

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, 缪恒峰, 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, 胡优优, 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)

黄土丘陵区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)

# 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

(南开大学环境科学与工程学院, 国家环境保护城市空气颗粒物污染防治重点实验室, 天津 300071)

**摘要:** 大气颗粒物污染源解析可以为大气污染防控提供科学支撑. 大部分颗粒物源解析研究是以化学组分为基础, 此外, 粒径特征也是颗粒物的重要属性之一, 通过分析化学组分的粒径特征, 有助于提高解析结果准确性. 针对目前组分粒径分布信息利用不充分的问题, 在三维多粒径因子分析模型(ABB)基础上, 将已知源类标识组分粒径分布信息作为约束限制, 构建基于组分粒径分布特征的多粒径源解析模型(SDABB). 通过模拟数据集对模型进行了评估, 探究了SDABB模型对源谱共线性和源贡献粒径分布相似性的敏感程度. 结果表明, ABB模型对源谱共线性和源贡献粒径分布相似性较敏感, 将粒径分布规律纳入后的SDABB模型, 两种情景效果均明显变优, 即SDABB模型可以较好解析共线性源类, 并且对贡献粒径分布相似性不敏感.

**关键词:** 大气颗粒物; 多粒径因子解析; 化学组分; 粒径分布; 敏感性

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)01-0090-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201907172

## 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, FENG Yin-chang

(State Environmental Protection Key Laboratory of Urban Ambient Air Particulate Matter Pollution Prevention and Control, College of Environmental Science and Engineering, Nankai University, Tianjin 300071, China)

**Abstract:** The analysis of the sources of atmospheric particulate pollution can provide scientific support for the prevention and control of air pollution. Most particulate matter (PM) source analysis studies are based on the chemical composition of PM. In addition, particle size characteristics are also one of the important properties of PM. The accuracy of analytical results can be improved by analyzing the particle size characteristics of chemical components. In this study we aim to solve the problem of insufficient utilization of component particle size information by using a three-dimensional multi-particle size factor analysis model (ABB), where the particle size distribution of marked components is regarded as the constraint limit, and a multi-particle size source analytical model (SDABB) based on the characteristics of the components particle size distribution is constructed. The sensitivity of the SDABB model to the collinearity of the source spectrum and the similarity of the particle size distribution of the source contributions are investigated by evaluating the model through the simulation of the data set. The results showed that the ABB model was sensitive to the collinearity of the source spectrum and to the similarity of the particle size distribution of the source contributions. When particle size distribution rules were incorporated into the SDABB model, the effects of the two scenarios were significantly improved, that is, the SDABB model was able to better analyze collinear source spectrum and was insensitive to the similarity of the contribution particle size distribution.

**Key words:** particulate matter; size-resolved factor analysis; chemical constituent; size distribution; sensitivity

颗粒物是影响人类健康和能见度的重要大气污染物之一<sup>[1,2]</sup>, 颗粒物通过其直接和间接的影响, 在全球气候变化和生态系统的循环中发挥着重要作用<sup>[3-5]</sup>. 因此为提出有效的大气污染防控措施, 准确识别并定量污染源在我国十分重要. 目前源解析技术中, 受体模型得到广泛应用, 如基于长时间序列受体数据的正定矩阵因子分解(PMF)模型, 基于详细源成分谱和受体数据的化学质量平衡(CMB)模型等<sup>[6-10]</sup>. 这些源解析方法都是基于颗粒物的化学组分, 对颗粒物化学组分的粒径分布信息利用不足.

粒径是颗粒物的重要属性, 不同的污染源有不同的标识组分, 而这些标识组分的粒径分布特征也存在差异. 如研究发现  $K^+$  在细粒径段标识生物质

燃烧源, 在粗粒径段来源于土壤尘或海盐气溶胶<sup>[11,12]</sup>; 在  $3 \sim 4 \mu\text{m}$  粒径段的  $\text{Ca}^{2+}$  主要来自长距离输送, 而  $7 \sim 8 \mu\text{m}$  粒径段则来源于本地源; 粗模态的  $\text{F}^-$  来源于土壤和生物的腐烂, 而积聚态可以通过光化学反应生成<sup>[13]</sup>. 因而在大气环境中, 不同的组分由于排放源差异以及排放至大气后的变化造成组分粒径分布的差异性, 不同组分呈现出不同的峰值情况, 单峰、双峰或者多峰分布<sup>[3,14,15]</sup>. 如民用散煤排放的颗粒物质量和钢铁厂排放的  $\text{Na}$  粒径分布

收稿日期: 2019-07-19; 修订日期: 2019-08-28

基金项目: 国家自然科学基金项目(21707071)

作者简介: 梁永莉(1995~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气污染防治, E-mail: liangyl@mail.nankai.edu.cn

\* 通信作者, E-mail: tianyingze@hotmail.com

特征为在细模态呈现一个峰值,在粗模态呈现两个峰值<sup>[14,15]</sup>. 因此研究颗粒物化学组分的粒径分布特征、筛选稳定的粒径分布规律和探究粒径分布的变化对于研究大气中的颗粒物有非常重要的意义<sup>[16,17]</sup>.

随着监测手段的发展,可以获得包括组分、粒径和时间的多维受体数据. 目前使用的二维源解析技术解析多粒径数据主要采用单粒径单独解析、利用所有粒径的平均值解析或是所有粒径通过“首尾相接”组成二维数据集进行解析<sup>[18]</sup>, 解析出的不同粒径段是相同的源成分谱,与实际情况存在出入. 基于平行因子分析的三维模型(PMF3)是较常用的多维源解析方法,有学者通过 PMF3 模型分析了同步采集的 PM<sub>10</sub> 和 PM<sub>2.5</sub> 数据,建议在能得到多粒径的颗粒物组分数据时可以使用 PMF3 模型<sup>[19]</sup>;也有学者通过模拟实验方法研究了粒径之间源成分谱差异性对 PMF3 的影响,结果证明差异性越大,PMF3 结果越不理想,基于此,其对该算法进行发展,建立新型多粒径受体模型(ABB),提出多维因子分析模型可以更好地挖掘粒径信息<sup>[20]</sup>. 有研究在 ABB 模型的基础上将实际源成分谱中标识组分的粒径分布以比值形式纳入算法中,增加模型的物理限制,解析得到的成分谱粒径分布更合理,源贡献的粒径分布与实际更为相符<sup>[21]</sup>.

目前的多维因子分析模型研究尚未深入,对粒径分布信息的利用尚不充分,需要研究更精细的多粒径受体模型<sup>[22]</sup>. 通过将不同污染源标识组分的粒径分布信息纳入源解析体系,可以充分挖掘化学组分、粒径和时间等多维度信息,解决源类共线性等问题,提高源解析结果准确性<sup>[18]</sup>. 因此,本研究针对目前颗粒物组分粒径分布信息利用不充分的问题,在三维因子解析基础上,将标识组分粒径分布信息作为约束,构建一种基于大气颗粒物化学组分粒径分布特征的源解析方法,并通过模拟数据集对模型进行了评估,通过利用颗粒物化学组分粒径分布信息提高了模型源解析结果的可靠性.

## 1 材料与方法

### 1.1 模拟数据集构建

为了评估改进模型的性能,利用模拟数据集进行模拟实验可以对模型计算值与环境真实值进行差异与相关性比较,从而更可靠地评估改进模型的适用性<sup>[17,18]</sup>. 本研究构建的源谱来源为实测源谱和文献<sup>[23~28]</sup>. 源贡献粒径分布构建方式为,依据已有研究和实验中粒径分布特征,得到每个源在不同粒径段的归一化占比,依据每个源在各粒径段的源

贡献占比构建源贡献浓度,使得每个源在不同粒径段源贡献浓度加和为 100  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . 用 SPSS 输出均值为 1,标准偏差为 0.1 的 300 d 标准贡献矩阵,用各个源各个粒径段贡献均值乘以输出的标准贡献矩阵得到贡献矩阵 G. 设置标准贡献矩阵的原因一是同一源在不同粒径段的日贡献变化趋势是相同的,故用一套日贡献值满足实际情况;二是不同源贡献线性无关以防影响后续源解析共线性问题的突出.

为测试模型的性能,共设计两种情景. 情景一用于探究模型对于源谱共线性的敏感程度,在构建的源谱中,扬尘源和燃煤电厂在各粒径段的平均相关性为 0.70(表 1),源谱相似性很高,因此采用机动车尾气尘、二次硫酸盐、扬尘和电厂燃煤这 4 个源类 7 个粒径段的模拟源谱数据来探究模型对于源谱共线性的敏感程度,各类源贡献粒径分布见图 1. 情景二用于探究模型对源贡献粒径分布相似性的敏感程度,为避免源谱共线性对源贡献粒径分布相似性的影响,在源谱相似性较高的机动车和燃煤电厂源谱中选择一个源谱进行情景二的探究,本研究采用机动车尾气尘、二次硫酸盐和扬尘源这 3 个源类,这 3 个源都采用相同源贡献粒径分布,即图 1 中“相

表 1 模拟源谱中各粒径段扬尘和燃煤源谱相关性

Table 1 Correlation between dust and coal source spectra in the simulated source spectrum

粒径段/ $\mu\text{m}$	Pearson 相关系数
0~0.1	0.461
0.1~0.6	0.745
0.6~1.0	0.617
1.0~2.0	0.863
2.0~5.0	0.864
5.0~6.0	0.625
6.0~10.0	0.698

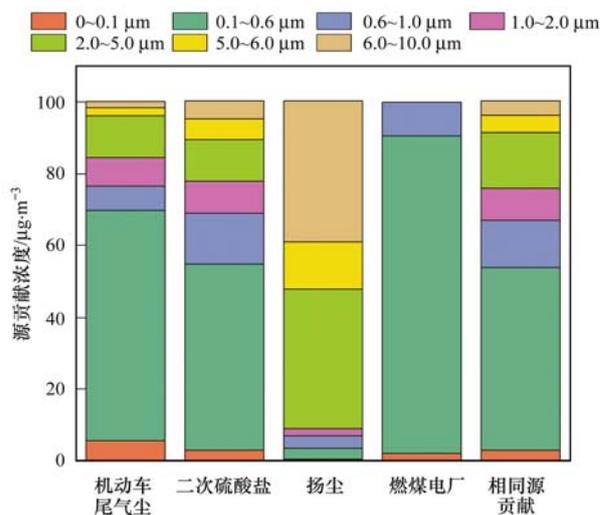


图 1 模拟各类源贡献粒径分布

Fig. 1 Simulation of contribution particle size distribution of various sources

同源贡献”,符合源贡献粒径分布相似性.图2为构建的模拟源谱.颗粒物浓度 $X$ 矩阵构建具体公式为:

$$c_{ijk} = \sum_{p=1}^p g_{ipk} f_{jpk} + e_{ijk} \quad (1)$$

式中, $c_{ijk}$ 是第 $k$ 粒径颗粒物的第 $i$ 个样品中第 $j$ 个组分的浓度( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ); $g_{ipk}$ 是第 $p$ 个源类对第 $k$ 粒径第 $i$ 个样品的贡献( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ); $f_{jpk}$ 是第 $p$ 个源中第 $k$ 粒径颗粒物的第 $j$ 个组分的含量( $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ); $e_{ijk}$ 为残差矩阵,此处未加扰动.

### 1.2 多粒径三维因子分析(ABB three-way)模型原理

之前的研究发现对于多粒径三维受体数据集,不同粒径段源谱存在差异,传统的因子分析模型解析得到的是同一套成分谱矩阵,与实际不符.因此其在平行因子分析模型的算法上构建了新型多粒径三维因子分析模型<sup>[18]</sup>.该模型对不同粒径段解析得到不同源谱矩阵和相同源贡献趋势矩阵,其主要

计算原理如公式(2)所示<sup>[18, 29]</sup>:

$$x_{ijk} = \sum_{p=1}^p a_{ip} b_{jpk} + e_{ijk} \quad (2)$$

式中, $x_{ijk}$ 是第 $k$ 粒径颗粒物的第 $i$ 个样品中第 $j$ 个组分的浓度( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ); $a_{ip}$ 是模拟计算得到的第 $p$ 个源类对第 $i$ 个样品的贡献( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ); $b_{jpk}$ 是第 $k$ 粒径颗粒物的第 $p$ 个源类成分谱中第 $j$ 个组分的含量( $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ); $e_{ijk}$ 为残差矩阵.

矩阵表达式如下:

$$\begin{aligned} X_1 &= c_1 AB_1, \\ X_2 &= c_2 AB_2, \\ &\dots\dots\dots \\ X_z &= c_z AB_z. \end{aligned} \quad (3)$$

式中, $X_z$ 是第 $z$ 个粒径颗粒物的受体浓度数据矩阵; $c_z$ 是比例因子; $A$ 是各粒径相同的源贡献值矩阵; $B_z$ 是第 $z$ 个粒径颗粒物的源成分谱矩阵.由于此模型

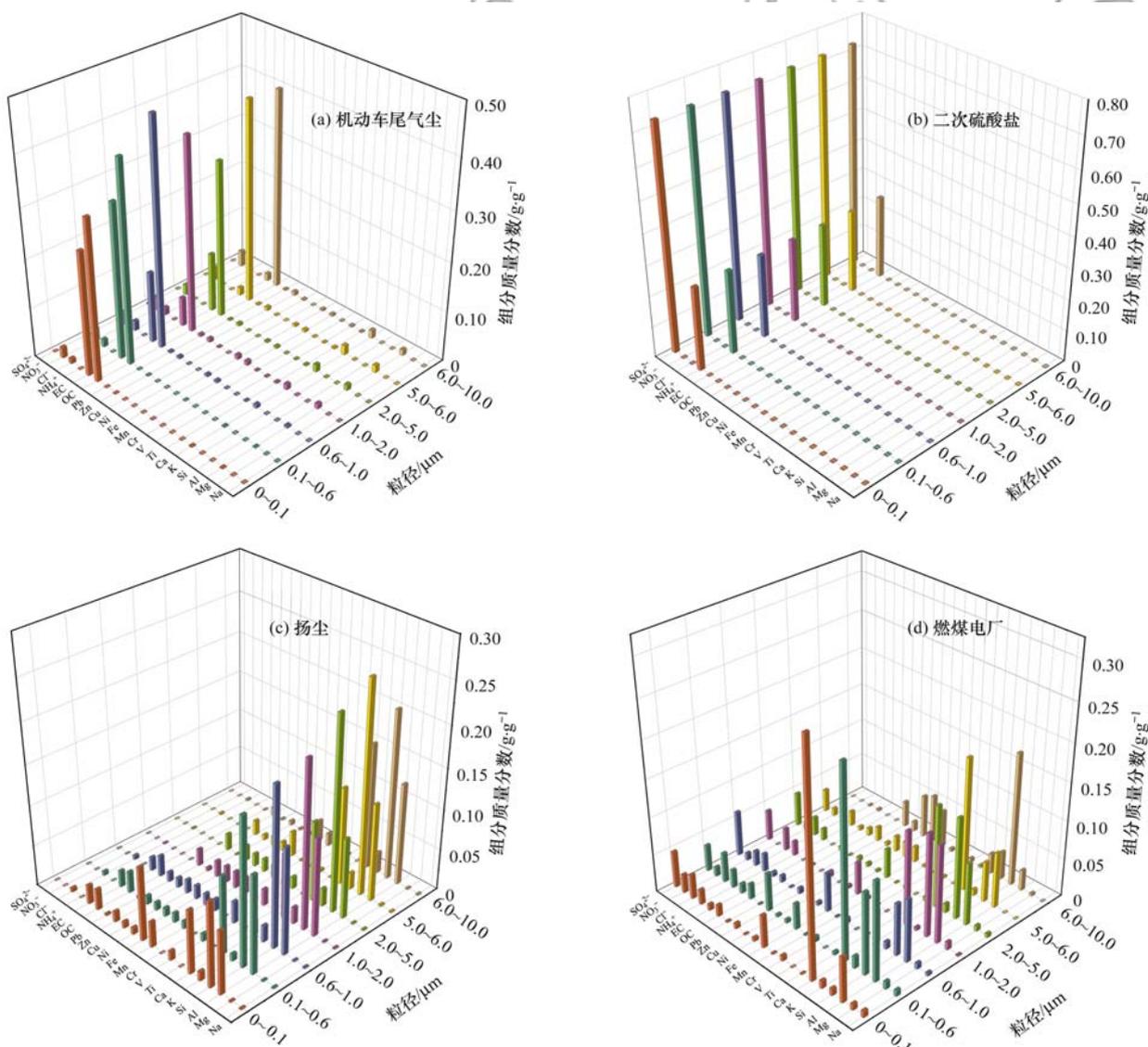


图2 模拟实验机动车、二次硫酸盐、扬尘和燃煤电厂源谱

Fig. 2 Source spectrum of motor vehicle emissions, secondary sulfate, dust, and coal-fired power plant emissions in the simulation experiment

解析得到的是一个源贡献矩阵  $A$  和多个源谱矩阵  $B$ , 因此多粒径新型三维因子分析模型的英文名称为“ABB three-way”模型<sup>[18]</sup>.

### 1.3 基于组分粒径分布特征的多粒径源解析模型构建

ABB 模型考虑了粒径间的关系, 但未纳入源类标识组分的粒径分布规律, 无法充分利用组分粒径分布信息. 为解决上述问题, 建立了 SDABB (ABB factor analysis method based on size distribution of markers) 模型. SDABB 为基于大气颗粒物标识组分粒径分布特征的三维因子分析, 并定量估算各源贡献<sup>[30]</sup>. 具体构建方式如下.

SDABB 模型基于 ME2 (multi-linear engine 2) 原理, 其中 ME2 是由 Paatero 建立的灵活的因子分析方法<sup>[30,31]</sup>, 并得到广泛应用的源解析方法. 由于来自同一源的组分有相似的时间变化趋势, 故 ME2 通过分析化学组分的时间序列将源进行区分. 具体公式为:

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij}, \quad g_{ik}, f_{kj} > 0 \quad (4)$$

式中, 组分浓度矩阵  $x_{ij}$  为第  $i$  天的样品中第  $j$  个组分的浓度; 源贡献矩阵  $g_{ik}$  为第  $i$  天第  $k$  个源的贡献; 源谱矩阵  $f_{kj}$  为第  $k$  个源中第  $j$  个组分的占比;  $e_{ij}$  为误差矩阵;  $p$  为源的个数.

ME2 方法被称为“脚本文件”, 它允许添加一系列限制. 先验信息作为加强目标函数的拉伸方程, 并取目标函数的最小值<sup>[29]</sup>. 通过辅助方程实现限制<sup>[32]</sup>:

$$a = f^{\text{initial}} + f^{\text{expectedstep}} \quad (5)$$

$$S = \frac{f^{\text{expectedstep}}}{\sqrt{dQ}} = \frac{a - f^{\text{initial}}}{\sqrt{dQ}} \quad (6)$$

式中,  $a$  代表目标值; 拉动参数  $S$  指定拉力的“柔软度”;  $S$  的值越大, 拉力越弱,  $Q$  的增加越小.  $dQ$  为用户定义的  $Q$  值改变的限制, 每次迭代后, 如果不收敛, 则  $a$  调整为:

$$a = f^{\text{initial}} + \max[2(f - f^{\text{initial}}), 0.1(f^{\text{expectedstep}}), 0.5(a - f^{\text{initial}})] \quad (7)$$

基于不同源的标识组分粒径分布特征存在差异, 选取了各源的标识组分作为指标化组分. 机动车的标识组分 OC 和 EC, 模型计算与模拟值的差异相似, 二次硫酸盐的  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$  同样差异相似, 扬尘的 Al 和 Si 差异也相似, 故对于不同源类的标识组分, 最后选择机动车的 OC、二次硫酸盐的  $\text{SO}_4^{2-}$ 、扬尘的 Si 和燃煤电厂的  $\text{Cl}^-$  作为指标化组分<sup>[23~28]</sup>.

本研究注重方法学研究, 利用模拟数据集进行实验, 主要对模型的构建和其敏感性进行了探究, 在

研究中存在一个基本假设, 即颗粒物从源排放到受体中其主要组分和标识组分的粒径分布未发生明显变化. 而在将实际观测数据纳入模型应用时, 需要积累大量真实环境数据, 筛选出稳定的粒径分布信息以及如何对粒径段进行合并.

## 2 结果与讨论

### 2.1 SDABB 模型对源谱共线性的敏感性探究

为比较模型计算结果与模拟真实结果的差异性, 本文利用分歧系数 (CD) 来评估模型解析得到的不同粒径的不同源类因子谱与真实源成分谱的差异, CD 值接近 0 表明两源类之间相似度较大, 接近 1 表明差异较大, CD 值计算公式见式 (8); 采用平均绝对误差 (AAE) 来评估解析得到的不同粒径段每天的贡献值和模拟真实贡献值的差异, AAE 值越小表明计算值与真实模拟值的差异越小, AAE 计算公式见式 (9):

$$CD_{jk} = \sqrt{\frac{1}{m} \sum_{m=1}^m \left( \frac{x_{ij} - x_{ik}}{x_{ij} + x_{ik}} \right)^2} \quad (8)$$

式中,  $x_{ij}$  为模型计算第  $i$  个组分的含量;  $x_{ik}$  为模拟第  $i$  个组分的含量;  $m$  为组分个数, 此处为 21.

$$\text{相对偏差} = \frac{1}{I} \times \sum_{i=1}^I \left| \frac{a_{ij} - b_{ij}}{b_{ij}} \right| \times 100\% \quad (9)$$

式中,  $a_{ij}$  为第  $i$  天的样品中第  $j$  个源的估计贡献;  $b_{ij}$  为第  $i$  天的样品中第  $j$  个源的真实模拟贡献;  $I$  是模拟天数, 本研究为 300 d.

将包含 7 个粒径段 4 个源的  $X$  矩阵纳入 SDABB 模型, 因子识别为 4 个源, 因子 1 包含了大量的 OC 和 EC, 识别为机动车; 因子 2 对应高载荷 Al、Si、Ca、Fe、AS、OC 和 EC, 因此识别为燃煤电厂源; 因子 3 富集了  $\text{SO}_4^{2-}$  和  $\text{NH}_4^+$ , 识别为二次硫酸盐; 因子 4 对应高载荷 Al、Si、Ca 和 Fe, 识别为扬尘源. 从计算源谱和模拟源谱 CD 值分析 (图 3), 各源在各粒径段的计算源谱与模拟源谱分歧系数较小, 各源在各粒径段的 CD 值小于 0.4, 所有粒径段 CD 值加和分别为 0.447、1.079、0.015 和 0.815. 其中二次硫酸盐的计算源谱和模拟源谱差异较小, 模拟结果较好, 在各粒径段 CD 值均小于 0.02; 而对于扬尘源在 0.1~0.6  $\mu\text{m}$  粒径段 CD 值最大, 为 0.342. 所有源在各粒径段平均 CD 值为 0.084. 而对于未纳入粒径分布信息的 ABB 模型结果, 各源所有粒径段 CD 值加和分别为 4.204、3.715、4.001 和 4.615, 所有源在各粒径段平均 CD 值为 0.591, 与 SDABB 模型相比较结果源谱差异增加. 所以模型纳入粒径分布信息后, 模型计算源谱与真实模拟源谱更为接近.

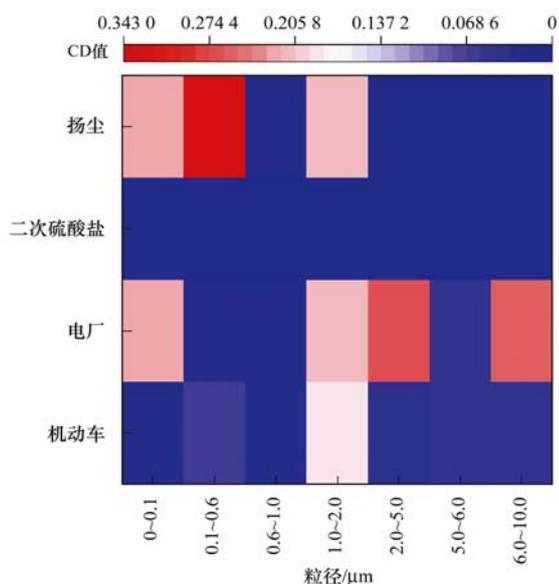


图3 SDABB模型计算源谱与模拟源谱分歧系数

Fig. 3 Coefficient of divergence between the source spectrum calculated by the SDABB model and the simulated source spectrum

从SDABB模型计算的源贡献粒径分布结果来看(图4),源贡献粒径分布各源计算与模拟差异均较小.机动车、燃煤电厂、二次硫酸盐和扬尘各粒径段源贡献加和分别为 $101$ 、 $101$ 、 $101$ 和 $100 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,与模拟值 $100 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 相接近,且计算与模拟粒径分布的相关系数均为 $1.000$ .而ABB模型计算各类源贡献粒径分布与模拟粒径分布差异大,机动车各粒径段源贡献加和为 $104 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,与模拟值 $100 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 相接近,相关系数为 $0.985$ ;燃煤粗粒径段被过分高估,后3个粒径段模拟加和为 $16 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,而计算加和为 $53 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,相关系数为 $0.873$ ;二次硫酸盐在粗粒径段被高估,相关系数为 $0.954$ ,整体粒径分布趋势较好;扬尘在 $0.1 \sim 0.6 \mu\text{m}$ 粒径段被过分高估,粗粒径段被过分低估,后3个粒径段计算加和为 $4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,而模拟加和为 $91 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ .扬尘细粒径段被高估,粗粒径段被低估与燃煤计算情况正相反,也表明燃煤和扬尘的共线性较强.因此,从源贡献粒径分布结果比较,利用粒径分布信息约束后模型对于共线性强的源类源贡献粒径分布解析结果变好.

对于计算源贡献与模拟源贡献的相对偏差,在纳入粒径分布规律后,各源各粒径段平均AAE值分别为 $1.67\%$ 、 $5.09\%$ 、 $0.79\%$ 和 $3.12\%$ .相同源在不同粒径段的相对偏差存在较大差异,燃煤电厂在 $2.0 \sim 5.0 \mu\text{m}$ 和 $6.0 \sim 10.0 \mu\text{m}$ 粒径段的相对偏差较大,分别为 $9.83\%$ 和 $17.76\%$ ,其他粒径段均较低;扬尘在小粒径段 $0 \sim 0.1 \mu\text{m}$ 和 $0.1 \sim 0.6 \mu\text{m}$ 粒径段相对偏差较大,分别为 $6.68\%$ 和 $7.86\%$ ,其他粒径段均较低.而对于ABB模型计算的源贡献结

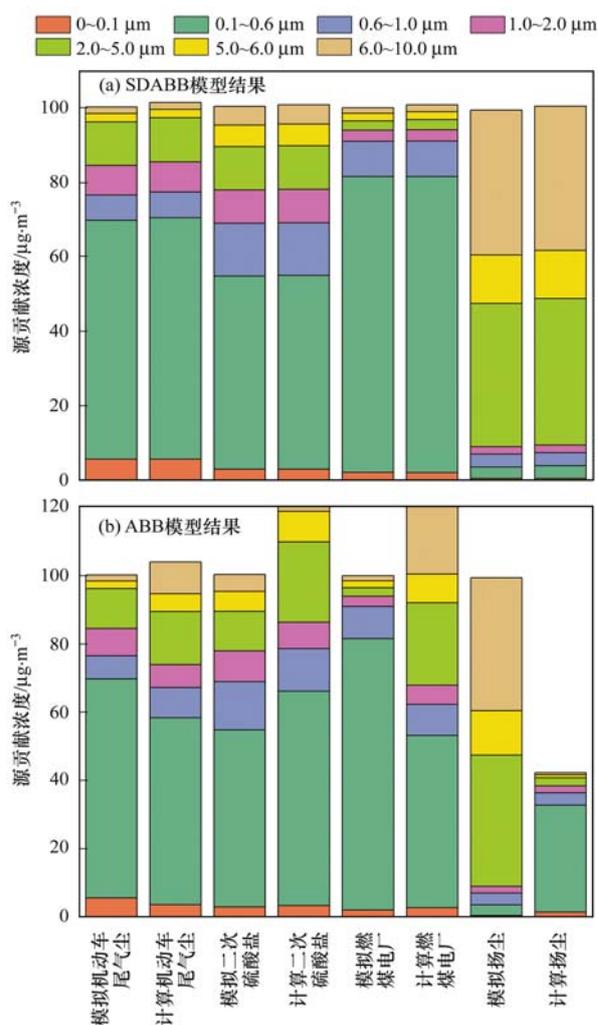


图4 各粒径段计算与模拟源贡献粒径分布

Fig. 4 Particle size distribution of source contribution calculated and simulated in each particle size segment

果,各源在各粒径段的AAE值与SDABB模型相比均较大,4个源各粒径段AAE平均值分别为 $38.58\%$ 、 $56.29\%$ 、 $36.47\%$ 和 $71.62\%$ .显然,在纳入已知源类标识组分的粒径分布信息后,模型计算的结果与真实模拟结果更为接近,解析结果更加准确.综上,纳入粒径分布信息后模型对共线性强的源类解析结果更为可靠.

## 2.2 SDABB模型对源贡献粒径分布相似性敏感性探究

为探究模型对于源贡献粒径分布相似性的敏感程度,设计了不同源相同源贡献粒径分布的情景来探究SDABB模型对不同源相同源贡献粒径分布(即同一粒径段不同源贡献相同)的敏感性.将机动车尾气尘、二次硫酸盐和扬尘这3个源输入相同的模拟源贡献粒径分布.解析因子识别分别为机动车、二次硫酸盐和扬尘.从模拟源谱和计算源谱的CD值来看(图5),各源在各粒径段的CD平均值为 $0.290$ 、 $0.026$ 和 $0.171$ ,整体差异性较小.三个源中

二次硫酸盐计算源谱与模拟源谱最接近,各粒径段均小于 0.007;最大值出现机动车的 1.0~2.0  $\mu\text{m}$  粒径段, CD 值为 0.55. 所有源各粒径段加和为 3.417. 而对于 ABB 模型计算源谱与模拟源谱的 CD 值, 3 个源平均值分别为 0.582、0.271 和 0.423, 所有粒径段加和为 8.931, 相较 SDABB 模型结果差异增加,可见模型纳入粒径分布规律后计算源谱与模拟源谱的差异减小,与真实源谱更为接近.

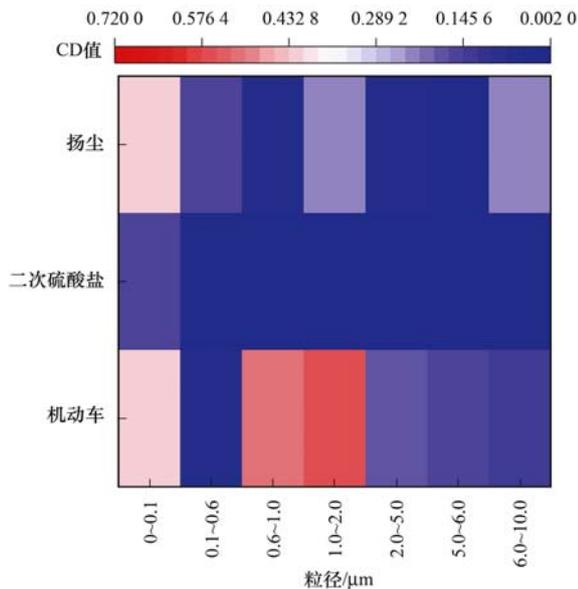


图5 SDABB 模型计算源谱与模拟源谱分歧系数

Fig. 5 Coefficient of divergence between the source spectrum calculated by the SDABB model and the simulated source spectrum

从 SDABB 模型计算源贡献粒径分布结果分析(图6),当3个源采用相同的源贡献粒径分布后,模型的计算结果仍然稳定.各源各粒径段的源贡献与模拟值相当,3个源在所有粒径段源贡献加和分别为 113、119 和 103  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,与模拟值 100  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  相似,且模拟粒径分布与解析计算的粒径分布结果也具有高度一致性.对于 ABB 模型结果,3个源的源贡献加和分别为 182、41 和 80  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,机动车被过分高估,计算值为模拟值的 1.81 倍,二次硫酸盐被过分低估,计算值为模拟值的 0.41 倍,各源在各粒径段总加和为 303  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,与模拟值 300  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  相似,但源贡献在各源分配上出现较大偏差.可见纳入粒径分布规律后计算源贡献粒径分布结果与模拟值相似性变高.

分析计算源贡献与模拟源贡献的相对偏差,对于纳入粒径分布规律的 SDABB 模型,3个源在各粒径段的相对偏差分别为 1.890%、5.610% 和 7.517%,源贡献差异小且各源在各粒径段的差异相当.而 ABB 模型结果各源在各粒径段的相对偏差均较大,分别为 43.100%、60.573% 和 26.816%,相对

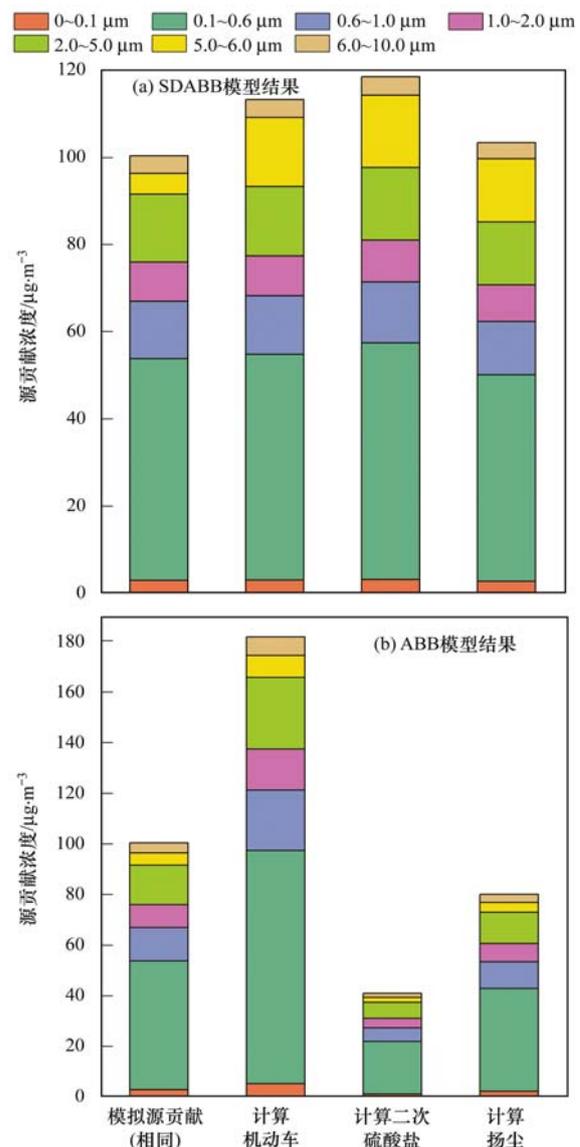


图6 各粒径段计算与模拟源贡献粒径分布

Fig. 6 Particle size distribution of source contribution calculated and simulated in each particle size segment

偏差显著增加. 综上,当不同源具有同源贡献粒径分布时,模型纳入粒径分布规律后解析结果与模拟情况相似性高,表明 SDABB 模型对源贡献粒径分布的相似性不敏感,与 ABB 结果相比,纳入粒径分布规律后结果明显变优.

### 3 结论

(1) 针对目前颗粒物组分粒径分布信息利用不充分的问题,将粒径分布规律纳入 ABB 模型,构建基于组分粒径分布特征的多粒径源解析模型(SDABB),具体指标参数化通过拉伸方程增加限制来实现.

(2) 针对源谱共线性强的源类,通过纳入标识组分粒径分布信息,SDABB 模型可以较好地解析共线性源类.

(3) 针对源贡献粒径分布相似性较强的源类, SDABB 模型结果与模拟情况一致, 说明 SDABB 模型对源贡献粒径分布的相似性较不敏感。

#### 参考文献:

- [1] Xie Y Y, Ye X N, Ma Z, *et al.* Insight into winter haze formation mechanisms based on aerosol hygroscopicity and effective density measurements[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(11): 7277-7290.
- [2] Han D M, Fu Q Y, Gao S, *et al.* Non-polar organic compounds in autumn and winter aerosols in a typical city of Eastern China: size distribution and impact of gas-particle partitioning on PM<sub>2.5</sub> source apportionment[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(13): 9375-9391.
- [3] Tian S L, Pan Y P, Wang Y S. Size-resolved source apportionment of particulate matter in urban Beijing during haze and non-haze episodes[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2015, **15**(6): 9405-9443.
- [4] 刘臻, 祁建华, 王琳, 等. 青岛大气气溶胶水溶性无机离子的粒径分布特征[J]. *中国环境科学*, 2012, **32**(8): 1422-1432.  
Liu Z, Qi J H, Wang L, *et al.* Particle size distribution of water-soluble inorganic ions of atmospheric aerosol in Qingdao[J]. *China Environmental Science*, 2012, **32**(8): 1422-1432.
- [5] Li X R, Wang L L, Ji D S, *et al.* Characterization of the size-segregated water-soluble inorganic ions in the Jing-Jin-Ji urban agglomeration: Spatial/temporal variability, size distribution and sources[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **77**: 250-259.
- [6] Wang S S, Hu G R, Yan Y, *et al.* Source apportionment of metal elements in PM<sub>2.5</sub> in a coastal city in Southeast China: combined Pb-Sr-Nd isotopes with PMF method[J]. *Atmospheric Environment*, 2019, **198**: 302-312.
- [7] Nayebar S R, Aburizaiza O S, Siddique A, *et al.* Ambient air quality in the holy city of Makkah: a source apportionment with elemental enrichment factors (EFs) and factor analysis (PMF) [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **243**: 1791-1801.
- [8] Crilley L R, Lucarelli F, Bloss W J, *et al.* Source apportionment of fine and coarse particles at a roadside and urban background site in London during the 2012 summer ClearLo campaign[J]. *Environmental Pollution*, 2017, **220**: 766-778.
- [9] Cesari D, Donato A, Conte M, *et al.* Inter-comparison of source apportionment of PM<sub>10</sub> using PMF and CMB in three sites nearby an industrial area in central Italy[J]. *Atmospheric Research*, 2016, **182**: 282-293.
- [10] 刘素, 马彤, 杨艳, 等. 太原市冬季 PM<sub>2.5</sub> 化学组分特征与来源解析[J]. *环境科学*, 2019, **40**(4): 1537-1544.  
Liu S, Ma T, Yang Y, *et al.* Chemical composition characteristics and source apportionment of PM<sub>2.5</sub> during winter in Taiyuan[J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(4): 1537-1544.
- [11] Kumar A, Attri A K. Biomass combustion a dominant source of carbonaceous aerosols in the ambient environment of western himalayas[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2016, **16**(3): 519-529.
- [12] Mazzei F, Lucarelli F, Nava S, *et al.* A new methodological approach: the combined use of two-stage streaker samplers and optical particle counters for the characterization of airborne particulate matter [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(26): 5525-5535.
- [13] Zhang J J, Tong L, Huang Z W, *et al.* Seasonal variation and size distributions of water-soluble inorganic ions and carbonaceous aerosols at a coastal site in Ningbo, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **639**: 793-803.
- [14] Jia J, Cheng S Y, Yao S, *et al.* Emission characteristics and chemical components of size-segregated particulate matter in iron and steel industry[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **182**: 115-127.
- [15] 杨国威, 孔少飞, 郑淑睿, 等. 民用燃煤排放分级颗粒物中碳组分排放因子[J]. *环境科学*, 2018, **39**(8): 3524-3534.  
Yang G W, Kong S F, Zheng S R, *et al.* Size-resolved emission factors of carbonaceous particles from domestic coal combustion in China[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(8): 3524-3534.
- [16] Chen S J, Liao S H, Jian W J, *et al.* Particle size distribution of aerosol carbons in ambient air [J]. *Environment International*, 1997, **23**(4): 475-488.
- [17] Xu Q P, Wang J Z, Liu J Q, *et al.* Particulate size distribution and sources evaluation of *n*-Alkanes during long-term haze episode around Chaohu lake, Eastern China[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2017, **17**(8): 1975-1984.
- [18] 田瑛泽. 基于大气颗粒物物理化学特征的三维源解析技术研究[D]. 天津: 南开大学, 2015.
- [19] Karanasiou A A, Siskos P A, Eleftheriadis K. Assessment of source apportionment by positive matrix factorization analysis on fine and coarse urban aerosol size fractions [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(21): 3385-3395.
- [20] Tian Y Z, Shi G L, Han B, *et al.* The accuracy of two- and three-way positive matrix factorization models: Applying simulated multisite data sets [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2014, **64**(10): 1122-1129.
- [21] Liu T, Tian Y Z, Xue Q Q, *et al.* An advanced three-way factor analysis model (SDABB model) for size-resolved PM source apportionment constrained by size distribution of chemical species in source profiles [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **242**: 1606-1615.
- [22] Shi G L, Tian Y Z, Ye S, *et al.* Source apportionment of synchronously size segregated fine and coarse particulate matter, using an improved three-way factor analysis model[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **505**: 1182-1190.
- [23] Alves C A, Gomes J, Nunes T, *et al.* Size-segregated particulate matter and gaseous emissions from motor vehicles in a road tunnel [J]. *Atmospheric Research*, 2015, **153**: 134-44.
- [24] 梅德清, 朱宗宁, 孙天硕, 等. 机动车源大气颗粒物粒径分布及碳组分特征[J]. *环境科学*, 2019, **40**(1): 114-120.  
Mei D Q, Zhu Z N, Sun T S, *et al.* Size distribution and carbon component characteristics of atmospheric particulate matter from motor vehicles[J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(1): 114-120.
- [25] Pant P, Harrison R M. Estimation of the contribution of road traffic emissions to particulate matter concentrations from field measurements: a review [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **77**: 78-97.
- [26] Dai Q L, Bi X H, Huangfu Y Q, *et al.* A size-resolved chemical mass balance (SR-CMB) approach for source apportionment of ambient particulate matter by single element analysis [J]. *Atmospheric Environment*, 2019, **197**: 45-52.
- [27] Cao J J, Chow J C, Watson J G, *et al.* Size-differentiated source profiles for fugitive dust in the Chinese Loess Plateau [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(10): 2261-2275.
- [28] Bi X H, Feng Y C, Wu J H, *et al.* Source apportionment of PM<sub>10</sub> in six cities of northern China [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(5): 903-912.
- [29] Peré-Trepát E, Kim E, Paatero P, *et al.* Source apportionment of

- time and size resolved ambient particulate matter measured with a rotating DRUM impactor [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(28): 5921-5933.
- [30] Amato F, Hopke P K. Source apportionment of the ambient  $PM_{2.5}$  across St. Louis using constrained positive matrix factorization [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **46**: 329-337.
- [31] Paatero P. The multilinear engine—A table-driven, least squares program for solving multilinear problems, including the  $n$ -Way parallel factor analysis model [J]. *Journal of Computational and Graphical Statistics*, 1999, **8**(4): 854-888.
- [32] Paatero P, Hopke P K. Rotational tools for factor analytic models [J]. *Journal of Chemometrics*, 2009, **23**(2): 91-100.

## 《环境科学》征稿简则

1. 来稿报道成果要有创新性,论点明确,文字精炼,数据可靠.全文不超过8 000字(含图、表、中英文摘要及参考文献).国家自然科学基金项目、国家科技攻关项目、国际合作项目或其它项目请在来稿中注明(在首页以脚注表示).作者投稿时请先登陆我刊网站([www.hjxx.ac.cn](http://www.hjxx.ac.cn))进行注册,注册完毕后以作者身份登录,按照页面给出的提示信息投稿即可.

2. 稿件请按 GB 7713-87《科学技术报告、学位论文和学术论文的编写格式》中学术论文的规范撰写.论文各部分的排列顺序为:题目;作者姓名;作者工作单位、地址、邮政编码;中文摘要;关键词;中图分类号;英文题目;作者姓名及单位的英译名;英文摘要;关键词;正文;致谢;参考文献.

3. 论文题目应简练并准确反映论文内容,一般不超过 20 字,少用副标题.

4. 中文摘要不少于 300 字,以第三人称写.摘要内容包括研究工作的目的、方法、结果(包括主要数据)和结论,重点是结果和结论.英文摘要与中文对应,注意人称、时态和语言习惯,以便准确表达内容.

5. 前言包括国内外前人相关工作(引文即可)和本工作的目的、特点和意义等.科普知识不必赘述.

6. 文中图表应力求精简,同一内容不得用图表重复表达,要有中英文对照题目.图应大小一致,曲线粗于图框,图中所有字母、文字字号大小要统一.表用三线表.图表中术语、符号、单位等应与正文一致.

7. 计量单位使用《中华人民共和国法定计量单位》(SI).论文中物理计量单位用字母符号表示,如 mg(毫克),m(米),h(小时)等.科技名词术语用国内通用写法,作者译的新名词术语,文中第一次出现时需注明原文.

8. 文中各级标题采用 1, 1.1, 1.1.1 的形式,左起顶格书写,3 级以下标题可用(1), (2)……表示,后缩 2 格书写.

9. 文中外文字母、符号应标明其大小写,正斜体.生物的拉丁学名为斜体.缩略语首次出现时应给出中文全称,括号内给出英文全称和缩略语.

10. 未公开发表资料不列入参考文献,可在出现页以脚注表示.文献按文中出现的先后次序编排.常见文献书写格式为:  
期刊:作者(外文也要姓名列前).论文名[J].期刊名,年,卷(期):起页-止页.

图书:作者.书名[M].出版地:出版社,年.起页-止页.

会议文集:作者.论文名[A].见(In):编者.文集名[C].出版地:出版社(单位),年.起页-止页.

学位论文:作者.论文名[D].保存地:保存单位,年份.

报告:作者.论文名[R].出版地:出版单位,出版年.

专利:专利所有者.专利题名[P].专利国别:专利号,出版日期.

11. 来稿文责自负,切勿一稿多投.编辑对来稿可作文字上和编辑技术上的修改和删节.在 3 个月内未收到本刊选用通知,可来电询问.

12. 投稿请附作者单位详细地址,邮编,电话号码,电子邮箱等.编辑部邮政地址:北京市 2871 信箱;邮编:100085;电话:010-62941102,010-62849343;传真:010-62849343;E-mail:[hjxx@cees.ac.cn](mailto:hjxx@cees.ac.cn);网址:[www.hjxx.ac.cn](http://www.hjxx.ac.cn)

## 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-ethylguaiaacol 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 Abuduwaili, <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 )