

方知库  
Eco-Environmental  
Knowledge Web

# 环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV  
HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心  
■ 出版 科学出版社



2020

Vol.41 No.1  
第41卷 第1期

目次

近20年来中国PM<sub>2.5</sub>污染演变的时空过程 ..... 时燕, 刘瑞梅, 罗毅, 杨昆 (1)

2007~2016年上海颗粒物浓度特征与气候背景异同分析 ..... 郑庆锋, 史军, 谈建国, 段玉森, 林燕芬, 徐卫忠 (14)

夏季大气PM<sub>2.5</sub>中元素特征及源解析:以华中地区平顶山-随州-武汉为例 ..... 刘威杰, 石明明, 程敏, 黎荧, 朱戈昊, 邢新丽, 孔少飞, 张家泉, 祁士华 (23)

呼包鄂地区冬季、夏季PM<sub>2.5</sub>污染特征 ..... 李伊明, 刘佳媛, 史国良, 皇甫延琦, 张昕, 杨奕, 冯银厂 (31)

2019年元旦前后石家庄市重污染过程PM<sub>2.5</sub>污染特征及来源解析 ..... 周静博, 段菁春, 王建国, 杨鹏, 刘煥武, 李梅, 靳伟 (39)

基于模型模拟的成都市PM<sub>2.5</sub>污染来源解析 ..... 许艳玲, 易爱华, 薛文博 (50)

北京市PM<sub>2.5</sub>中砷污染特征 ..... 石绍萱, 杨艳蓉, 秦娟娟, 周雪明, 段菁春, 谭吉华, 陈荣志 (57)

夏秋季宁波市气态元素汞(GEM)污染特征及潜在源区贡献分析 ..... 易辉, 林佳梅, 蔡秋亮, 王克强, 陈进生, 佟磊, 李建荣, 肖航 (65)

安阳市大气PM<sub>2.5</sub>中水溶性离子季节特征及来源解析 ..... 孙有昌, 姜楠, 王申博, 段时光, 张瑞芹 (75)

新乡市夏冬季节PM<sub>2.5</sub>稳定碳同位素特征分析 ..... 闫广轩, 宋鑫, 张靖雯, 张朴真, 王力鹏, 张佳羽, 杨争, 曹治国, 樊静, 王跃思, 刘子锐 (82)

基于颗粒物化学组分粒径分布特征的源解析方法构建与评估 ..... 梁永莉, 田瑛泽, 刘童, 冯银厂 (90)

超低排放改造后燃煤电厂细颗粒物排放特征 ..... 王润芳, 马大卫, 姜少毅, 朱仁斌, 何军, 张本耀 (98)

京津冀地区城市臭氧污染趋势及原因探讨 ..... 余益军, 孟晓艳, 王振, 周崑, 于红霞 (106)

安阳市近地面臭氧污染特征及气象影响因素分析 ..... 杨健, 尹沙沙, 于世杰, 王丽娟, 张瑞芹, 郝建尤, 苏方成, 齐艳杰 (115)

长江三角洲2017年机动车IVOCs排放清单构建及其对SOA的生成影响 ..... 王倩, 黄凌, 王杨君, 殷司佳, 张琪, 易鑫, 李莉 (125)

华东典型城市非道路移动机械排气烟度 ..... 鲁君, 胡馨遥, 杨强, 唐伟, 夏阳, 井宝莉, 陈昫, 黄成 (133)

国内外储油库VOCs排放现状与标准分析 ..... 胡玮, 任碧琪, 黄玉虎, 秦建平, 卞吉玮, 吴清柱 (139)

四乙基愈创木酚液相·OH氧化SOA产率及特征分析:初始浓度的影响 ..... 庄雨, 陈彦彤, 李旭东, 马帅帅, 赵竹子, 叶招莲, 盖鑫磊 (146)

乌鞘岭南、北坡降水稳定同位素特征及水汽来源对比 ..... 徐秀婷, 贾文雄, 朱国锋, 马兴刚, 张昱, 袁瑞丰, 张志远, 石阳 (155)

长江源多年冻土区地下水氢氧稳定同位素特征及其影响因素 ..... 汪少勇, 何晓波, 丁永建, 常福宣, 吴锦奎, 胡召富, 王利辉, 杨贵森, 邓明珊 (166)

巴尔喀什湖流域水化学和同位素空间分布及环境特征 ..... 沈贝贝, 吴敬禄, 吉力力·阿不都外力, A. S. Saparov, Gulnura Isanova (173)

城市湖泊水环境整治对改善水质的影响:以蠡湖近30年水质变化为例 ..... 田伟, 杨周生, 邵克强, 潘辉, 胡洋, 白承荣, 姜星宇, 高光, 汤祥明 (183)

典型药物及个人护理品在黄东海海域水体中的检测、分布规律及其风险评估 ..... 陈贤, 张彩杰, 杨桂朋, 张婧, 刘梦 (194)

长江南京段水源水中有机磷酸酯的污染特征与风险评估 ..... 李栋, 张圣虎, 张芹, 王博, 卜元卿, 赵欣, 李辉, 宋宁慧, 郭瑞昕 (205)

雄安新区-白洋淀冬季冰封期水体溶解性有机物的空间分布、光谱特征及来源解析 ..... 周石磊, 孙悦, 张艺冉, 蒋永丰, 尹璐, 黄廷林, 李再兴, 罗晓, 战江, 王函 (213)

白洋淀表层沉积物元素的空间特征、风险评价及来源分析 ..... 汪敬忠, 刘卓, 魏浩, 吴玉会, 占水娥, 朱迟, 张益森 (224)

松花江表层沉积物PAEs分布特征及生态风险评估 ..... 王欢, 杨永哲, 王海燕, 董伟羊, 闫国凯, 常洋, 李泽文, 赵远哲, 凌宇 (232)

鄱阳湖湖口-长江段沉积物中微塑料与重金属污染物的赋存关系 ..... 李文华, 简敏菲, 刘淑丽, 江玉梅, 邓艳彬, 朱琳 (242)

臭氧对生物活性炭中微生物及出水消毒副产物的影响 ..... 刘宝明, 王夕希, 张晓夏, 顾艳芳, 李雨平, 阮文权, 缪恒锋, 潘杨 (253)

兰州市西固区儿童饮用水重金属暴露及健康风险精细化评估 ..... 陈月芳, 孙善伟, 段小丽, 许锦荣, 王娟, 康艺瑾, 梁为纲, 曹素珍 (262)

镁铁层状双金属氢氧化物对磷酸盐的吸附作用及对内源磷释放的控制效果及机制 ..... 吴俊麟, 林建伟, 詹艳慧, 程永前, 柏晓云, 辛慧敏, 常明玥 (273)

一硫代磷酸盐在介质上的吸附特征及机制 ..... 廖丹雪, 单慧媚, 彭三曦, 潘敖然, 黄健, 陈辉, 赵超然 (284)

酸碱复合改性海泡石亚结构特征及其对Cd(II)吸附性能 ..... 谢厦, 徐应明, 闫翠侠, 罗文文, 孙约兵 (293)

脱氮菌剂在低溶解氧黑臭水体中氮代谢特征 ..... 赵志瑞, 刘硕, 李铎, 李海萍, 李方红, 张佳瑶, 白志辉 (304)

宏基因组方法分析医药化工废水厂中抗生素耐药菌及抗性基因 ..... 陈红玲, 张兴桃, 王晴, 姚沛琳 (313)

淀粉废水处理系统中活性污泥的微生物群落结构及多样性分析 ..... 赵婷婷, 乔凯, 王蕾, 张伟, 竺建荣, 唐一, 胡滨, 王香莲, 杨静, 景在涛 (321)

基于SBR-ABR实现PN-SAD耦合工艺的运行与优化调控 ..... 陈重军, 张敏, 姜滢, 郭萌蕾, 谢嘉玮, 谢军祥, 沈耀良 (330)

基于间歇饥饿的SNAD工艺运行 ..... 李冬, 刘志诚, 徐贵达, 王玉颖, 张杰 (337)

反硝化-高效部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺处理老龄垃圾渗滤液 ..... 陈小珍, 汪晓军, Karasuta Chayangkun, 周松伟, 钟中, 陈振国, 陈晓坤 (345)

硝化微颗粒污泥快速培养及其亚硝化功能快速实现 ..... 刘文如, 宋家俊, 王建芳, 沈耀良 (353)

高频曝停下曝时间对亚硝化颗粒污泥性能的影响 ..... 张杰, 劳会妹, 李冬, 魏子清 (360)

中国东北沈抚地区土壤中PBDEs的残留、来源及风险评估 ..... 向鑫鑫, 鲁垠涛, 阮起扬, 赖德, 孙绍斌, 姚宏, 张战胜 (368)

某焦化场地非均质包气带中多环芳烃(PAHs)来源及垂向分布特征 ..... 孟祥帅, 吴萌萌, 陈鸿汉, 岳希, 陶抒远 (377)

北京蔬菜地土壤中抗生素抗性基因与可移动元件的分布特征 ..... 张汝凤, 宋渊, 高浩泽, 程首涛, 孙艳梅, 王旭明 (385)

长期施肥和耕作下紫色土坡耕地土壤C、N、P和K化学计量特征 ..... 杜映妮, 李天阳, 何丙辉, 贺小容, 付适 (394)

亚热带稻田土壤碳氮磷生态化学计量学特征 ..... 宋佳龄, 盛浩, 周萍, 段良霞, 周清, 张杨珠 (403)

宛山荡农田土壤氮迁移过程反硝化与厌氧氨氧化 ..... 陈志浩, 覃云斌, 丁帮璟, 胡伏优, 陈伟, 李正魁 (412)

秸秆炭化还田对滴灌棉田土壤微生物代谢功能及细菌群落组成的影响 ..... 王晶, 马丽娟, 刘泽华, 闵伟, 侯振安 (420)

基于PMF模型的九龙江流域农田土壤重金属来源解析 ..... 黄华斌, 林承奇, 胡恭任, 于瑞莲, 郝春莉, 陈枫桦 (430)

塔里木盆地东南缘绿洲区土壤砷空间分布及农作物砷富集特征 ..... 陈云飞, 周金龙, 曾妍妍, 王松涛, 杜江岩, 孙英, 顾思博 (438)

广西典型碳酸盐岩区农田土壤-作物系统重金属生物有效性及迁移富集特征 ..... 马宏宏, 彭敏, 刘飞, 郭飞, 唐世琪, 刘秀金, 周亚龙, 杨柯, 李括, 杨峥, 成杭新 (449)

不同钝化剂对微碱性土壤镉、镍形态及小麦吸收的影响 ..... 张静静, 朱爽阁, 朱利楠, 柳海涛, 杨金康, 化党领 (460)

不同钝化剂对鸡粪堆肥重金属钝化效果及其腐熟度指标的影响 ..... 栾润宇, 高珊, 徐应明, 纪文凝, 闫翠侠, 孙约兵 (469)

黄土丘陵退耕草地土壤呼吸及其组分对氮磷添加的响应 ..... 周俊杰, 陈志飞, 杨全, 赖帅彬, 王智, 徐炳成 (479)

炉渣与生物炭施加对福州平原水稻田温室气体排放的后续影响 ..... 蓝兴福, 王晓彤, 周雅心, 金强, 许旭萍, 王维奇 (489)

《环境科学》征订启事(89) 《环境科学》征稿简则(97) 信息(303, 329, 344)

# 夏季大气 PM<sub>2.5</sub> 中元素特征及源解析:以华中地区平顶山-随州-武汉为例

刘威杰<sup>1</sup>, 石明明<sup>1</sup>, 程铖<sup>1</sup>, 黎熒<sup>1</sup>, 朱戈昊<sup>1</sup>, 邢新丽<sup>1,2,3\*</sup>, 孔少飞<sup>1</sup>, 张家泉<sup>3</sup>, 祁士华<sup>1,2</sup>

(1. 中国地质大学(武汉)环境学院, 盆地水文过程与湿地生态恢复实验室, 武汉 430074; 2. 中国地质大学(武汉)生物地质与环境地质国家重点实验室, 武汉 430074; 3. 湖北理工学院环境科学与工程学院, 矿区污染控制与修复湖北省重点实验室, 黄石 435003)

**摘要:** 为研究我国中部地区不同类型城市夏季大气细颗粒物 PM<sub>2.5</sub> 中元素组成特征及来源, 于 2017 年 6 月对平顶山、随州和武汉这 3 个站点空气中的 PM<sub>2.5</sub> 进行观测, 采用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)对样品中 Ti、Zn、Cu、Cr、As、Pb、Fe、Ni、Se、V、Sb、Cd 和 Co 等 13 种元素进行分析, 并结合富集因子法、主成分-多元线性回归分析方法(PCA-MLR)和后向气团轨迹聚类分析模型对 3 个站点的污染类型及污染来源进行分析. 结果表明, 平顶山、随州和武汉三地 PM<sub>2.5</sub> 的痕量元素中均以 Zn 元素浓度最高, As 元素的浓度均超过环境空气质量标准(GB 3096-2012)年均浓度限值, 3 个站点的 Pb 和 Cd 浓度均较低. 富集因子分析结果表明: Se、Sb、Cd、As、Cu 和 Zn 元素富集因子系数均超过 10, 受人为污染严重, 其中 3 个站点 Se 元素的富集因子系数均高于 600. PCA-MLR 和后向气团轨迹聚类分析结果表明: 平顶山站点主要受工业污染/燃油(57.90%)、交通污染源(24.40%)、燃煤源(6.10%)和矿区土壤源(11.60%)等 4 个污染源影响, 随州站点的主要污染来源是燃油源, 其贡献率为 54.30%, 其次是燃煤源(22.40%)、冶金尘/工业污染源(12.80%)及电镀/汽车制造等污染源(10.50%); 武汉站点受工业排放影响最大, 其贡献率为 60.80%, 机动车污染源的贡献率为 39.20%. 武汉和随州站点主要受当地源排放影响, 平顶山站点受当地排放和外源汇入共同影响.

**关键词:** PM<sub>2.5</sub>; 元素; 富集因子; PCA-MLR; 后向气团轨迹

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)01-0023-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201904024

## Characteristics and Sources of Elements in PM<sub>2.5</sub> During Summer for Three Typical Cities in Pingdingshan-Suizhou-Wuhan, Central China

LIU Wei-jie<sup>1</sup>, SHI Ming-ming<sup>1</sup>, CHENG Cheng<sup>1</sup>, LI Ying<sup>1</sup>, ZHU Ge-hao<sup>1</sup>, XING Xin-li<sup>1,2,3\*</sup>, KONG Shao-fei<sup>1</sup>, ZHANG Jia-quan<sup>3</sup>, QI Shi-hua<sup>1,2</sup>

(1. Laboratory of Basin Hydrology and Wetland Eco-restoration, School of Environmental Studies, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China; 2. State Key Laboratory of Biogeology and Environmental Geology, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China; 3. Hubei Key Laboratory of Mine Environmental Pollution Control and Remediation, School of Environmental Science and Engineering, Hubei Polytechnic University, Huangshi 435003, China)

**Abstract:** This study investigates the elemental characteristics and sources of aerosol fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) samples obtained from Pingdingshan, Suizhou, and Wuhan, Central China, in June 2017. Thirteen kinds of elements (Ti, Zn, Cu, Cr, As, Pb, Fe, Ni, Se, V, Sb, Cd, and Co) were analyzed by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS), and three source identification methods—enrichment factor, principle component analysis and multiple linear regression (PCA-MLR), and backward trajectory clustering—were applied. The results showed that Zn was the highest trace element in PM<sub>2.5</sub> in samples from Pingdingshan, Suizhou, and Wuhan, and that the concentration of As exceeded the annual limit of Chinese air quality standards (GB 3096-2012). Concentrations of Pb and Cd in PM<sub>2.5</sub> in samples from the three cities during the summer were low. The enrichment factor coefficients for Se, Sb, Cd, As, Cu, and Zn exceeded 10, which suggests that summer pollution from human activities was serious, for example, the enrichment factor coefficient for Se was >600. PCA-MLR and backward trajectory clustering analysis results showed that the main pollution sources in Pingdingshan during the summer were industrial fuel oil (57.90% of total), traffic pollution (24.40%), coal combustion (6.10%), and mine soil (11.60%). The main pollution source in Suizhou was fuel, which contributed 54.30% of the total. Wuhan was mainly affected by industrial emissions (60.80% of the total) and motor vehicle pollution (39.20%). Hence, Wuhan and Suizhou were mainly affected by local source emissions, whereas Pingdingshan was jointly affected by local emissions and regional inputs during the summer.

**Key words:** PM<sub>2.5</sub>; elements; enrichment factor; PCA-MLR; backward trajectory

收稿日期: 2019-04-02; 修订日期: 2019-07-25

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0212603); 国家自然科学基金项目(41773124); 湖北省盆地水文过程与湿地生态恢复学术创新基地开发基金项目((BHWER201503A); 矿区污染控制与修复湖北省重点实验室开放基金项目(201702)

作者简介: 刘威杰(1996~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为环境地球化学, E-mail:15071211979@163.com

\* 通信作者, E-mail: xingxinli5300225@163.com

PM<sub>2.5</sub>是指大气中空气动力学直径  $D_p \leq 2.5 \mu\text{m}$  的颗粒物,是大气颗粒物的重要组成部分,也是近年来造成霾污染主要成因<sup>[1]</sup>.近些年来,国内外学者的主要关注焦点之一是 PM<sub>2.5</sub>的化学成分以及组成特征<sup>[2]</sup>. PM<sub>2.5</sub>组成复杂,受到各地能源结构、经济发展情况和气候条件的影响<sup>[3]</sup>,目前主要报道的 PM<sub>2.5</sub>成分有:无机离子、重金属和有机物质等<sup>[4]</sup>.其中元素通常被识别为粒子源分配分析的标记,因为它们具有独特的源特征. Gao 等<sup>[5]</sup>的研究表明, PM<sub>2.5</sub>中主要的痕量元素为 Zn、Mn、Cu、Pb、Cr 和 Ni. Zhang 等<sup>[6]</sup>在研究中发现, PM<sub>2.5</sub>中主要的痕量元素为 Ni、As、Se、Cd 和 Pb,山东 4 个城市站点(青岛、淄博、枣庄和济南) PM<sub>2.5</sub>的主要来源是煤燃烧源和工业排放源.除此之外,As 和 Pb 对成人和小孩存在致癌风险,并且气溶胶中的高浓度 Cd、As 和 Pb 对人体造成的健康风险已超出了可接受范围.因此 PM<sub>2.5</sub>中元素的研究对于认识霾污染以及污染控制和改善环境具有重要意义<sup>[7]</sup>.

近年来,针对国内主要城市 PM<sub>2.5</sub>中元素组成和来源解析的研究已较为普遍, PM<sub>2.5</sub>的来源广泛,除地方污染排放以外,还有可能来自不同地域的大气输送. Chang 等<sup>[8]</sup>在研究京津冀地区城市间的区域传送以及区域联防联控对大气 PM<sub>2.5</sub>的影响时发现,当地排放在重污染日的贡献率大于清洁日.夏季时期,燃烧源和区域传送成为北京地区的两大重要污染来源,尤其是周边城市的工业污染.另外, Zhang 等<sup>[9]</sup>在研究华东地区大气中 PM<sub>2.5</sub>的来源解析和潜在污染源区时也发现,造成 PM<sub>2.5</sub>污染严重的除长三角地区以外,北方和中部的重污染地区对当地也存在区域传送.

华中地区工、农业和交通都较发达,近几年来随着经济迅猛发展和人口的持续增长,能源资源的消耗量也不断增加,使得华中地区大气污染问题更加严重.不同城市的大气污染程度不同,污染物的特征可能也存在不同;不同城市的功能区, PM<sub>2.5</sub>中元素的含量也有差异<sup>[10,11]</sup>.武汉市是我国中部重要城市,2019 年将举行第七届世界军运会,通过前期监测发现,武汉北方向存在大气污染物的外源输入,为了探究北方地区对武汉的影响,选取平顶山、随州和武汉这 3 个不同类型地站点采集 PM<sub>2.5</sub>样品,对元素含量分析,确定每个站点的主要污染来源,分析对比 3 个站点的污染源特征,以期将为将要开展的军运会提供空气质量保障的数据参考.

## 1 材料与方法

### 1.1 样品采集

于 2017 年 6 月 3 ~ 22 日使用天虹 TH-150F 智

能中流量颗粒物采样器(流量设置为  $100 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ )分别连续采集武汉、随州及平顶山 3 个站点(图 1) PM<sub>2.5</sub>样品.采样仪器均位于高于地面 20 m 的建筑物顶端,四周通风良好,无遮挡物.使用石英纤维滤膜(Whatman, 英国)连续采集 24 h 颗粒物样品(从当天 09:00 至第二天上午 09:00).

武汉站点( $30^{\circ}31'54''\text{N}$ ,  $114^{\circ}21'43''\text{E}$ )位于湖北省环境监测中心站楼顶,周边人口聚集,商贸发达,交通流量大,是典型的城市区域站点,采集有效样品共 18 个.随州站点( $32^{\circ}21'2''\text{N}$ ,  $113^{\circ}11'53''\text{E}$ )位于随州市随县万和新城太白顶居委会楼顶,四周有河流山丘,人烟稀少,属于郊区站点,采集有效样品共 18 个.平顶山站点( $33^{\circ}53'34''\text{N}$ ,  $113^{\circ}01'56''\text{E}$ )位于平顶山市宝丰县肖旗乡居委会楼顶,东面为主乡道,该地区交通便利,有一定的车流量,但四周全是农田,是典型的农村站点,采集有效样品共 18 个.

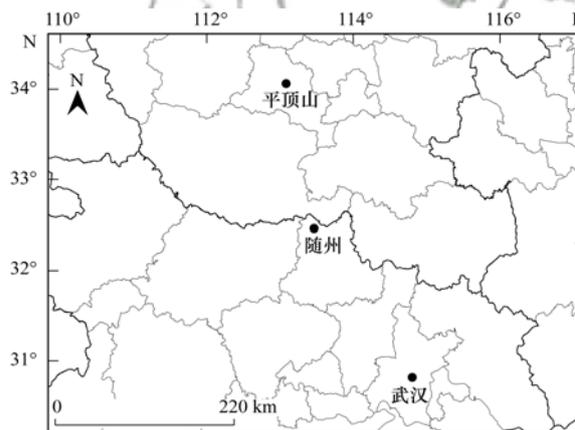


图 1 采样站点分布示意

Fig. 1 Distribution of sampling sites

### 1.2 样品处理与分析

本研究采用  $\text{HNO}_3$ -HF 对样品进行高温消解前处理而后使用电感耦合等离子体质谱仪 ICP-MS7700(安捷伦,美国)对样品上机测定,共测定 Ti、Zn、Cu、Cr、As、Pb、Fe、Ni、Se、V、Sb、Cd 和 Co 这 13 种元素.剪取 1/4 采集的 PM<sub>2.5</sub>滤膜弄碎后放入消解罐中用于重金属元素的检测,然后依次加入 2 mL 浓硝酸和 1 mL 氢氟酸,盖上盖子,放入烘箱  $180^{\circ}\text{C}$  下恒温 48 h 后,取出溶样弹,在电加热板上于  $115^{\circ}\text{C}$  加热至近干,然后再加入 1 mL 浓硝酸,继续加热至消解罐中溶液仅剩 1 滴,从加热板上取下,室温稍冷却后,加入 2 mL 30% 的稀硝酸继续放入烘箱内,  $180^{\circ}\text{C}$  下恒温 12 h 后,取出溶样弹,转移溶样弹内的溶液至 10 mL 的离心管内,用 1% 稀硝酸定容至 10 mL,摇匀.空白滤膜采取相同的方法进行处理与测定.

### 1.3 质量保证与控制

采样滤膜使用前在马弗炉  $550^{\circ}\text{C}$  下烘烤 4 h 后

在 25℃ ± 2℃ 相对湿度 55% ± 3% 条件下恒温恒湿 24 h, 再使用十万分之一天平称重 (AUW120D 日本岛津). 样品采集后同样条件下恒温恒湿 24 h 再次称重. 采样过程中对采样器滤头定时清理, 保证不会造成交叉污染, 确保数据准确. 消解过程使用样品空白、过程空白和试剂空白进行质量控制, 测试过程中元素标准曲线的相关系数达到 99.9% 以上, 用土壤标准物质 BCR-2、BHVO-2、GSS-5 和 GSS-9 对各元素进行回收率校准实验, 回收率均在 90% ~ 110% 之间. 消解过程前后对消解罐用硝酸浸泡、超纯水和去离子水清洗.

## 2 结果与讨论

### 2.1 PM<sub>2.5</sub> 中痕量元素的浓度分析

采样期间 3 个站点 PM<sub>2.5</sub> 痕量元素浓度特征如表 1 和图 2 所示. 3 个站点 Zn 的浓度占比均最大, 且呈现随州 > 武汉 > 平顶山; 其中 Cu、Cr 和 Ni 元素均呈平顶山 > 随州 > 武汉; As 和 Sb 呈武汉 > 随州 > 平顶山; 随州站点的 V 元素高于其他两地, 3 个站点占比最高的 4 种痕量元素按照以下排列递减, 平顶山: Zn > Cu > Cr > As; 随州: Zn > Cu > As > Cr; 武汉: Zn > As > Cr > Cu, 表明不同区域痕量元素含量变化较大.

平顶山站点的 Zn、Cu、Cr 及 As 占该站点痕量元素的 74.78%; 随州站点的 Zn、Cu、As 及 Cr 浓度占该站点总痕量元素的 85.64%; 武汉站点的 Zn、Cu、Cr 及 As 浓度占该站点痕量元素总量的 74.74%; 在采样期间, 3 个地方所采颗粒物中的 Zn、Cu、Cr、As、Pb、Se、Ni 的浓度之和均占到了总痕量元素的 90% 以上.

平顶山站点的 Cu、Ni 和 Cr 浓度均高于随州和武汉站点, 平顶山是煤炭工业城市, 大量的燃煤燃油使得 PM<sub>2.5</sub> 中 Ni 浓度和 Cr 浓度偏高. 武汉站点的 As 浓度高于其余 2 个站点, 采样期在夏季, 燃煤取暖现象较少, 所以 As 大多来源于工业燃煤排放. 根据我国现行的空气质量标准 (GB 3096-2012), As 的年均

浓度限值是: 6 ng·m<sup>-3</sup>[12], 3 个站点的 As 浓度均已严重超标. 3 个站点的 Pb 浓度呈平顶山 > 武汉 > 随州, 但浓度均远未超过我国现行的空气质量标准的年平均参考限值 500 ng·m<sup>-3</sup>, 3 个站点的 Cd 含量也未超过空气质量标准的参考限值 5 ng·m<sup>-3</sup>.

表 1 3 个站点 PM<sub>2.5</sub> 中痕量元素浓度/ng·m<sup>-3</sup>

Table 1 Concentrations of trace elements in PM<sub>2.5</sub> in samples

元素	from the three sites/ng·m <sup>-3</sup>		
	平顶山	随州	武汉
Zn	182.5 ± 140.2	453.4 ± 540.3	221.1 ± 197.1
Cu	147.1 ± 113.9	137.4 ± 268.9	47.6 ± 50.3
Cr	125.2 ± 77.9	89.5 ± 65.4	72.4 ± 67.2
As	117.5 ± 33.4	122.2 ± 105.5	133.1 ± 63.8
Pb	52.8 ± 15.4	36.3 ± 35.2	46.1 ± 55.8
Ni	40.1 ± 35.5	11.5 ± 15.2	10.3 ± 9.2
Se	28.8 ± 13.3	19.5 ± 8.1	23.6 ± 16.2
Sb	16.1 ± 13.4	22.0 ± 2.03	22.9 ± 18.3
V	6.4 ± 5.7	7.1 ± 3.1	6.6 ± 6.5
Co	1.9 ± 2.2	1.6 ± 1.4	1.3 ± 0.7
Cd	2.1 ± 0.9	1.5 ± 1.1	2.2 ± 1.7

### 2.2 富集因子分析

富集因子法 (enrichment factor, EF) 是解析大气颗粒物中元素来源的方法之一[13]. 它选择满足一定条件的元素作为参考元素, 国际上多用 Al、Fe、Si、Ti 等元素. 富集因子的计算公式如下:

$$EF = \frac{(c_i/c_n)_{\text{环境}}}{(c_i/c_n)_{\text{背景}}} \quad (1)$$

式中,  $c_i$  为所研究的元素  $i$  的质量浓度;  $c_n$  为所选定的参比元素的质量浓度;  $(c_i/c_n)_{\text{环境}}$  为研究站点大气 PM<sub>2.5</sub> 中元素与参比元素平均质量浓度比值;  $(c_i/c_n)_{\text{背景}}$  为土壤中所研究元素平均含量与参比元素的平均含量比值. 根据结果分析得到元素的富集因子指数大小将元素的富集程度分为 4 类[14,15], 如表 2, 表示元素的富集程度分级. 若 PM<sub>2.5</sub> 中某元素的富集因子  $EF < 1$ , 代表该元素未富集, 只来自于地壳物质, 基本不受人干扰; 若  $EF$  值介于 1 ~ 10 之间, 代表该元素在大气中中度富集, 受到自然源与人为源双重影响; 若  $EF$  值介于 10 ~ 20 之间, 代表该元

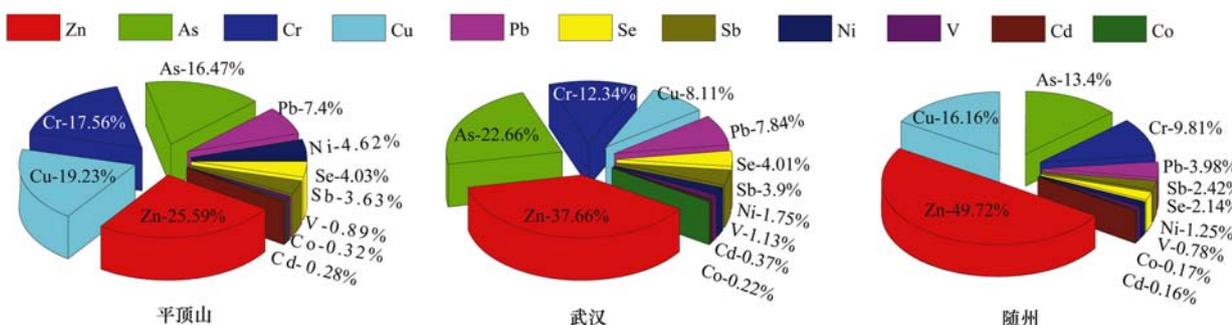


图 2 PM<sub>2.5</sub> 中痕量元素的质量分数分布

Fig. 2 Percentage of trace elements in PM<sub>2.5</sub>

素重度富集,受人为污染较为严重.若 EF 值 > 20,代表该类元素严重富集,受人为污染极严重.研究表明:钢铁行业排放出的大气中 Fe 元素含量占比较高,富集较为严重<sup>[16]</sup>,由于平顶山站点附近存在铁矿等企业,武汉站点附近有武汉钢铁集团,都可能会对监测站点造成影响,所以,本次观测期间的 Fe 元素不宜作为参比元素.在本次研究中选用 Ti 为参比元素,采样期间平顶山、随州和武汉三地的 Ti 元素的浓度分别为:1 006.8、1 023.8和1 012.7 ng·m<sup>-3</sup>,“背景”均选用中国环境土壤背景值<sup>[17]</sup>,其中平顶山站点选用河南省土壤背景值,随州站点和武汉站点选用湖北省土壤背景值.

表 2 富集因子分级

EF	<1	1~10	10~20	>20
程度	未富集	中度富集	重度富集	极严重富集

根据富集因子系数的大小,本次研究将 PM<sub>2.5</sub> 中的元素分为 4 类,第一类为富集因子系数小于 1 的元素,包括了 V、Co 和 Fe,表明该类元素主要来源于地壳物质.从图 3 中可以看出平顶山、随州和武汉三地的 V、Co 和 Fe 含量的富集因子系数都小于

1,相关研究表明武汉市夏季大气中 Fe 元素含量主要来源于土壤物质<sup>[15]</sup>,另外,丁俊男等<sup>[18]</sup>在研究平顶山 PM<sub>2.5</sub> 中的元素组成时也发现,夏季大气中的 Fe 元素含量和 V 元素含量均来源于土壤物质.第二类为富集因子系数介于 1~10 之间的元素,除平顶山外,随州和武汉地区的 PM<sub>2.5</sub> 中 Ni 和 Cr 的富集因子系数介于 1~10 之间,表明两站点的 Cr 和 Ni 元素受自然源和人为源共同影响;第三类为富集因子系数介于 10~20 之间,表明该类元素主要受人为污染,包括了 Pb、Cr 和平顶山地区的 Ni 元素.有研究表明平顶山地区在夏季大气中 Cr 元素和 Ni 元素均受人为污染较为严重<sup>[18]</sup>,另外张帆等<sup>[19]</sup>在研究武汉地区大气中 Pb 元素含量和 Cr 元素含量时也发现,该地区大气中 Pb 元素和 Cr 元素属于重度污染;第四类为富集因子系数大于 20 的元素,其中包括了 Se、Sb、Cd、As、Cu 和 Zn,该类元素受人为污染严重,其中随州地区 Zn 元素的富集因子明显高于武汉和平顶山站点,3 个站点 As、Se、Sb 和 Cd 元素的富集因子系数均大于 50,Se 元素的富集因子系数均高于 600,相关研究表明平顶山夏季大气中 Se、Cd 元素的富集系数均大于 2 000,富集极为严重<sup>[18,20]</sup>.

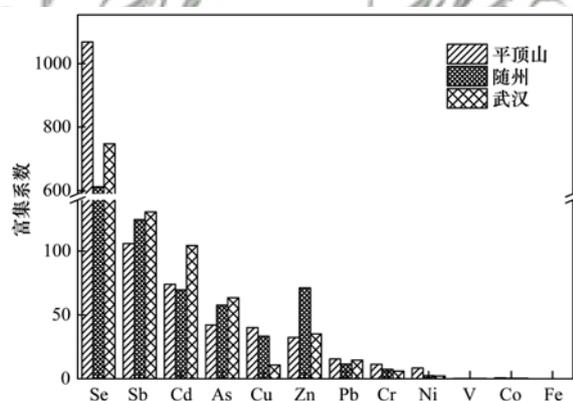


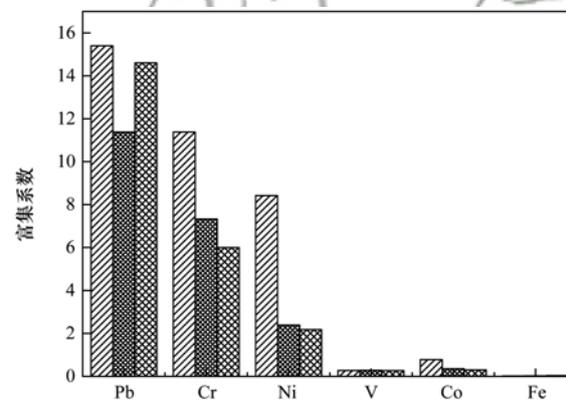
图 3 3 个站点 PM<sub>2.5</sub> 中元素的富集因子系数

Fig. 3 Enrichment factor coefficient of elements in PM<sub>2.5</sub> in samples from the three sites

### 2.3 来源解析(主成分-多元线性回归分析)

运用主成分-多元线性回归分析(PCA-MLR)对 3 个研究站点采样期间大气 PM<sub>2.5</sub> 中的元素进行来源解析(表 3).主成分-多元线性回归分析方法是利用线性代换将多个变量中的密切变量进行归类,选出少数重要变量的多元统计分析方法.主成分分析是利用降维思想,压缩变量维数,分析多个变量之间的关系,将几个密切的变量归为同一类,同一类变量为一个因子,达到用较少的几个因子反映大量原始数据信息的目的.之后将选出的主因子进行多元线性回归,确定不同污染源对样品的污染贡献率.

基于特征值大于 1,对 3 个站点进行因子提取,3 个研究站点的因子累积方差贡献率均达到 80% 以



上,可以反映主要的污染源类型.根据富集因子分析结果:V、Co 和 Fe 受自然源影响,不受人为污染,所以选用受人为活动影响较大 Se、Sb、Cd、As、Sb、Cu、Zn、Pb 和 Cr 9 种元素进行因子分析.

平顶山站点提取的 4 个贡献因子累积贡献率达到 81.83%,因子 1 中 Cu、Cd、Zn 和 Sb 具有较高的载荷,贡献率为 32.36%,Cu 主要来源于燃煤过程、交通排放和冶金尘<sup>[21]</sup>,Cd 作为主要杂质存在于汽车轮胎和润滑油中<sup>[22,23]</sup>,Sb 来源于刹车磨损和汽车排放尾气<sup>[24]</sup>,Zn 主要来源于机动车尾气、燃煤过程和橡胶轮胎的磨损<sup>[21]</sup>,且该站点附近有一条高速公路,存在着一定的车流量,所以因子 1 反映了交通污染源对该站点的影响.Ni 和 Cr 在因子 2 中载荷较

表 3 3 个站点 PM<sub>2.5</sub> 中元素因子旋转载荷矩阵Table 3 Element factor rotation load matrix in PM<sub>2.5</sub> in samples from three sites

元素	平顶山				随州				武汉	
	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2
Cd	0.841	-0.076	0.222	-0.017	0.948	0.050	-0.139	0.225	-0.006	0.978
Cu	0.808	0.410	0	0.015	-0.101	-0.020	0.886	-0.133	0.822	0.018
Zn	0.684	-0.173	-0.008	0.485	-0.095	-0.324	0.776	0.082	0.361	0.869
Sb	0.633	-0.140	0.180	-0.550	-0.020	0.759	-0.046	0.541	0.795	-0.232
Cr	0.035	0.984	0.066	-0.116	-0.103	0.918	-0.073	-0.031	0.856	0.376
Ni	-0.001	0.976	0.114	-0.048	0.033	0.199	0.637	-0.534	0.879	0.164
As	-0.026	0.231	0.915	-0.123	0.327	0.117	-0.100	0.868	0.821	0.028
Pb	0.499	-0.073	0.759	0.114	0.908	-0.169	0.019	0.127	-0.025	0.957
Se	0.060	-0.087	0.005	0.773	0.558	0.553	-0.287	-0.269	0.877	0.310
方差贡献率/%	32.36	25.05	13.23	11.19	33.27	20.86	16.15	13.05	53.32	35.99

高, 不锈钢的成分组成中 Cr 和 Ni 的比例分别为 20% 和 10% 左右<sup>[25]</sup>, 该站点附近的产业集聚区存在一些不锈钢企业, 在生产过程中很有可能造成 Cr、Ni 污染, 且高负载的 Ni 是石油类燃烧的特征元素<sup>[26]</sup>, 且在富集因子分析中, 平顶山地区 Ni 元素的富集系数明显高于随州和武汉地区, 这可能是由于在平顶山地区的能源结构中石油仅次于煤居第二位<sup>[27]</sup>, 燃油产生的 Ni 随烟尘排放到大气中, 因此因子 2 可以反映工业污染/燃油源对该站点的影响; 因子 3 解释了总方差的 13.23%, 其中 As 和 Pb 的负荷较高, Pb 的来源较为广泛, 包括机动车排放、冶金工业及煤燃烧排放. Bressi 等<sup>[28]</sup>的研究结果表明: 无 Pb 汽油的推广改善了机动车的 Pb 排放问题, 张银晓等<sup>[29]</sup>在研究民用燃煤细颗粒物中的元素排放特征中发现 Pb 元素在民用燃煤排放的金属元素中占主要地位, 平顶山站点属于农村站点, As 是煤燃烧排放特征元素<sup>[30]</sup>, 所以因子 3 可以反映燃煤源对该站点的影响; 因子 4 中 Se 和 Zn 的载荷较高, 贡献了总方差的 11.19%, 其中的 Zn 的来源较为广泛, 包括机动车尾气、燃煤过程和橡胶轮胎的磨损, 根据富集因子分析结果表明: 平顶山站点 Se 元素的富集因子最高, 属于极严重富集. 张秀芝等<sup>[31]</sup>的研究表明: 煤矿石中 Se 的富集系数很高, 且煤矿区周围 500 km<sup>2</sup> 的土壤中 Se 元素的含量极其丰富, 平顶山是我国第二大能源供应基地, 煤炭资源丰富, 所以因子 4 可以反映矿区土壤扬尘对该站点的影响.

随州站点提取的 4 个因子累积贡献率达到 83.32%, 因子 1 中负载较高的是 Cd 和 Pb, 贡献了总方差的 33.27%, 从富集因子分析结果得随州站点 Pb 元素的富集系数低于平顶山和武汉站点, 且随州站点属于郊区站点, 附近车流量较少, 除汽车排放源以外, Pb 还可能来源于冶金等工业产生的尘, Cd 可能来源于工业生产释放的废气<sup>[32]</sup>, 随州站点周围有较多的工业园区, 所以因子 1 可能主要反映冶金尘

和工业污染源的影响; 因子 2 中 Cr 和 Sb 具有较高负荷, 方差贡献率为 20.86%, 铬和铬盐属于重要的工业原料, 来源于电镀、化工和冶金等<sup>[22]</sup>, 且在制造刹车材料含有的元素中 Sb 占有较高比例<sup>[24]</sup>, 随州站点附近的工业园区中汽车制造业及电镀、化工等企业较多, 所以因子 2 代表电镀、汽车制造等污染源对该站点的影响; 因子 3 中 Cu、Zn 和 Ni 具有较高载荷, 其中 Cu 的来源包括燃煤燃油过程、交通排放和冶金尘等, Zn 的来源包括机动车尾气、燃煤燃油过程和橡胶轮胎的磨损, 高负载的 Ni 是石油类燃烧的特征元素, 所以因子 3 可以反映燃油源对该站点的影响; 因子 4 贡献了方差的 13.05%, 其中 As 元素的载荷较高, As 是煤燃烧排放特征元素, 所以因子 4 反映了燃煤源对该站点的影响.

武汉站点提取出 2 个贡献因子, 因子 1 中的 Cr、Se、Ni、Cu、As 和 Sb 具有较高的载荷, As 是燃煤排放的特征元素, Ni 主要来源于石油类燃烧, Cu 的来源较广, 武汉站点属于城市站点, 且武汉拥有中国大型钢铁公司武汉钢铁集团, 钢铁冶炼、燃煤燃油等工业排放较为严重, 所以因子 1 反映钢铁冶炼及燃煤燃油等工业污染源对该站点的影响, 方差贡献率占 53.32%; 因子 2 中 Pb、Cd 和 Zn 负荷较高, Zn 可能来源于机动车尾气和橡胶磨损, 且汽车内部磨损也会释放一定量的 Pb, Cd 作为主要杂质存在于汽车轮胎和润滑油中. 由于武汉采样点位于城市交通道路旁, 交通流量较大, 机动车尾气排放严重, 所以因子 2 代表机动车污染源对该站点的影响, 方差贡献率占 35.99%.

对 3 个站点进行多元线性回归分析, 分别得到每个站点的回归方程.

平顶山站点:

$$Y = 0.344F1 + 0.817F2 + 0.086F3 + 0.164F4$$

$$(R^2 = 0.826, \alpha = 0.001, F = 12) \quad (2)$$

随州站点:

$$Y = 0.196F_1 + 0.161F_2 + 0.834F_3 + 0.344F_4$$

$$(R^2 = 0.616, \alpha = 0.023, F = 5) \quad (3)$$

武汉站点:

$$Y = 0.682F_1 + 0.412F_2$$

$$(R^2 = 0.848, \alpha = 0.003, F = 23) \quad (4)$$

式中,  $R^2$  值为显著性水平,  $\alpha$  为显著性水平,  $F$  为检验统计量; 检测值均符合  $0 < \alpha \leq 0.05$ , 故认可讨论中建立的回归方程具有统计学意义, 即自变量和因变量之间存在线性关系。

分析结果表明: 平顶山站点的污染源包括: 交通污染源 (24.40%)、工业污染/燃油源 (57.90%)、燃煤源 (6.10%) 和矿区土壤源 (11.60%); 随州站点的主要污染来源是燃油源, 其贡献率为 54.30%, 其次是燃煤源 (22.40%), 冶金尘/工业污染源 (12.80%), 电镀/汽车制造等污染源 (10.50%); 武汉站点受工业排放影响最大, 其贡献率为 60.80%, 机动车污染源的贡献率为 39.20%。

上述结果表明, 工业燃油燃煤源均为当地的主要污染来源, 可能与当地的发展模式相关。平顶山站点和武汉站点的第二大污染源均为交通污染, 这主要受站点布置的影响; 随州站点的污染源较为复杂, 受工业污染影响较大; 从 3 个站点的污染源类型以及污染特征来看, 三站点的特征污染物存在较大差异, 不能看出 3 个站点之间存在气团传输。

#### 2.4 后向气团轨迹分析

运用 NOAA 空气资源实验室研发的 HYSPLIT 轨迹模型及结合 GIS 技术开发的 TrajStat 软件对 3 个站点进行后向轨迹聚类分析<sup>[33]</sup>, 数据来自美国国家环境预报中心提供的 GDAS 气象数据, 后推模拟时间选为 72 h, 轨迹起始点高度为 500 m。聚类分析结果如图 4 所示。

对武汉站点采样期间的气团轨迹进行聚类分析, 共得到 4 类, 其中第一类来自西南方向, 从广东的西南部开始, 经广西的东北部、湖南, 传入湖北, 到达武汉, 该类轨迹占总轨迹数的 11.96%; 第二类轨迹和第三类轨迹相类似, 如图 4, 其中第二类轨迹的起始点是上海, 经安徽中部, 到达武汉, 占轨迹总数的 25%, 第三类轨迹从东海方向传来, 该类轨迹传输距离较长, 经上海、安徽到湖北, 从东北方向传入武汉, 该类轨迹占总轨迹数的 20.65%; 第四类轨迹传输距离较短, 占总数的 42.39%, 从江西九江方向过黄石市阳新到咸宁, 沿咸宁从武汉市的南方向传入。

随州站点气团轨迹的聚类分析也有四类, 第一类轨迹传输距离较短, 占总轨迹的 41.30%, 从湖南开始过湖北, 到达随州站点; 第二类轨迹从随州站点

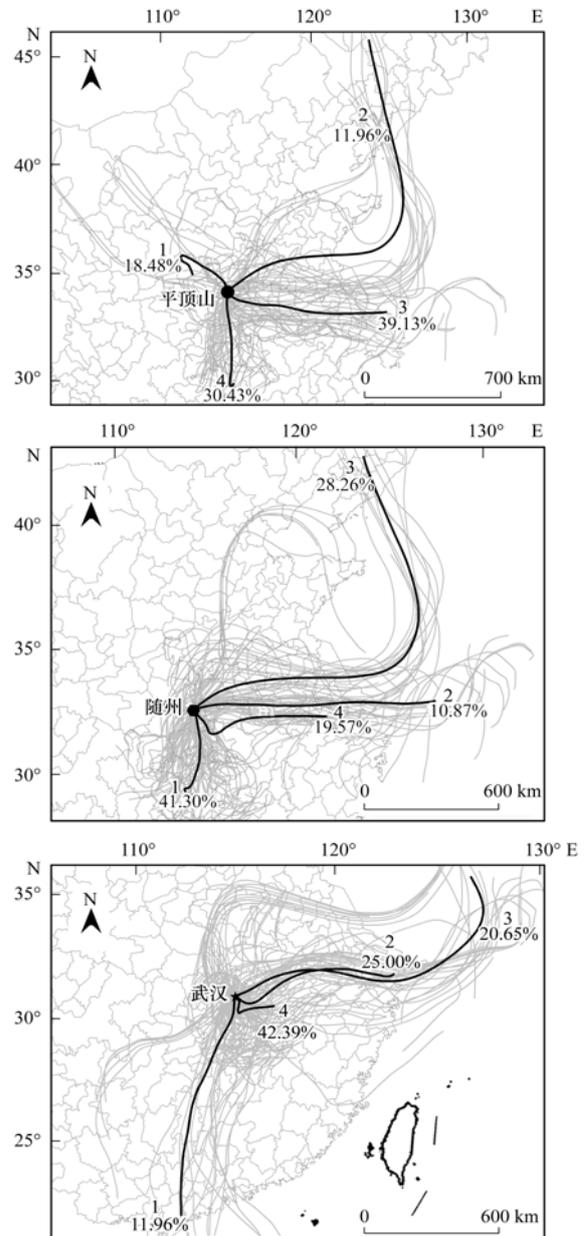


图 4 三站点后向轨迹聚类分析

Fig. 4 Backward trajectory clustering analysis for the three sites

的东方向传入, 占总轨迹数的 28.26%, 该类轨迹从东海起始, 经过江苏南部、安徽南部、河南东南部到达随州站点; 第三类轨迹传输距离较长, 从辽宁开始, 经黄海、江苏、安徽和河南, 到达随州, 占总轨迹的 10.87%; 第四类轨迹与武汉站点的第四类轨迹类似, 从江苏开始过安徽、武汉北部, 沿东南方向到达随州站点, 轨迹数所占比例为 19.57%。

对平顶山站点的气团轨迹进行聚类分析可知, 第一类轨迹传输距离最短, 从山西南部的运城方向传入河南, 沿平顶山站点的西北方向传入, 该类轨迹占总轨迹的 18.48%; 第二类轨迹与随州站点的第三类轨迹相类似, 从吉林辽宁方向开始, 过黄海、山东南部、郑州, 到平顶山站点, 该类轨迹所占比例最小, 为 11.96%, 且传输距离最长; 第三类轨迹从东海

开始,经江苏中部、安徽北部,从平顶山站点的东南方向传入,轨迹所占比例为 39.13%;第四类轨迹从湖北南部开始,经过随州传入河南,该类气团轨迹占总轨迹的 30.43%。

对比 3 个站点的气团传输轨迹的聚类分析结果,并结合 PCA-MLR 分析结果以及随州站点的地理位置:当地的工业集聚区主要分布于该站点的南方向以及东南方向。因此,随州站点主要受当地工业集聚区污染;平顶山站点有从随州方向来的气团,该类气团轨迹占总轨迹的 30.43%。有 18.48% 的气团轨迹沿平顶山的西北方向传入该站点,且该类轨迹是从山西南部的运城方向传入河南,山西运城市是重工业能源基地<sup>[34]</sup>,气团可能携带运城当地工业过程产生的大气污染物传入平顶山站点,且平顶山站点的西方向和西北方向有一些产业集聚区,其中包含有煤炭企业、不锈钢厂和化工企业,其生产过程中产生的大气污染物可能会随从山西运城方向传入的气团一起到达平顶山站点。这可能是造成平顶山站点工业污染比重较大的原因。武汉站点的第三类轨迹从武汉的东北方向传入,武汉钢铁有限公司的烧结厂、焦化厂都位于武汉站点的东北方向,该类轨迹气团可能会携带部分烧结和焦化等工业生产过程中产生的大气污染物到达采样点。

3 个站点的后向轨迹聚类结果表明:3 个站点都有 50% 左右的气团从东海和上海方向传入当地,这是由于夏季华中平原主要受亚热带季风和温带海洋气团的影响,风向主要以东风或东南风为主,来自海上的气团较为清洁;武汉站点没有来自北方的污染源输送,结合 PCA-MLR 分析结果,武汉和随州站点主要受当地源排放影响;平顶山站点有来自随州方向的气团传入,随州地区的污染源较为复杂,且两地的污染源都以工业排放的燃油源占比最高,气团可能会携带随州地区的污染物传入平顶山站点,所以平顶山站点的污染源受当地排放和外源汇入共同影响。

### 3 结论

(1) 平顶山、随州和武汉 3 地 PM<sub>2.5</sub> 中的痕量元素均以 Zn 含量最高,3 个站点的 As 元素的含量已严重超标,平顶山站点的 Cr、Ni 和 Pb 元素的含量明显高于随州和武汉站点,随州站点的 Zn 和 Cu 元素含量高于其它两站点。

(2) 富集因子分析结果表明:3 个站点的 Se、Sb、Cd、As、Cu 和 Zn 元素均受人为污染严重,其中 As、Sb 和 Cd 元素的富集因子系数均大于 50,Se 元素的富集因子系数均高于 600。

(3) PCA-MLR 分析结果表明:平顶山站点的污染源包括:交通污染源(24.40%),工业污染/燃油源(57.90%),燃煤源(6.10%),矿区土壤源(11.60%);随州站点的主要污染来源是燃油源,其贡献率为 54.30%,其次是燃煤源(22.40%),冶金尘/工业污染源(12.80%),电镀/汽车制造等污染源(10.50%);武汉站点受工业排放影响最大,其贡献率为 60.80%,机动车污染源的贡献率为 39.20%。3 个站点的主要污染源均为工业燃油污染。后向轨迹分析结果表明:武汉和随州站点以当地排放为主,平顶山站点受当地排放和外源输入共同影响。

### 参考文献:

- [1] Liu Y Y, Xing J, Wang S X, *et al.* Source-specific speciation profiles of PM<sub>2.5</sub> for heavy metals and their anthropogenic emissions in China[J]. *Environmental Pollution*, 2018, **239**: 544-553.
- [2] Liu J W, Chen Y J, Chao S H, *et al.* Emission control priority of PM<sub>2.5</sub>-bound heavy metals in different seasons: a comprehensive analysis from health risk perspective[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **644**: 20-30.
- [3] Zhai Y B, Liu X T, Chen H M, *et al.* Source identification and potential ecological risk assessment of heavy metals in PM<sub>2.5</sub> from Changsha[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **493**: 109-115.
- [4] Soleimani M, Amini N, Sadeghian B, *et al.* Heavy metals and their source identification in particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) in Isfahan City, Iran [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **72**: 166-175.
- [5] Gao Y, Ji H B. Microscopic morphology and seasonal variation of health effect arising from heavy metals in PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub>: one-year measurement in a densely populated area of urban Beijing [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **212**: 213-226.
- [6] Zhang J Z, Zhou X H, Wang Z, *et al.* Trace elements in PM<sub>2.5</sub> in Shandong Province: source identification and health risk assessment[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **621**: 558-577.
- [7] Wang J, Hu Z M, Chen Y Y, *et al.* Contamination characteristics and possible sources of PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> in different functional areas of Shanghai, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **68**: 221-229.
- [8] Chang X, Wang S X, Zhao B, *et al.* Contributions of inter-city and regional transport to PM<sub>2.5</sub> concentrations in the Beijing-Tianjin-Hebei region and its implications on regional joint air pollution control[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **660**: 1191-1200.
- [9] Zhang Y R, Zhang H L, Deng J J, *et al.* Source regions and transport pathways of PM<sub>2.5</sub> at a regional background site in East China [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **167**: 202-211.
- [10] Gao Y, Guo X Y, Ji H B, *et al.* Potential threat of heavy metals and PAHs in PM<sub>2.5</sub> in different urban functional areas of Beijing [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **178-179**: 6-16.
- [11] Huang H, Jiang Y, Xu X Y, *et al.* In vitro bioaccessibility and health risk assessment of heavy metals in atmospheric particulate matters from three different functional areas of Shanghai, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **610-611**: 546-554.

- [12] GB 3095-2012, 环境空气质量标准[S].
- [13] Hieu N T, Lee B K. Characteristics of particulate matter and metals in the ambient air from a residential area in the largest industrial city in Korea[J]. *Atmospheric Research*, 2010, **98**(2-4): 526-537.
- [14] Garza-Galindo R, Morton-Bermea O, Hernández-Álvarez E, *et al.* Spatial and temporal distribution of metals in PM<sub>2.5</sub> during 2013: assessment of wind patterns to the impacts of geogenic and anthropogenic sources [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2019, **191**(3): 165.
- [15] Zhang F, Wang Z W, Cheng H R, *et al.* Seasonal variations and chemical characteristics of PM<sub>2.5</sub> in Wuhan, central China[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **518-519**: 97-105.
- [16] 张蕾, 姬亚芹, 李越洋, 等. 钢铁冶炼尘两种采样方法 PM<sub>2.5</sub> 中元素的比较研究[J]. *中国环境科学*, 2018, **38**(12): 4426-4431.
- Zhang L, Ji Y Q, Li Y Y, *et al.* A comparative study on the elements of PM<sub>2.5</sub> in two sampling methods of steel dust[J]. *China Environmental Science*, 2018, **38**(12): 4426-4431.
- [17] 成杭新, 李括, 李敏, 等. 中国城市土壤化学元素的背景值与基准值[J]. *地学前缘*, 2014, **21**(3): 265-306.
- Cheng H X, Li K, Li M, *et al.* Geochemical background and baseline value of chemical elements in urban soil in China[J]. *Earth Science Frontiers*, 2014, **21**(3): 265-306.
- [18] 丁俊男, 王帅, 王瑞斌, 等. 河南省典型城市 PM<sub>2.5</sub> 无机元素污染特征及来源分析[J]. *中国环境监测*, 2017, **33**(6): 25-32.
- Ding J N, Wang S, Wang R B, *et al.* Characteristics and sources analysis of inorganic elements in PM<sub>2.5</sub> in typical cities of Henan Province[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2017, **33**(6): 25-32.
- [19] 张帆, 成海容, 王祖武, 等. 武汉大气 PM<sub>2.5</sub> 中微量元素的污染特征和来源分析[J]. *武汉大学学报(工学版)*, 2012, **45**(6): 757-761.
- Zhang F, Cheng H R, Wang Z W, *et al.* Pollution characteristics and sources analysis of trace elements in PM<sub>2.5</sub> in Wuhan City [J]. *Engineering Journal of Wuhan University*, 2012, **45**(6): 757-761.
- [20] Xing W Q, Zhao Q, Scheckel K G, *et al.* Inhalation bioaccessibility of Cd, Cu, Pb and Zn and speciation of Pb in particulate matter fractions from areas with different pollution characteristics in Henan Province, China[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, **175**: 192-200.
- [21] Yarkin S, Bayram A. Elemental composition and sources of particulate matter in the ambient air of a Metropolitan City[J]. *Atmospheric Research*, 2007, **85**(1): 126-139.
- [22] 李红丽, 田密, 杨复沫, 等. 重庆万州夏冬季 PM<sub>2.5</sub> 中重金属污染特征[J]. *环境影响评价*, 2014, (4): 47-51.
- [23] 王士宝, 姬亚芹, 李树立, 等. 天津市春季道路降尘 PM<sub>2.5</sub> 和 PM<sub>10</sub> 中的元素特征[J]. *环境科学*, 2018, **39**(3): 990-996.
- Wang S B, Ji Y J, Li S L, *et al.* Characteristics of elements in PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> in road dust fall during spring in Tianjin[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(3): 990-996.
- [24] 张静, 张衍杰, 方小珍, 等. 道路扬尘 PM<sub>2.5</sub> 中金属元素污染特征及健康风险评价[J]. *环境科学*, 2017, **38**(10): 4071-4076.
- Zhang J, Zhang Y J, Fang X Z, *et al.* Characteristics and health risk assessment of metallic elements in PM<sub>2.5</sub> fraction of road dust [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(10): 4071-4076.
- [25] 王化明, 张康, 张星. X 射线荧光光谱扩展基本参数法测定不锈钢中的多种成分[J]. *中国无机分析化学*, 2017, **7**(4): 73-79.
- Wang H M, Zhang K, Zhang X. Determination of various components in stainless steel with extended basic parameter method using XRF spectrometry[J]. *Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry*, 2017, **7**(4): 73-79.
- [26] 陈衍婷, 杜文娇, 陈进生, 等. 海西城市群 PM<sub>2.5</sub> 中重金属元素的污染特征及健康风险评价[J]. *环境科学*, 2017, **38**(2): 429-437.
- Chen Y T, Du W T, Chen J S, *et al.* Pollution characteristics of heavy metals in PM<sub>2.5</sub> and their human health risks among the coastal city group along western Taiwan Straits Region, China [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(2): 429-437.
- [27] Feng J L, Yu H, Mi K, *et al.* One year study of PM<sub>2.5</sub> in Xixiang city, North China: Seasonal characteristics, climate impact and source[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, **154**: 75-83.
- [28] Bressi M, Sciare J, Ghersi V, *et al.* Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris (France) [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14**(16): 8813-8839.
- [29] 张银晓, 卢春颖, 张剑, 等. 民用燃煤排放细颗粒中金属元素排放特征及单颗粒分析[J]. *中国环境科学*, 2018, **38**(9): 3273-3279.
- Zhang Y X, Lu C Y, Zhang J, *et al.* Emission characteristics and individual particle analysis of metals in fine particles emitted from residential coal burning[J]. *China Environmental Science*, 2018, **38**(9): 3273-3279.
- [30] Tian H Z, Wang Y, Xue Z G, *et al.* Trend and characteristics of atmospheric emissions of Hg, As, and Se from coal combustion in China, 1980-2007 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(23): 11905-11919.
- [31] 张秀芝, 马忠社, 王荫楠, 等. 唐山开滦煤矿区土壤及地表水中 Se 元素赋存状态及其生态效应研究[J]. *环境科学*, 2012, **33**(10): 3404-3410.
- Zhang X Z, Ma Z S, Wang Y N, *et al.* Occurrence form and ecological effect of selenium in soil and surface water of Kailuan coalfield of Tangshan [J]. *Environmental Science*, 2012, **33**(10): 3404-3410.
- [32] 周雪明, 郑乃嘉, 李英红, 等. 2011~2012 年北京大气 PM<sub>2.5</sub> 中重金属的污染特征与来源分析[J]. *环境科学*, 2017, **38**(10): 4054-4060.
- Zhou X M, Zheng N J, Li Y H, *et al.* Chemical characteristics and sources of heavy metals in fine particles in Beijing in 2011-2012[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(10): 4054-4060.
- [33] Su L, Yuan Z B, Fung J C H, *et al.* A comparison of HYSPLIT backward trajectories generated from two GDAS datasets [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **506-507**: 527-537.
- [34] 武媛媛, 李如梅, 彭林, 等. 运城市道路扬尘化学组成特征及来源分析[J]. *环境科学*, 2017, **38**(5): 1799-1806.
- Wu Y Y, Li R M, Peng L, *et al.* Chemical compositions and source apportionment of road dust in Yuncheng [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(5): 1799-1806.

## CONTENTS

Spatiotemporal Variations of PM <sub>2.5</sub> Pollution Evolution in China in Recent 20 Years	SHI Yan, LIU Rui-mei, LUO Yi, <i>et al.</i>	( 1 )
Characteristics of Aerosol Particulate Concentrations and Their Climate Background in Shanghai During 2007-2016	ZHENG Qing-feng, SHI Jun, TAN Jian-guo, <i>et al.</i>	( 14 )
Characteristics and Sources of Elements in PM <sub>2.5</sub> During Summer for Three Typical Cities in Pingdingshan-Suizhou-Wuhan, Central China	LIU Wei-jie, SHI Ming-ming, CHENG Cheng, <i>et al.</i>	( 23 )
PM <sub>2.5</sub> Pollution Characteristics During Winter and Summer in the Hohhot-Baotou-Ordos Region, China	LI Yi-ming, LIU Jia-yuan, SHI Guo-liang, <i>et al.</i>	( 31 )
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of PM <sub>2.5</sub> During Heavy Pollution in Shijiazhuang City Around New Year's Day 2019	ZHOU Jing-bo, DUAN Jing-chun, WANG Jian-guo, <i>et al.</i>	( 39 )
Modeling Studies of Source Contributions to PM <sub>2.5</sub> in Chengdu, China	XU Yan-ling, YI Ai-hua, XUE Wen-bo	( 50 )
Chemical Characteristics of Arsenic in PM <sub>2.5</sub> in Beijing	SHI Shao-xuan, YANG Yan-rong, QIN Juan-juan, <i>et al.</i>	( 57 )
Pollution Characteristics and Potential Source Contributions of Gaseous Elemental Mercury (GEM) During Summer and Autumn in Ningbo City	YI Hui, LIN Jia-mei, CAI Qiu-liang, <i>et al.</i>	( 65 )
Seasonal Characteristics and Source Analysis of Water-Soluble Ions in PM <sub>2.5</sub> of Anyang City	SUN You-chang, JIANG Nan, WANG Shen-bo, <i>et al.</i>	( 75 )
Analysis of Stable Carbon Isotope Characteristics of PM <sub>2.5</sub> in Summer and Winter Season in Xixiang City	YAN Guang-xuan, SONG Xin, ZHANG Jing-wen, <i>et al.</i>	( 82 )
Construction and Evaluation on Size Resolved Source Apportionment Methods Based on Particle Size Distribution of Chemical Species	LIANG Yong-li, TIAN Ying-ze, LIU Tong, <i>et al.</i>	( 90 )
Fine Particulate Emission Characteristics of an Ultra-Low Emission Coal-Fired Power Plant	WANG Run-fang, MA Da-wei, JIANG Shao-yi, <i>et al.</i>	( 98 )
Driving Factors of the Significant Increase in Surface Ozone in the Beijing-Tianjin-Hebei Region, China, During 2013-2018	YU Yi-jun, MENG Xiao-yan, WANG Zhen, <i>et al.</i>	( 106 )
Characteristic of Surface Ozone and Meteorological Parameters Analysis in Anyang City	YANG Jian, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i>	( 115 )
Emission Inventory of Intermediate Volatility Organic Compounds from Vehicles in the Yangtze River Delta in 2017 and the Impact on the Formation Potential of Secondary Organic Aerosols	WANG Qian, HUANG Ling, WANG Yang-jun, <i>et al.</i>	( 125 )
Exhaust Smoke of Non-Road Vehicles in Typical Cities of Eastern China	LU Jun, HU Qing-yao, YANG Qiang, <i>et al.</i>	( 133 )
Emission Status and Standards of Volatile Organic Compounds from Chinese and Foreign Bulk Petroleum Terminals	HU Wei, REN Bi-qi, HUANG Yu-hu, <i>et al.</i>	( 139 )
Secondary Organic Aerosol Mass Yield and Characteristics from 4-ethylguaiaicol Aqueous ·OH Oxidation: Effects of Initial Concentration	ZHUANG Yu, CHEN Yan-tong, LI Xu-dong, <i>et al.</i>	( 146 )
Stable Isotope Characteristics and Vapor Source of Precipitation in the South and North Slopes of Wushaoling Mountain	XU Xiu-ting, JIA Wen-xiong, ZHU Guo-feng, <i>et al.</i>	( 155 )
Characteristics and Influencing Factors of Stable Hydrogen and Oxygen Isotopes in Groundwater in the Permafrost Region of the Source Region of the Yangtze River	WANG Shao-yong, HE Xiao-bo, DING Yong-jian, <i>et al.</i>	( 166 )
Hydrochemical and Isotopic Characteristics of the Lake Balkhash Catchment, Kazakhstan	SHEN Bei-bei, WU Jing-lu, Jilili Abuduwalli, <i>et al.</i>	( 173 )
Effect of a Comprehensive Improvement Project on Water Quality in Urban Lakes: A Case Study of Water Quality Variation in Lihu Lake Over the Past 30 Years	TIAN Wei, YANG Zhou-sheng, SHAO Ke-qiang, <i>et al.</i>	( 183 )
Detection Method, Distribution, and Risk Assessment of Pharmaceuticals and Personal Care Products in the Yellow Sea and the East China Sea	CHEN Xian, ZHANG Cai-jie, YANG Gui-peng, <i>et al.</i>	( 194 )
Occurrence and Risk Assessment of Organophosphate Esters in Source Water of the Nanjing Section of the Yangtze River	LI Dong, ZHANG Sheng-hu, ZHANG Qin, <i>et al.</i>	( 205 )
Spatial Distribution, Spectral Characteristics, and Sources Analysis of Dissolved Organic Matter from Baiyangdian Lake in Xiong'an New District During the Winter Freezing Period	ZHOU Shi-lei, SUN Yue, ZHANG Yi-ran, <i>et al.</i>	( 213 )
Spatial Characteristics, Risk Assessment, and Source Analysis of Elements in Surface Sediments from the Baiyangdian Lake	WANG Jing-zhong, LIU Zhou, WEI Hao, <i>et al.</i>	( 224 )
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Phthalate Esters in Surface Sediments of the Songhua River	WANG Huan, YANG Yong-zhe, WANG Hai-yan, <i>et al.</i>	( 232 )
Occurrence Relationship Between Microplastics and Heavy Metals Pollutants in the Estuarine Sediments of Poyang Lake and the Yangtze River	LI Wen-hua, JIAN Min-fei, LIU Shu-li, <i>et al.</i>	( 242 )
Effect of Ozonation on Microorganism in the Biological Activated Carbon and Disinfection By-Products in the Effluent	LIU Bao-ming, WANG Xi-xi, ZHANG Xiao-xia, <i>et al.</i>	( 253 )
Refined Assessment of Exposure and Health Risks of Heavy Metals in Water for the Children in Xigu District, Lanzhou	CHEN Yue-fang, SUN Shan-wei, DUAN Xiao-li, <i>et al.</i>	( 262 )
Adsorption of Phosphate on Mg/Fe Layered Double Hydroxides (Mg/Fe-LDH) and Use of Mg/Fe-LDH as an Amendment for Controlling Phosphorus Release from Sediments	WU Jun-lin, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i>	( 273 )
Characteristics and Mechanism of Monothioarsenate Adsorption on Sand, Sediment, and Goethite	LIAO Dan-xue, SHAN Hui-mei, PENG San-xi, <i>et al.</i>	( 284 )
Substructure Characteristics of Combined Acid-Base Modified Sepiolite and Its Adsorption for Cd(II)	XIE Sha, XU Ying-ming, YAN Cui-xia, <i>et al.</i>	( 293 )
Characteristics of Nitrogen Metabolism by Denitrifying Bacterial Agents in Low Dissolved Oxygen Black Odor Water	ZHAO Zhi-rui, LIU Shuo, LI Duo, <i>et al.</i>	( 304 )
Metagenomic Analysis of Antibiotic Resistant Bacteria and Resistance Genes in a Pharmaceutical and Chemical Wastewater Treatment Plant	CHEN Hong-ling, ZHANG Xing-tao, WANG Qing, <i>et al.</i>	( 313 )
Measurements of Bacterial Community and Biodiversity from Activated Sludge for a Wastewater Treatment Containing Starch	ZHAO Ting-ting, QIAO Kai, WANG Lei, <i>et al.</i>	( 321 )
Process Control and Operation Optimization of PN-SAD Coupling Process Based on SBR-ABR	CHEN Chong-jun, ZHANG Min, JIANG Ying, <i>et al.</i>	( 330 )
Effects of Intermittent Starvation on the Operation of the SNAD Process	LI Dong, LIU Zhi-cheng, XU Gui-da, <i>et al.</i>	( 337 )
Nitrogen Removal from Mature Landfill Leachate via Denitrification-Partial Nitrification-ANAMMOX Based on a Zeolite Biological Aerated Filter	CHEN Xiao-zhen, WANG Xiao-jun, Karasuta Chayangkun, <i>et al.</i>	( 345 )
Rapid Achievement of Nitrifying Micro-granular Sludge and Its Nitrification Function	LIU Wen-ru, SONG Jia-jun, WANG Jian-fang, <i>et al.</i>	( 353 )
Effect of On/Off Aeration Time Ratio Under High Frequency On/Off Aeration on Performance of Nitrosated Granular Sludge	ZHANG Jie, LAO Hui-mei, LI Dong, <i>et al.</i>	( 360 )
Occurrence, Distribution, Source, and Health Risk Assessment of Polybrominated Diphenyl Ethers in Surface Soil from the Shen-Fu Region, Northeast China	XIANG Xin-xin, LU Yin-tao, RUAN Qi-yang, <i>et al.</i>	( 368 )
Vertical Pollution Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Heterogeneous Unsaturated Zone Under a Coking Plant	MENG Xiang-shuai, WU Meng-meng, CHEN Hong-han, <i>et al.</i>	( 377 )
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes and Mobile Genetic Elements in Beijing Vegetable Base Soils	ZHANG Ru-feng, SONG Yuan, GAO Hao-ze, <i>et al.</i>	( 385 )
Stoichiometric Characteristics of Purple Sloping Cropland Under Long-term Fertilization and Cultivation	DU Ying-ni, LI Tian-yang, HE Bing-hui, <i>et al.</i>	( 394 )
Ecological Stoichiometry of Carbon, Nitrogen, and Phosphorus in Subtropical Paddy Soils	SONG Jia-ling, SHENG Hao, ZHOU Ping, <i>et al.</i>	( 403 )
Denitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation in Soil Nitrogen Migration Process in a Farmland of Wanshandang Lake	CHEN Zhi-hao, QIN Yun-bin, DING Bang-jing, <i>et al.</i>	( 412 )
Effects of Straw Biochar on Soil Microbial Metabolism and Bacterial Community Composition in Drip-irrigated Cotton Field	WANG Jing, MA Li-juan, LONG Ze-hua, <i>et al.</i>	( 420 )
Source Appointment of Heavy Metals in Agricultural Soils of the Julong River Basin Based on Positive Matrix Factorization	HUANG Hua-bin, LIN Cheng-ni, HU Gong-qi, <i>et al.</i>	( 430 )
Spatial Distribution of Soil Arsenic and Arsenic Enrichment in Crops in the Oasis Region of the Southeastern Tarim Basin	CHEN Yun-fei, ZHOU Jin-long, ZENG Yan-yan, <i>et al.</i>	( 438 )
Bioavailability, Translocation, and Accumulation Characteristic of Heavy Metals in a Soil-Crop System from a Typical Carbonate Rock Area in Guangxi, China	MA Hong-hong, PENG Min, LIU Fei, <i>et al.</i>	( 449 )
Effects of Different Amendments on Fractions and Uptake by Winter Wheat in Slightly Alkaline Soil Contaminated by Cadmium and Nickel	ZHANG Jing-jing, ZHU Shuang-ge, ZHU Li-nan, <i>et al.</i>	( 460 )
Effect of Different Passivating Agents on the Stabilization of Heavy Metals in Chicken Manure Compost and Its Maturity Evaluating Indexes	LUAN Run-yu, GAO Shan, XU Ying-ming, <i>et al.</i>	( 469 )
Response of Soil Respiration and Its Components to Nitrogen and Phosphorus Addition in Farming-Withdrawn Grassland in the Semiarid Loess Hilly-Gully Region	ZHOU Jun-jie, CHEN Zhi-fei, YANG Quan, <i>et al.</i>	( 479 )
Subsequent Effects of Slag and Biochar Application on Greenhouse Gas Emissions from Paddy Fields in the Fuzhou Plain	LAN Xing-fu, WANG Xiao-tong, ZHOU Ya-xin, <i>et al.</i>	( 489 )