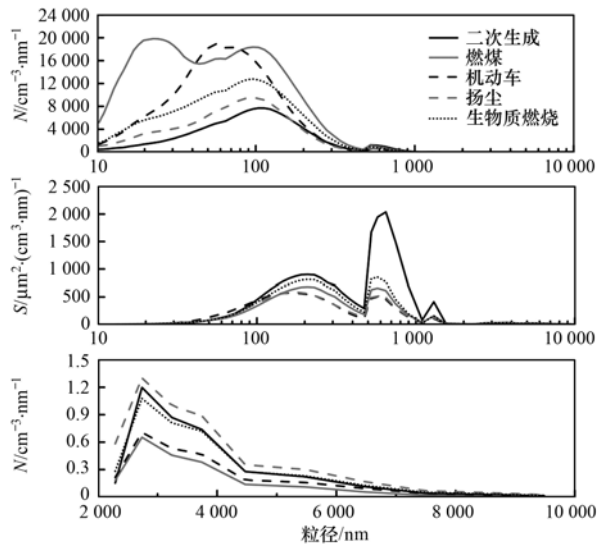


图5 主导因子数浓度、表面积浓度特征谱

Fig. 5 Number concentrations and surface concentrations of dominant factors

2.3.2 不同排放源下气溶胶数浓度和表面积浓度日变化特征

图6给出了5个排放源主导下气溶胶的平均日变化分布,其中核模态、爱根核模态、积聚模态和粗模态的粒径范围分别为10~20 nm、20~100 nm、100 nm~1 μm、1~10 μm。由图6发现不同排放源主导下核模态粒子的日变化比较杂乱,没有明显的变化规律。其中燃煤排放主导的核模态粒子在12:00左右出现峰值,可能由于太阳辐射强烈,发生光化学反应,有新粒子生成,导致核模态粒子数浓度突增。不同排放源爱根核模态粒子数浓度大致

呈双峰分布,峰值出现在06:00~08:00和16:00~19:00,峰值出现时间要滞后于核模态1~2 h,且在13:00~19:00之间数浓度较高,一方面爱根核模态粒子来源于核模态粒子的老化增长,另一方面爱根核模态粒子还受早晚人类活动排放影响。不同排放源积聚模态粒子日变化差异较大,其中二次相关的颗粒物数浓度在09:00之后一直保持较高的浓度,主要由于白天二次颗粒物不断生成,晚上边界层较平稳,易于颗粒物积聚。其他排放源积聚模态粒子日变化大致呈双峰分布,出峰时间存在差异,但是普遍滞后于爱根核模态粒子。粗模态粒子主要由于机械运动产生,在大气中存在时间较短,可发现粗模态粒子数浓度日变化无明显规律。其中二次相关的颗粒物粗模态在夜晚浓度较大,主要由于夜晚边界层高度较低,大气相对稳定,易于颗粒物碰并增长而积聚。其他排放源粗模态粒子在早晚出现弱峰,主要由人类活动引起。

图7给出了5个排放源主导下气溶胶核模态、爱根核模态、积聚模态和粗模态的表面积浓度日变化。不同模态下表面积浓度多呈双峰分布。由图6可知数浓度主要集中在爱根核模态,其次是积聚模态和核模态,而表面积浓度主要集中在积聚模态,其次是爱根核模态,核模态粒子对表面积浓度贡献较小。由图7发现不同模态下粒子表面积浓度日变化特征与数浓度的日变化特征基本一致,造成不同排放源主导下颗粒物表面积浓度差异的原因与数浓度差异的原因一致,在此不再赘述。

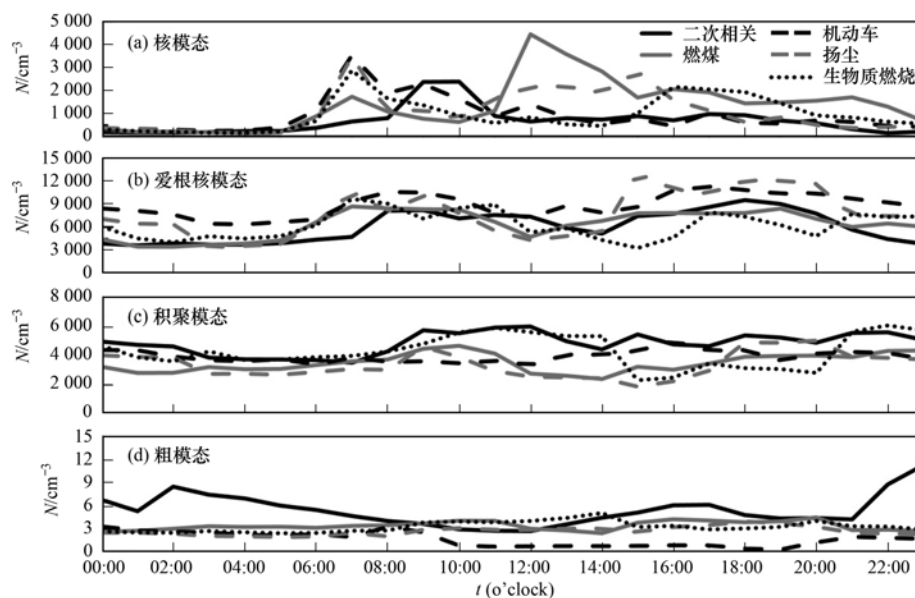


图6 不同排放源主导下的不同模态数浓度日变化特征

Fig. 6 Diurnal variations in number concentrations contributed by each emission source

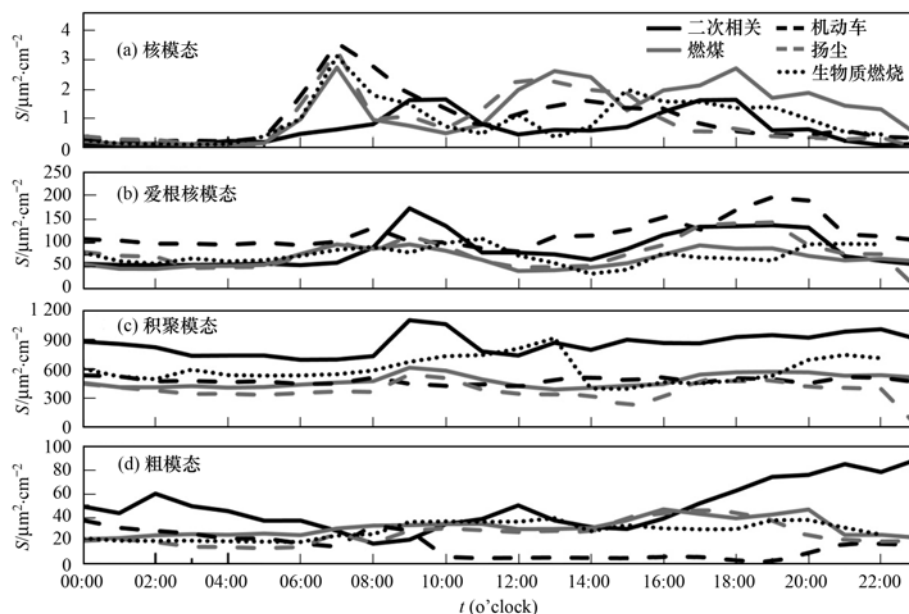


图7 不同排放源主导下的不同模式表面积浓度日变化特征

Fig. 7 Diurnal variations in surface concentrations contributed by different emission sources

3 结论

(1) 观测期间临安大气气溶胶平均数浓度为 $5\,062\text{ cm}^{-3}\cdot\text{nm}^{-1}$, 主要集中在 $10\sim 400\text{ nm}$. 平均 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度为 $123.6\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 主要水溶性离子 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 平均浓度为 19.2 、 15.4 和 $10.8\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别占总水溶性离子的 37.9% 、 30.4% 、 21.4% . OC 和 EC 的平均浓度分别为 $24.4\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $6.6\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 主要污染气体 NO_2 、 SO_2 和 CO 的平均体积分数分别为 22.6×10^{-9} 、 34.0×10^{-9} 和 2.2×10^{-6} .

(2) 二次相关、燃煤排放、机动车排放、扬尘和生物质燃烧是冬季临安大气本底站 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要来源, 对 $\text{PM}_{2.5}$ 总质量分别贡献 42.3% 、 21.4% 、 17.1% 、 8.7% 和 10.6% . 生物质燃烧与扬尘显示出本地源的特征, 燃煤、机动车排放和二次相关颗粒物都显示出本地排放和区域传输的特征.

(3) 不同来源气溶胶数浓度谱差异较大, 二次相关源、机动车排放源、扬尘和生物质燃烧数浓度谱呈单峰分布, 峰值粒径分别为 120 、 50 、 100 和 90 nm . 燃煤颗粒物数浓度谱呈双峰分布, 峰值粒径为 25 nm 和 100 nm . 不同来源气溶胶表面积浓度谱均呈三峰分布, 二次相关源、燃煤源、机动车排放源、扬尘和生物质燃烧表面积浓度最大峰值粒径分别为 650 、 210 、 160 、 180 和 575 nm .

(4) 不同排放源主导的气溶胶颗粒物数浓度和表面积浓度日变化特征基本一致, 核模态和粗模态

颗粒物数浓度和表面积浓度日变化无明显规律, 爱根核模态和积聚模态颗粒物数浓度和表面积浓度日变化多呈双峰分布, 主要受边界层日变化和人类活动影响.

致谢: 感谢临安大气本底污染检测站的技术人员在现场观测中的大力协助.

参考文献:

- [1] Deng X J, Tie X X, Wu D, *et al.* Long-term trend of visibility and its characterizations in the Pearl River Delta (PRD) region, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42** (7): 1424-1435.
- [2] Charlson R J, Schwartz S E, Hales J M, *et al.* Climate forcing by anthropogenic aerosols [J]. *Science*, 1992, **255** (5043): 423-430.
- [3] Pöschl U. Atmospheric aerosols: composition, transformation, climate and health effects [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2005, **44** (46): 7520-7540.
- [4] Nel A. Air pollution-related illness: effects of particles [J]. *Science*, 2005, **308** (5723): 804-806.
- [5] 胡敏, 刘尚, 吴志军, 等. 北京夏季高温高湿和降水过程对大气颗粒物谱分布的影响 [J]. *环境科学*, 2006, **27** (11): 2293-2298.
- [6] 谢小芳, 孙在, 付志民, 等. 杭州市大气超细颗粒物数浓度谱季节性特征 [J]. *环境科学*, 2013, **34** (2): 434-440.
- [7] 王红磊, 朱彬, 沈利娟, 等. 春节期间南京市大气气溶胶粒径分布特征 [J]. *环境科学*, 2014, **35** (2): 442-450.

- Wang H L, Zhu B, Shen L J, *et al.* Size distributions of aerosol during the spring festival in Nanjing[J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(2): 442-450.
- [8] 崔虎雄, 任小龙, 张华. 上海市浦东城区冬季颗粒物数浓度及其谱分布特征[J]. *中国环境监测*, 2014, **30**(6): 62-66.
- Cui H X, Ren X L, Zhang H, *et al.* Size distribution properties of atmospheric aerosol particles during winter in the downtown of Pudong, Shanghai[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2014, **30**(6): 62-66.
- [9] 沈利娟, 王红磊, 吕升, 等. 嘉兴市春季PM_{2.5}主要污染气体和气溶胶粒径分布的周末效应[J]. *环境科学*, 2015, **36**(12): 4348-4357.
- Shen L J, Wang H L, Lü S, *et al.* Weekend effect in distributions of particulate matters, main gas pollutants and aerosol size in spring of Jiaxing[J]. *Environment Science*, 2015, **36**(12): 4348-4357.
- [10] 姚剑, 王广华, 林俊, 等. 上海市大气颗粒物与能见度的关系[J]. *气象与环境学报*, 2010, **26**(4): 17-21.
- Yao J, Wang G H, Lin J, *et al.* Relationships between atmospheric particles and visibility in Shanghai[J]. *Journal of Meteorology and Environment*, 2010, **26**(4): 17-21.
- [11] 王飞, 朱彬, 康汉清, 等. ASP-SMPS-WPS 对南京夏季气溶胶数浓度的对比观测[J]. *中国环境科学*, 2011, **31**(9): 1416-1423.
- Wang F, Zhu B, Kang H Q, *et al.* Comparative observations on summer aerosol number concentration measured by APS-SMPS-WPS in Nanjing area[J]. *China Environmental Science*, 2011, **31**(9): 1416-1423.
- [12] 王红磊, 朱彬, 沈利娟, 等. 南京市夏季大气气溶胶新粒子生成事件分析[J]. *环境科学*, 2012, **33**(3): 701-710.
- Wang H L, Zhu B, Shen L J, *et al.* Atmospheric particle formation events in Nanjing during summer 2010 [J]. *Environmental Science*, 2012, **33**(3): 701-710.
- [13] 尚倩, 李子华, 杨军, 等. 南京冬季大气气溶胶粒子谱分布及其对能见度的影响[J]. *环境科学*, 2011, **32**(9): 2750-2760.
- Shan Q, Li Z H, Yang J, *et al.* Size distributions of aerosol particles and the impact on visibility in winter of Nanjing[J]. *Environmental Science*, 2011, **32**(9): 2750-2760.
- [14] 苏捷, 赵普生, 陈一娜. 北京地区不同天气条件下气溶胶数浓度粒径分布特征研究[J]. *环境科学*, 2016, **37**(4): 1208-1218.
- Su J, Zhao P S, Chen Y N. Characteristics of number concentration size distributions of aerosols under different weather processes in Beijing[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(4): 1208-1218.
- [15] 陈秋方, 孙在, 谢小芳. 杭州灰霾天气超细颗粒浓度分布特征[J]. *环境科学*, 2014, **35**(8): 2851-2856.
- Chen Q F, Sun Z, Xie X F. Distribution of atmospheric ultrafine particles during haze weather in Hangzhou [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(8): 2851-2856.
- [16] 王苏蓉, 喻义勇, 王勤耕, 等. 基于 PMF 模式的南京市大气细颗粒物源解析[J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(12): 3535-3542.
- Wang S R, Yu Y Y, Wang Q G, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} in Nanjing by PMF[J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(12): 3535-3542.
- [17] 杨东贞, 颜鹏, 张养梅, 等. WMO 区域本底站气溶胶特征分析[J]. *第四纪研究*, 2006, **26**(5): 733-741.
- Yang D Z, Yan P, Zhang Y M, *et al.* Aerosol properties at Lin'an WMO background station [J]. *Quaternary Sciences*, 2006, **26**(5): 733-741.
- [18] Hua Y, Cheng Z, Wang S X, *et al.* Characteristics and source apportionment of PM_{2.5} during a fall heavy haze episode in the Yangtze River Delta of China[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **123**: 380-391.
- [19] Gao B, Guo H, Wang X M, *et al.* Tracer-based source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} in Guangzhou, southern China, using positive matrix factorization (PMF) [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2013, **20**(4): 2398-2409.
- [20] 银燕, 童尧青, 魏玉香, 等. 南京市大气细颗粒物化学成分分析[J]. *大气科学学报*, 2009, **32**(6): 723-733.
- Yin Y, Tong Y Q, Wei Y X, *et al.* The analysis of chemistry composition of fine-mode Particles in Nanjing[J]. *Transactions of Atmospheric Sciences*, 2009, **32**(6): 723-733.
- [21] 樊曙先, 徐建强, 郑有飞, 等. 南京市气溶胶PM_{2.5}一次来源解析[J]. *气象科学*, 2005, **25**(6): 587-593.
- Fan S X, Xu J Q, Zheng Y F, *et al.* A sources apportionment of aerosols PM_{2.5} over the urban and suburb areas of Nanjing [J]. *Scientia Meteorologica Sinica*, 2005, **25**(6): 587-593.
- [22] 丁铭, 郁建桥, 程真, 等. 南京市PM_{2.5}颗粒物来源探析[J]. *环境科技*, 2014, **27**(4): 23-26.
- Ding M, Yu J Q, Cheng Z, *et al.* Analysis of PM_{2.5} ambient particulars emission source of Nanjing [J]. *Environmental Science and Technology*, 2014, **27**(4): 23-26.
- [23] 杨卫芬, 银燕, 魏玉香, 等. 霾天气下南京PM_{2.5}中金属元素污染特征及来源分析[J]. *中国环境科学*, 2010, **30**(1): 12-17.
- Yang W F, Yin Y, Wei Y X, *et al.* Characteristics and sources of metal elements in PM_{2.5} during hazy days in Nanjing [J]. *China Environmental Science*, 2010, **30**(1): 12-17.
- [24] Gu J W, Pitz M, Schnelle-Kreis J, *et al.* Source apportionment of ambient particles: comparison of positive matrix factorization analysis applied to particle size distribution and chemical composition data [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(10): 1849-1857.
- [25] Harrison R M, Beddows D C S, Dall'Osto M. PMF analysis of wide-range particle size spectra collected on a major highway[J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(13): 5522-5528.
- [26] Kim E, Hopke P K, Larson T V, *et al.* Analysis of ambient particle size distributions using unmix and positive matrix factorization[J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(1): 202-209.
- [27] Krecl P, Larsson E H, Ström J, *et al.* Contribution of residential wood combustion and other sources to hourly winter aerosol in Northern Sweden determined by positive matrix factorization[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, **8**(13): 3639-3653.
- [28] Sofowote U M, Su Y S, Dabek-Zlotorzynska E, *et al.* Sources and temporal variations of constrained PMF factors obtained from multiple-year receptor modeling of ambient PM_{2.5} data from five speciation sites in Ontario, Canada [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **108**: 140-150.

- [29] Xie S D, Liu Z, Chen T, *et al.* Spatiotemporal variations of ambient PM_{10} source contributions in Beijing in 2004 using positive matrix factorization [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, **8**(10): 2701-2716.
- [30] Gao J, Wang T, Zhou X H, *et al.* Measurement of aerosol number size distributions in the Yangtze River delta in China: formation and growth of particles under polluted conditions[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(4): 829-836.
- [31] 张秋晨, 朱彬, 苏继峰, 等. 南京 3 类不同大气污染过程下气溶胶水溶性无机离子的特征研究[J]. *环境科学*, 2012, **33**(6): 1944-1951.
Zhang Q C, Zhu B, Su J F, *et al.* Characteristics of aerosol water-soluble inorganic ions in three types air pollution incidents of Nanjing city [J]. *Environmental Science*, 2012, **33**(6): 1944-1951.
- [32] 黄虹, 李顺诚, 曹军骥, 等. 气溶胶有机碳元素碳基本特征研究的前沿动向[J]. *环境科学与技术*, 2005, **28**(3): 112-114.
Huang H, Li S C, Cao J J, *et al.* Review and prospect on characteristics of organic and elemental carbon in aerosol [J]. *Environmental Science and Technology*, 2005, **28**(3): 112-114.
- [33] 李建军, 沈振兴, 同帆, 等. 西安冬春季 PM_{10} 中碳气溶胶的昼夜变化特征[J]. *环境科学*, 2009, **30**(5): 1506-1513.
Li J J, Shen Z X, Tong Z, *et al.* Day-night variation of carbonaceous aerosols in PM_{10} during winter and spring over Xi'an [J]. *Environmental Science*, 2009, **30**(5): 1506-1513.
- [34] 李杏茹, 王英锋, 郭雪清, 等. 2008 年奥运会期间北京不同粒径大气颗粒物中元素碳和有机碳的变化特征[J]. *环境科学*, 2011, **32**(2): 313-318.
Li X R, Wang Y F, Guo X Q, *et al.* Size distribution and characterization of EC and OC in aerosols during the Olympics of Beijing, China [J]. *Environmental Science*, 2011, **32**(2): 313-318.
- [35] 李月清, 朱彬, 安俊琳. 长光程与传统点式污染气体监测技术对比[J]. *南京信息工程大学学报(自然科学版)*, 2011, **3**(2): 128-136.
Li Y Q, Zhu B, An J L. A comparative of long-path and traditional point atmospheric pollutants monitoring techniques [J]. *Journal of Nanjing University of Information Science and Technology (Natural Science Edition)*, 2011, **3**(2): 128-136.
- [36] EPA/600/R-14/108, EPA positive matrix factorization (PMF) 5.0 fundamentals and user guide[S].
- [37] Ramadan Z, Song X H, Hopke P K. Identification of sources of Phoenix aerosol by positive matrix factorization[J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2000, **50**(8): 1308-1320.
- [38] Reff A, Eberly S I, Bhawe P V. Receptor modeling of ambient particulate matter data using positive matrix factorization: review of existing methods[J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2007, **57**(2): 146-154.
- [39] Yin J, Allen A G, Harrison R M, *et al.* Major component composition of urban PM_{10} and $PM_{2.5}$ in Ireland[J]. *Atmospheric Research*, 2005, **78**(3-4): 149-165.
- [40] Viana M, Kuhlbusch T A J, Querol X, *et al.* Source apportionment of particulate matter in Europe: a review of methods and results[J]. *Journal of Aerosol Science*, 2008, **39**(10): 827-849.
- [41] Pandis S N, Harley R A, Cass G R, *et al.* Secondary organic aerosol formation and transport[J]. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1992, **26**(13): 2269-2282.
- [42] Liu Z R, Hu B, Liu Q, *et al.* Source apportionment of urban fine particle number concentration during summertime in Beijing [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **96**: 359-369.
- [43] Tan J H, Duan J C, Chai F H, *et al.* Source apportionment of size segregated fine/ultrafine particle by PMF in Beijing [J]. *Atmospheric Research*, 2014, **139**: 90-100.
- [44] Zhuang H, Chan C K, Fang M, *et al.* Size distributions of particulate sulfate, nitrate, and ammonium at a coastal site in Hong Kong[J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(6): 843-853.
- [45] Kerminen V M, Pirjola L, Boy M, *et al.* Interaction between SO_2 and submicron atmospheric particles [J]. *Atmospheric Research*, 2000, **54**(1): 41-57.
- [46] Ke L, Liu W, Wang Y H, *et al.* Comparison of $PM_{2.5}$ source apportionment using positive matrix factorization and molecular marker-based chemical mass balance[J]. *Science of the Total Environment*, 2008, **394**(2-3): 290-302.
- [47] Kang H Q, Zhu B, Su J F, *et al.* Analysis of a long-lasting haze episode in Nanjing, China [J]. *Atmospheric Research*, 2013, **120-121**: 78-87.
- [48] Lestari P, Mauliadi Y D. Source apportionment of particulate matter at urban mixed site in Indonesia using PMF [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(10): 1760-1770.
- [49] Lee A K Y, Willis M D, Healy R M, *et al.* Single-particle characterization of biomass burning organic aerosol (BBOA): evidence for non-uniform mixing of high molecular weight organics and potassium[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discuss*, 2015, **15**(22): 32157-32183.
- [50] Ogulei D, Hopke P K, Zhou L M, *et al.* Source apportionment of Baltimore aerosol from combined size distribution and chemical composition data [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(S2): 396-410.
- [51] Brock C A, Washenfeller R A, Trainer M, *et al.* Particle growth in the plumes of coal-fired power plants [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2002, **107**(D12): 4155.
- [52] Harris S J, Maricq M M. Signature size distributions for diesel and gasoline engine exhaust particulate matter[J]. *Journal of Aerosol Science*, 2001, **32**(6): 749-764.
- [53] 马新成, 毕凯, 田海军, 等. 北京地区沙尘天气气溶胶飞机观测特征[J]. *气象科技*, 2016, **44**(1): 95-103.
Ma X C, Bi K, Tian H J, *et al.* Aircraft measurements of aerosol characteristics during dust events in Beijing [J]. *Meteorological Science and Technology*, 2016, **44**(1): 95-103.
- [54] 王振, 马嫣, 郑军, 等. 基于粒径谱分布的南京市大气颗粒物来源解析[J]. *环境化学*, 2015, **34**(9): 1619-1626.
Wang Z, Ma Y, Zheng J, *et al.* Source apportionment of aerosols in urban Nanjing based on particle size distribution [J]. *Environmental Chemistry*, 2015, **34**(9): 1619-1626.

CONTENTS

Correlation Analysis of the Urban Heat Island Effect and Its Impact Factors in China	CAO Chang, LI Xu-hui, ZHANG Mi, <i>et al.</i> (3987)
Application of Satellite Remote Sensing in NO _x Emission Control	WU Wei-ling, XUE Wen-bo, WANG Yan-li, <i>et al.</i> (3998)
Control Models and Effect Evaluation of Air Pollution in Jing-Jin-Ji Urban Agglomeration	WANG Zhen-bo, LIANG Long-wu, LIN Xiong-bin, <i>et al.</i> (4005)
Pollution Characteristics of Aerosol Number Concentration in Winter and Spring in a Northern Suburb of Nanjing	WU Dan, ZHANG Fan, LIU Gang, <i>et al.</i> (4015)
Source Apportionment and Size Distribution of Aerosols at Lin'an Atmosphere Regional Background Station During Winter	SHI Shuang-shuang, WANG Hong-lei, ZHU Bin, <i>et al.</i> (4024)
Seasonal Variations in Particle Size Distribution and Water-soluble Ion Composition of Atmospheric Particles in Chengdu	TAO Yue-le, LI Qin-kai, ZHANG Jun, <i>et al.</i> (4034)
Seasonal Variation and Source Apportionment of Water-Soluble Ions in PM _{2.5} in Quanzhou City	ZHANG Yun-feng, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (4044)
Chemical Characteristics and Sources of Heavy Metals in Fine Particles in Beijing in 2011-2012	ZHOU Xue-ming, ZHENG Nai-jia, LI Ying-hong, <i>et al.</i> (4054)
Pollution Assessment and Source Analysis of Metals in PM _{2.5} in Haicang District, Xiamen City, China	ZHAO Li-si, YU Rui-lian, XU Ling-ling, <i>et al.</i> (4061)
Characteristics and Health Risk Assessment of Metallic Elements in PM _{2.5} Fraction of Road Dust	ZHANG Jing, ZHANG Yan-jie, FANG Xiao-zhen, <i>et al.</i> (4071)
Seasonal Variations in PM ₁₀ and Associated Chemical Species in Jiuxian Mountain in Fujian Province	WEI Ya, LIN Chang-cheng, HU Qing-hua, <i>et al.</i> (4077)
Characteristics of C2-C6 Hydrocarbons During the Winter Air Pollution Period in Beijing Urban Area	LI Yue, WEI Wei, YANG Gan, <i>et al.</i> (4084)
Analysis of Atmospheric Particulate Matter Pollution Characteristics by LIDAR in Beijing During Spring Festival, 2016	SHI Lin-lin, LI Ling-jun, LI Qian, <i>et al.</i> (4092)
Influence Factors and Sensitivity of Ozone Formation in Langfang in the Summer	LI Lei, ZHAO Yu-mei, WANG Xu-guang, <i>et al.</i> (4100)
Impact of Human Activities on Water-Rock Interactions in Surface Water of Lijiang River	ZHAO Hai-juan, XIAO Qiong, WU Xia, <i>et al.</i> (4108)
Distinguishing the Properties and Sources of the Dissolved Organic Matter in Karst Reservoir Water During Winter Using Three-Dimensional Fluorescence Spectrum Technology: A Case Study in Wulixia Reservoir of Guangxi Province	LU Xiao-xuan, PENG Wen-jie, LI Qiang, <i>et al.</i> (4120)
Analysis of Temporal and Spatial Variations in Trace Element Migration in Karst Critical Zone: An Example of Jiguan Cave, Henan	LIANG Sha, YANG Yan, ZHANG Na, <i>et al.</i> (4130)
Eutrophication and Characteristics of Cyanobacteria Bloom in the Summer in Guishi Reservoir	GOU Ting, MA Qian-li, WANG Zhen-xing, <i>et al.</i> (4141)
Spatial and Temporal Distribution of Chlorophyll a and Its Relationship to Algae and Environmental Factors in Aha Reservoir	LUO Yi-fu, LI Lei, LI Qiu-hua, <i>et al.</i> (4151)
Spatio-temporal Variations in Phytoplankton Community in Shahe Reservoir, Tianmuhu, China	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, YANG Wen-bin, <i>et al.</i> (4160)
Spatio-temporal Variations, Contamination and Potential Ecological Risk of Heavy Metals in the Sediments of Chenghai Lake	YU Zhen-zhen, LIU En-feng, ZHANG En-lou, <i>et al.</i> (4169)
Characteristics of Phosphorus Output Through Runoff on a Red Soil Slope Under Natural Rainfall Conditions	ZUO Ji-chao, ZHENG Hai-jin, XI Tong-hang, <i>et al.</i> (4178)
Occurrence, Distribution and Health Risk of the Phthalate Esters in Riparian Soil in the Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir	YANG Ting, HE Ming-jing, YANG Zhi-hao, <i>et al.</i> (4187)
Seasonal Distribution, Composition, and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Organochlorine Pesticides in the Main Stream of the Luanhe River	WANG Yi-zhen, ZHANG Shi-lu, KONG Fan-qing, <i>et al.</i> (4194)
Occurrence and Human Exposure Risk Assessment of Organophosphate Esters in Drinking Water in the Weifang Binhai Economic-Technological Development Area	DONG Zheng, MA Yu-long, LI Jun-qi, <i>et al.</i> (4212)
Contamination Characteristics and Human Exposure to Organophosphate Flame Retardants in Road Dust from Suzhou City	LI Jing, WANG Jun-xia, XU Wan-ting, <i>et al.</i> (4220)
Cancer Risk of Human Intake of PAH-Contaminated Particles Based on Hand-to-Mouth Activities	TONG Rui-peng, YANG Xiao-yi, ZHANG Lei, <i>et al.</i> (4228)
Spatio-temporal Evolution of Groundwater Vulnerability Based on Spatial Autocorrelation	LIU Yu, LAN Shuang-shuang, ZHANG Yong-xiang, <i>et al.</i> (4236)
Preparation of Ag-AgI/CN/MA Composites and Their Visible-light Photocatalytic Performance	ZHANG Sai, ZHANG Li-li, HU Chun (4245)
Effect of <i>Eichhornia crassipes</i> on Ammonification and Denitrification Microorganisms in Eutrophic Freshwaters	LI Jie, JIANG Li-juan, WANG Xiao-lin, <i>et al.</i> (4253)
Utilization of Copper (II) Wastewater for Enhancing the Treatment of Chromium (VI) Wastewater in Microbial Fuel Cells	XIONG Xiao-min, WU Xia-yuan, JIA Hong-hua, <i>et al.</i> (4262)
Efficiency and Microecology of a Soil Infiltration System with High Hydraulic Loading for the Treatment of Swine Wastewater	SU Cheng-yuan, LIU Fan-fan, ZHONG Yu, <i>et al.</i> (4271)
Effects of Bacteria on the Growth of and Lipid Accumulation in <i>Chlorella pyrenoidosa</i> Cultivated in Municipal Wastewater	TU Ren-jie, JIN Wen-biao, HAN Song-fang, <i>et al.</i> (4279)
Enhanced Antibiotic Resistant Bacteria Removal from Wastewater Treatment Plant by Different Disinfection Technologies	LIU Ya-lan, MA Cen-xin, DING He-zhou, <i>et al.</i> (4286)
Coking Wastewater Treatment Efficiency and Comparison of Acute Toxicity Characteristics of the AnMBR-A-MBR and A ² -MBR Processes	ZHU Jia-di, LI Fei-fei, CHEN Li-jun (4293)
Stability of the CANON Process Based on Real-Time Control Technologies	SUN Yan-fang, HAN Xiao-yu, ZHANG Shun-jun, <i>et al.</i> (4302)
Improving Nitrogen and Phosphorus Removal from Reclaimed Water Using a Novel Sulfur/Iron Composite Filler	ZHOU Yan-qing, HAO Rui-xia, LIU Si-yuan, <i>et al.</i> (4309)
Start-up and Capacity Enhancement of a Partial Nitrification Pilot Reactor in Continuous Flow	ZHU Qiang, LIU Kai, DONG Shi-yu, <i>et al.</i> (4316)
Quick Start-up Performance of Combined ANAMMOX Reactor Based on Different Inoculated Sludge Types	LÜ Gang, LI Tian, XU Le-zhong, <i>et al.</i> (4324)
Effect of Two-Stage Aeration on Nitrogen Removal Performance of Aerobic Granular Sludge	WANG Wen-xiao, BIAN Wei, WANG Meng, <i>et al.</i> (4332)
Construction of a High Efficiency Anaerobic Digestion System for Vinegar Residue	ZHOU Yun-long, XU Zhi-yang, ZHAO Ming-xing, <i>et al.</i> (4340)
Comparison of Ecological Risk Assessment Based on the Total Amount and Speciation Distribution of Heavy Metals in Soil: A Case Study for Longyan City, Fujian Province	WANG Rui, CHEN Ming, CHEN Nan, <i>et al.</i> (4348)
Heavy Metal Contamination of Soils and Crops near a Zinc Smelter	CHEN Feng, DONG Ze-qin, WANG Cheng-cheng, <i>et al.</i> (4360)
Characteristics and Influencing Factors of CH ₄ Emissions from the Drawdown Area of the Three Gorges Reservoir	CHAI Xue-si, HAO Qing-ju, HUANG Zhe, <i>et al.</i> (4370)
Effects of Plastic Film Mulching on Nitrous Oxide Emissions from a Vegetable Field	FENG Di, HAO Qing-ju, ZHANG Kai-li, <i>et al.</i> (4380)
Effects of Bamboo Biochar on Greenhouse Gas Emissions During the Municipal Sludge Composting Process	XIANG Qiu-jie, YANG Yu-han, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (4390)
Removal of Cd from Soil by <i>Aspergillus fumigatus</i> in a Semi-solid Culture	CHEN Yao-ning, WANG Yuan-nan, LI Yuan-ping, <i>et al.</i> (4398)
Removal of Chlortetracycline and Morphological Changes in Heavy Metals in Swine Manure Using the Composting Process	WEN Qin-xue, CAO Yong-sen, CHEN Zhi-qiang (4405)
Remediation of Petroleum-Contaminated Soil Using a Bioaugmented Compost Technique	WU Man-li, CHEN Kai-li, YE Xi-qiong, <i>et al.</i> (4412)
Effects of Microbial Diversity on Soil Carbon Mineralization	AN Li-yun, LI Jun-jian, YAN Jun-xia, <i>et al.</i> (4420)
Ozone Deposition and Risk Assessment for a Winter Wheat Field; Partitioning Between Stomatal and Non-stomatal Pathways	XU Jing-xin, ZHENG You-fei, ZHAO Hui, <i>et al.</i> (4427)
Progress in the Studies of Precipitation Chemistry in Acid Rain Areas of Southwest China	ZHOU Xiao-de, XU Zhi-fang, LIU Wen-jing, <i>et al.</i> (4438)