

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.5
第41卷 第5期

目次

上海大气 PM_{2.5} 来源解析对比:基于在线数据运用3种受体模型 周敏(1997)

不同浓度臭氧对单颗粒气溶胶化学组成的影响 吴梦曦,成春雷,黄渤,李梅,陈多宏(2006)

二次有机气溶胶壳对氯化钠核吸湿性的影响:基于单颗粒微观尺度 张淑佳,徐亮,郭新梅,黄道,李卫军(2017)

城区与县区不同空气质量下碳组分污染特征对比分析 李欣悦,张凯山,邓林俐,向铎鹏,武文琪,殷子渊(2026)

临沂市 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中元素分布特征及来源解析 陆平,赵雪艳,殷宝辉,张楠,王歆华,余浩,杨文,王晓丽(2036)

西安市秋冬季市区与山区微生物气溶胶组成特征及来源 谢雯文,路瑞,慕云飞,戚玉珍,白文艳,李彦鹏(2044)

北京市典型餐饮企业大气污染物排放特征 何万清,王天意,邵霞,聂磊,石爱军(2050)

基于随机森林模型的中国 PM_{2.5} 浓度影响因素分析 夏晓圣,陈菁菁,王佳佳,程先富(2057)

大气污染联合治理分区视角下的中国 PM_{2.5} 关联关系时空变异特征分析 杨文涛,黄慧坤,魏东升,赵斌,彭焕华(2066)

基于地-空观测数据的粤港澳大湾区大气污染调查及时空演变特征 王耀庭,梁加成,郑祚芳,李青春,李威,窦有俊(2075)

龙子祠泉域岩溶地下水水化学特征及成因 唐春雷,郑秀清,梁永平(2087)

三峡水库总磷时空变化特征及滞留效应分析 唐小娅,童思陈,黄国鲜,许光祥,李丹(2096)

三峡水库汛后蓄水期典型支流溶解氧与叶绿素 a 垂向分布特征 杨凡,纪道斌,王丽婧,李虹,李莹杰(2107)

汉丰湖正式运行年水体营养盐分布特征 付适,倪九派,何丙辉,李天阳,唐毅,钱田,向可翠(2116)

白洋淀水体富营养化和沉积物污染时空变化特征 刘鑫,史斌,孟晶,周云桥,可欣,王铁宇(2127)

新安江水库悬浮颗粒物时空分布、沉降通量及其营养盐效应 史鹏程,朱广伟,杨文斌,许海,朱梦圆,刘明亮,虞左明,吴志旭,郑文婷,王裕成,笄文怡,胡林娜(2137)

不同水文情景下高邮湖、南四湖和东平湖有色可溶性有机物的生物可利用性特征 张柳青,石玉,李元鹏,郭燕妮,周蕾,周永强,张运林,杨艳(2149)

水源水藻类功能群落演替特征及水质评价 李衍庆,黄廷林,张海涵,温成成,杨尚业,林子深,高欣(2158)

人工强制混合对金盆水库水体藻类群落结构时空演替的影响 王晨旭,黄廷林,李楠,齐允之,徐金兰,司凡,张晗,路林超(2166)

雄安新区-白洋淀冬季冰封期水体好氧反硝化菌群落空间分布特征及驱动因素 周石磊,孙悦,岳智丞,张航,王周强,刘世崇,彭瑞哲,苑世超,李再兴,崔建升(2177)

分层型水库水体好氧不产氧光合细菌时空演替特征 张海涵,王燕,黄廷林,王晨旭,路林超,司凡,李楠,刘凯文,闫苗苗,苗雨甜(2188)

大型通江湖泊有色可溶性有机物对不同水文情景的响应 郭燕妮,李元鹏,石玉,张柳青,周蕾,周永强,张运林,韩龙飞(2198)

秦岭北麓河流夏季有色溶解有机物分布特征及影响因素 林子深,黄廷林,杨尚业,温成成,李衍庆,周石磊,宋选社(2210)

长江下游支流水体中多环芳烃的分布及生态风险评估 贾天琪,雷荣荣,武小琳,倪涛涛,孙树睿,郭伟,刘文彬(2221)

太湖水体中 NSAIDs 的时空分布规律和生态风险评估 廉杰,李祎飞,王晓喧,叶彬,邹华,史红星(2229)

8种典型 PhACs 在水中的赋存、生态风险及其对大型溞的影响 徐鑫磊,刘建超,陆光华(2239)

我国南方桉树人工林区水库沉积物污染物的分布特征及迁移规律 朱雅,李一平,罗凡,李荣辉,黄列,程一鑫,蒋裕丰(2247)

基于连续监测的城市内河返黑返臭机制初探:以南宁市二坑溪为例 李永新,王威,何妹,申泰铭(2257)

城郊流域源汇景观格局与水体抗生性的关系 李敏,唐剑锋,陈利顶,赵方凯,冯青郁,杨磊(2264)

城市雨水径流中溶解性有机物的分子化学多样性 聂云汉,陈浩,李磊,朱奕,赵昕,贾其隆,徐慧婷,叶建锋(2272)

方解石/氯磷灰石混合物添加对水体内源磷迁移转化的调控效应和机制 柏晓云,林建伟,詹艳慧,常明玥,吴俊麟,辛慧敏,黄良君(2281)

不同环境条件下水铁矿和针铁矿纳米颗粒稳定性 王智巧,马杰,陈雅丽,翁莉萍,顾亚陶,李永涛(2292)

向日葵秸秆生物炭强化 Fe(III)/S₂O₈²⁻ 体系降解苯甲酸 孙鹏,张凯凯,张玉,张延荣(2301)

非活化单过硫酸盐降解柳氯磺胺吡啶:动力学及机制 丁曦,张学维,周润生,宋哲,严佳颖,周磊,修光利(2310)

贵州某规模化养猪场废水中抗生素的污染特征及去除效果 杨钊,李江,向福亮,李彦澄,马凯,谢锋(2320)

新型填料 A/O 生物滤池处理低碳氮比农村污水脱氮 赵远哲,杨永哲,王海燕,储昭升,常洋,董伟羊,闫国凯,王欢,李丛宇(2329)

贫营养好氧反硝化菌株的脱氮特性及氮/碳平衡分析 文刚,王彤,黄廷林,万琪琪,曹瑞华,寇莉青,杨尚业(2339)

连续流 SNAD 工艺处理猪场沼液启动过程中微生物种群演变及脱氮性能 秦嘉伟,信欣,鲁航,张萍萍,王露蓉,邹长武,郭俊元(2349)

不同培养条件厌氧氨氧化颗粒污泥活性及微生物群落结构差异 姜滢,郭萌蕾,谢军祥,常尧枫,谢嘉玮,陈重军,沈耀良(2358)

反硝化除磷耦合部分亚硝化-厌氧氨氧化一体式工艺的启动 陈亚,印雯,张星星,张钰,宋吟玲,吴鹏,徐乐中(2367)

土壤环境承载力评价体系构建与应用 李笑诺,丁寿康,陈卫平,王夏晖,吕斯丹,刘睿(2373)

磁性生物炭的合成及对土壤重金属污染的钝化效果 王俊楠,程珊珊,展文豪,任强,马晓宇,王洋洋(2381)

还原增溶强化 EGTA 淋洗修复重金属污染土壤 张金永,朱玉婷,王明新,韩莹,葛嘉琦(2390)

不同价态铬和土壤理化性质对大麦根系毒性阈值的影响 付平南,贡晓飞,罗丽韵,王琪,李花粉(2398)

生物炭施用对紫色土旱坡地土壤氮流失形态及通量的影响 王舒,王子芳,龙翼,严冬春,慈恩,徐国鑫,李娇,高明(2406)

长期撂荒恢复土壤团聚体组成与有机碳分布关系 王兴,钟泽坤,张欣怡,吴少君,卢绪巧,杨改河,任成杰,韩新辉(2416)

施用生物炭对壤土土壤微生物代谢养分限制和碳利用效率的影响 王强,耿增超,许晨阳,郭靖宇,李倩倩,刘莉丽,赵汉红,杜旭光(2425)

间种高粱及施用大颗粒尿素对茶园 N₂O 排放的影响 张珂彬,刘新亮,康曼,王毅,沈健林,李勇(2434)

缙云山森林植被类型对土壤 N₂O 相关功能微生物的影响 王盛燕,王富华,罗东海,昌盛,王子芳,高明(2445)

咸水滴灌对棉田土壤 N₂O 排放和反硝化细菌群落结构的影响 郭慧楠,马丽娟,黄志杰,李美琪,侯振安,阎伟(2455)

有机质提升对酸性红壤氮循环功能基因及功能微生物的影响 储成,吴赵越,黄欠如,韩成,钟文辉(2468)

模拟酸雨对毛竹阔叶林过渡带土壤真菌结构及其多样性的影响 王楠,潘小承,王传宽,白尚斌(2476)

海洋沉积物中细菌 DNA 和 RNA 水平群落差异 李明月,杨雨虹,米铁柱,贺惠,甄毓(2485)

2003~2013年中国湿地变化的空间格局与关联性 周婷,马姣姣,徐颂军(2496)

《环境科学》征订启事(2086) 《环境科学》征稿简则(2187) 信息(2209, 2263, 2309)

上海大气 PM_{2.5} 来源解析对比: 基于在线数据运用 3 种受体模型

周敏^{1,2}

(1. 上海市环境科学研究院, 上海 200233; 2. 国家环境保护城市大气复合污染成因与防治重点实验室, 上海 200233)

摘要: 于 2014 年 12 月 2 ~ 24 日在上海市城区对大气中细粒子及其化学组分进行了在线连续观测, 基于在线数据运用正定矩阵因子分析法 (PMF)、化学质量平衡法 (CMB) 和多元线性模型 (ME2) 这 3 种受体模型开展颗粒物源解析并进行相互验证。结果显示, 基于在线数据共获得了 8 类污染源, 包括二次硝酸盐、二次硫酸盐、二次有机碳、重油燃烧源、工业源、移动源、扬尘源和燃煤源。其中二次硝酸盐、二次硫酸盐、二次有机碳等二次污染源 (44.9% ~ 64.8%) 对 PM_{2.5} 的贡献最大, 移动源 (16.8% ~ 24.8%) 和燃煤源 (5.6% ~ 14.9%) 的贡献次之, 其他源类的贡献相对较小。3 种模型获得的污染源特征组分和来源结果对比表明, 3 种模型获得的二次硫酸盐、二次硝酸盐、二次有机碳、移动源的源解析结果较接近, 说明模型对这 4 类源的模拟较好。ME2 和 PMF 模型对燃煤源、扬尘源的拟合结果要好于 CMB; 工业源则是 CMB 的结果更好。

关键词: 细颗粒物; 源解析; 正定矩阵因子分析法 (PMF); 化学质量平衡法 (CMB); 多元线性模型 (ME2)

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)05-1997-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201909170

Comparison of Three Receptor Models for Source Apportionment of PM_{2.5} in Shanghai: Using Hourly Resolved PM_{2.5} Chemical Composition Data

ZHOU Min^{1,2}

(1. Shanghai Academy of Environmental Sciences, Shanghai 200233, China; 2. State Environmental Protection Key Laboratory of the Cause and Prevention of Urban Air Pollution Complex, Shanghai 200233, China)

Abstract: Continuous measurements of PM_{2.5} and its chemical composition, including inorganic ions, carbon components, and inorganic elements, were conducted in the urban area of Shanghai from November 2 to 24, 2014. The chemical characteristics and sources of PM_{2.5} were discussed. The average mass concentration of PM_{2.5} was (64 ± 33) μg·m⁻³ (ranging from 12 to 181 μg·m⁻³). Organic matter contributed the most to the PM_{2.5} chemical components, accounting for about 28.1% of total PM_{2.5}, followed by NO₃⁻, SO₄²⁻, and NH₄⁺, which accounted for 17.4%, 12.4%, and 10.7%, respectively. Meanwhile, three receptor models, including positive matrix factorization (PMF), chemical mass balance (CMB), and multilinear engine 2 (ME2), were applied to apportion the PM_{2.5} sources based on these online data. The results showed that eight sources were identified, including secondary nitrate, secondary sulfate, secondary organic carbon, heavy fuel oil burning, industry, mobile vehicle exhaust, dust, and power plants. The secondary sources (44.9% - 64.8%), including secondary nitrate, secondary sulfate, and secondary organic carbon, were found to be the important contributors to PM_{2.5}. The other two main sources were mobile vehicle exhaust (16.8% - 24.8%) and power plants (5.6% - 14.9%), whereas other sources were slightly lower contributors. To better verify the accuracy of the PMF, CMB, and ME2 models, the profiles, temporal patterns, and concentrations of different sources obtained by the three models were discussed. Similar source profiles and contributions of secondary nitrate, secondary sulfate, secondary organic carbon, and mobile vehicle exhaust were derived from the PMF, CMB, and ME2, indicating that the results of the three models were reasonable. The ME2 and PMF models simulate better results for power plants and dust sources than CMB, whereas CMB obtained better results for industrial sources.

Key words: PM_{2.5}; source apportionment; positive matrix factorization (PMF); chemical mass balance (CMB); multilinear engine 2 (ME2)

PM_{2.5}在大气中起着重要作用, 因其对大气能见度、人体健康及气候系统的影响, 已成为我国严重的空气污染问题之一^[1-3]。

大气 PM_{2.5} 的来源复杂, 除了污染源的一次排放外, 还包括由 SO₂、NO_x 和 VOCs 等气态前体物化学生成的二次颗粒物^[4]。掌握大气 PM_{2.5} 的主要污染源及其贡献是制定大气污染针对性控制策略的核心。颗粒物源解析便是定量测算污染源对环境大气污染贡献的关键方法, 且成为我国各地开展大气污染防治工作的重要手段。目前我国常用的颗粒物源

解析方法主要包括源排放清单法、受体模型法和扩散模型法^[5,6]。受体模型不依赖于排放估算和气象资料, 也不考虑污染源排放特定物种之后的化学和物理过程, 被广泛应用于国内外细颗粒物源解析的研究中^[7-11]。受体模型的种类很多, 如正定矩阵因

收稿日期: 2019-09-17; 修订日期: 2019-12-16

基金项目: 国家科技支撑计划项目 (2014BAC22B03); 环境保护公益性行业科研专项 (201409008); 国家重点研发计划项目 (2018YFC0213800)

作者简介: 周敏 (1988 ~), 女, 硕士, 工程师, 主要研究方向为大气气溶胶化学, E-mail: zhoum@saes.sh.cn

子分析法 (positive matrix factorization, PMF)、化学质量平衡法 (chemical mass balance, CMB)、主成分分析法 (principal component analysis, PCA)、多元线性模型 (multilinear engine 2, ME2)、偏最小二乘法等, 其中使用最多的有 PMF 和 CMB^[12, 13]。我国许多学者应用 PMF 和 CMB 模型开展了大量 PM_{2.5} 来源解析研究^[14~22]。

目前, 基于颗粒物采样器及采样滤膜收集受体颗粒物后进行成分分析, 再通过受体模型建立源与受体之间的关系是我国城市大气 PM_{2.5} 源解析的主流方法。然而, 随着区域大气重污染事件频发以及应急管控的实际管理诉求, 传统手工采样的源解析方法已无法满足快速准确获知大气污染来源的实际需求, 且低分辨率的滤膜结果对源解析结果存在一定影响, 迫切需要建立快速高精度的大气污染来源解析技术^[23]。近年来, 国内外发展了大量高时间分辨率观测技术, 可实现硫酸盐、硝酸盐、铵盐、OC、EC 和重金属等关键示踪组分的多因子实时快速测量, 为快速来源解析提供了重要的技术基础^[24~27]。Gao 等^[28] 基于北京 1 h 在线高分辨率数据, 分别采用 PCA、PMF 和 ME2 模型开展颗粒物来源解析工作, 结果发现北京 PM_{2.5} 的主要来源包括二次源 (38%~39%)、地壳尘 (17%~22%)、机动车排放 (25%~28%) 和煤燃烧 (15%~16%), 而 3 种模型中 PMF 和 ME2 模型更容易得到收敛解, 解析结果更接近。Pancras 等^[29] 同样基于小时 PM_{2.5} 组分数据采用 PMF 和 Unmix 模型开展迪尔伯恩市的 PM_{2.5} 来源解析工作, 两种模型对二次硫酸盐、炼油和油燃烧源的解析结果较好。较好的源解析结果证明了基于在线观测数据的源解析方法的可行性, 且快速准确地获知污染来源能更好地为污染防控提供技术支撑, 而基于在线颗粒物的源解析研究在上海开展较少。

为此, 本研究对上海市冬季大气开展在线环境多因子综合观测 (包括 PM_{2.5} 水溶性离子、元素碳、有机碳和无机元素), 考虑到单一源解析方法的结果存在难以验证、较难判定其准确性等问题, 采用 3 种常用受体模型进行同步解析和相互验证, 通过获得更准确快速的源解析方法, 以期为我国城市和区域大气污染防治提供科学技术支撑。

1 材料与方法

1.1 采样地点

观测地点位于上海市环境科学研究院 (31°10' N, 121°25' E) 培训楼 5 楼楼顶空气质量观测超级站, 测点离地高度约 15 m。该测点地处上海市徐汇区商业和居民混合区。测点以东 500 m 是交通干道

沪闵高架路, 以南 150 m 为漕宝路, 测点与西南方向的上海市空气质量监测国控点 (上师大) 相距 1.5 km, 周围 2 km 范围内无明显工业大气污染源, 下垫面状况与上海市城区类似, 基本代表了上海市城区的空气质量状况。

1.2 采样仪器和方法

观测时段为 2014 年 12 月 2~24 日。期间, PM_{2.5} 的质量浓度采用 Thermo Fisher 公司生产的 FH 62 C14 颗粒物监测仪测量, 采样流量为 16.7 L·min⁻¹, 时间分辨率为 5 min。PM_{2.5} 水溶性组分采用瑞士万通公司生产的 MARGA ADI 2080 测量, 采样流量为 16.7 L·min⁻¹, 时间分辨率为 60 min, 检测组分包括 Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺、Na⁺、K⁺、Ca²⁺ 和 Mg²⁺, 最低检测限分别为 0.1、0.1、0.1、0.1、0.1、0.16、0.21 和 0.12 μg·m⁻³, 详细介绍见文献 [3]。PM_{2.5} 中的有机碳 (OC) 和元素碳 (EC) 浓度采用 Sunset laboratory Inc 的碳分析仪测量 (RT4), 该仪器采用热光吸收原理, 采样流量为 8 L·min⁻¹, 时间分辨率为 60 min^[30]; PM_{2.5} 中的无机元素 K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、As、Se、Ag、Cd、Sn、Sb、Ba 和 Pb 采用 Cooper Environmental 生产的基于 X 射线荧光光谱技术的环境空气多金属在线分析仪 (CES Xact 625) 进行测量, 时间分辨率为 60 min^[31]。

1.3 源解析方法

本研究采用 3 种受体模型开展 PM_{2.5} 的在线来源解析, 包括 PMF、CMB 和 ME2 模型。

受体模型一般从受体出发, 对受体的物理和化学特征进行分析, 再结合污染源的特征进行比较分析, 定性识别对受体有贡献的污染源, 最后结合数学模式算法对各污染源的贡献值进行定量^[32, 33]。数学表达式如下。

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

$$(i = 1, \dots, I; j = 1, \dots, J)$$

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left[\frac{e_{ij}}{u_{ij}} \right]^2 \quad (2)$$

式中, x_{ij} 为第 i 个样本中第 j 个组分的实测质量浓度, g_{ik} 为 k 个污染源在 i 个样本中的贡献, f_{kj} 为 k 个污染源 j 成分的浓度, e_{ij} 为实测的第 i 个样本中第 j 组分的实测质量浓度与其解析值的残差, u_{ij} 是不确定度。受体模型通过寻求目标函数 Q 最小化的解, 从而确定污染源贡献谱和污染源成分谱。

3 种受体模型中, PMF 是一种多变量受体模型, 无需源配置文件即可获得源的数量和源贡献^[9], 模型的分解矩阵中组分分担率为非负限定, 解析结果更有实际意义。CMB 模型的计算则基于示踪组分建

立源和受体的平衡关系,需要输入污染源的源谱分布和受体的各种化学组分浓度,但不需要输入大量的样本信息^[9]. ME2 是 Paatero^[34] 在 PMF 模型的基础上搭建的 Multilinear Engine 计算平台. 其基本原理和 PMF 一致,模型包括“基础运行程序”和“再运行程序”^[35],其中“基础运行程序”类似于 PMF,“再运行程序”通过专用的“脚本文件”以辅助方程的形式加入额外的信息,如源谱和质量浓度等^[9]. 为了评估 3 种模型的解析结果,图 1 给出了不同模型模拟的 PM_{2.5} 浓度与实测浓度的相关性分析,从中可知,ME2、PMF 和 CMB 模拟值和实测值的相关系数 R² 分别为 0.88、0.87 和 0.90,可见模型对 PM_{2.5} 的拟合性较好.

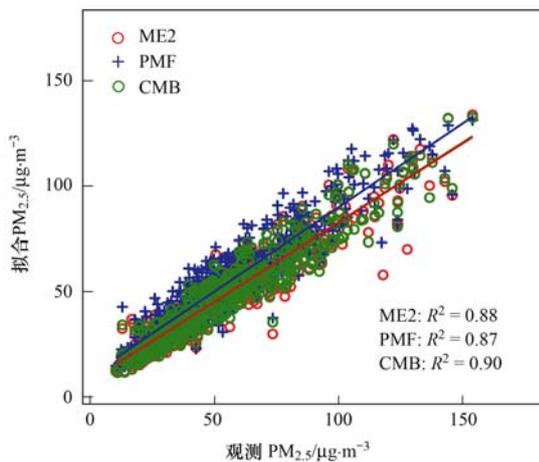


图 1 观测和拟合 PM_{2.5} 浓度的相关性

Fig. 1 Correlation between observed and simulated PM_{2.5} mass concentrations

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5} 中的浓度水平和组成分布

图 2 给出了观测期间大气 PM_{2.5} 中水溶性无机离子 (WSII: Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、K⁺、NH₄⁺、Ca²⁺、Mg²⁺)、含碳组分 [包括 OM (OM = OC × 1.4)^[36] 和 EC] 和无机元素 (elements) 的浓度水平和 PM_{2.5} 的化学组成变化.

由图 2 可见,观测期间 PM_{2.5} 的浓度范围为 12 ~

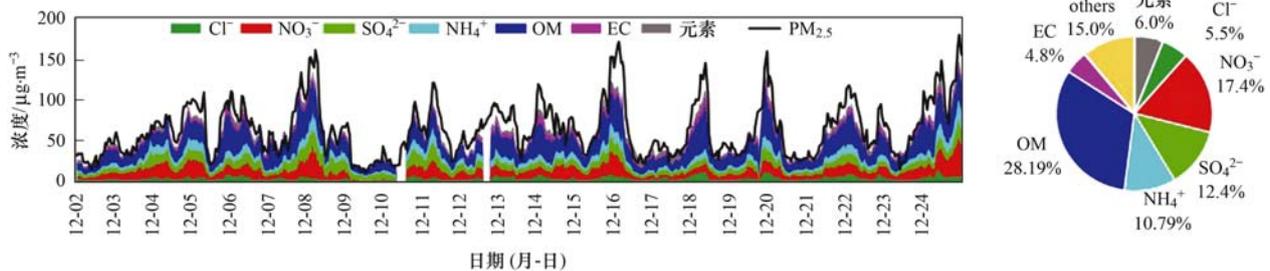


图 2 观测期间上海城区大气 PM_{2.5} 及其化学组成的时间变化序列

Fig. 2 Time series of the concentrations of PM_{2.5} and its chemical composition in the Shanghai area

181 μg·m⁻³, 平均浓度为 (64 ± 33) μg·m⁻³. PM_{2.5} 组分中 OM 的贡献比例最高, 约占 PM_{2.5} 的 28.1%, 小时平均浓度为 (18.0 ± 9.0) μg·m⁻³. 二次无机离子 (SNA: NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺) 中 SO₄²⁻ 的平均质量浓度为 (24.8 ± 11.2) μg·m⁻³, NO₃⁻ 为 (26.1 ± 11.0) μg·m⁻³, NH₄⁺ 为 (18.5 ± 8.3) μg·m⁻³, 分别占 PM_{2.5} 的 12.4%、17.4% 和 10.7%. 一次组分 EC、Cl⁻、无机元素对 PM_{2.5} 的贡献相对较小, 占 PM_{2.5} 的 4.8%、5.5% 和 6.0%.

图 3 给出了无机元素中各元素的浓度水平, 其中以 K、Fe、Ca 和 Zn 的浓度水平最高, 平均浓度分别为 (1.199 ± 0.601)、(1.188 ± 0.826)、(0.700 ± 0.676) 和 (0.417 ± 0.279) μg·m⁻³, 分别占总元素的 31.2%、30.9%、18.2% 和 10.9%. PM_{2.5} 中某些元素浓度水平较低, 但是却对人体健康有明显的毒害性^[37, 38]. As 是一种致癌的元素, 对人体健康危害很大^[39], 主要来自于煤燃烧^[40]. 观测期间, PM_{2.5} 中 As 的浓度为 (0.017 ± 0.011) μg·m⁻³, 高于我国标准设定的 0.006 μg·m⁻³ (GB 3095-2012), 表明上海市冬季大气 As 污染较严重. Pb 的平均浓度为 (0.101 ± 0.066) μg·m⁻³, 低于我国的标准 (0.5 μg·m⁻³) (GB 3095-2012), 表明上海市对大气 PM_{2.5} 中 Pb 的控制较好. V、Mn 和 Ni 的平均质量浓度分别为 (0.006 ± 0.005)、(0.085 ± 0.042) 和 (0.007 ± 0.006) μg·m⁻³, 目前我国的环境空气质量标准中还未列入 V、Mn 和 Ni 的限值. 期间 Cd 的平均浓度为 (0.0045 ± 0.002) μg·m⁻³, 接近于我国空气质量标准规定的 0.005 μg·m⁻³ 限值 (GB 3095-2012), 说明目前上海大气 PM_{2.5} 中 Cd 污染还不严重, 但仍需要重视.

2.2 基于不同模型的 PM_{2.5} 源解析

本研究基于 3 种受体模型对观测期间上海城区获得的在线高分辨率 PM_{2.5} 及其组分进行来源解析, 图 4 和图 5 分别给出了基于 PMF 和 ME2 获得的源成分谱及 3 种受体模型解析出的 PM_{2.5} 源贡献.

2.2.1 基于 PMF 模型的 PM_{2.5} 来源解析

本研究对观测期间上海城区获得的在线高分辨

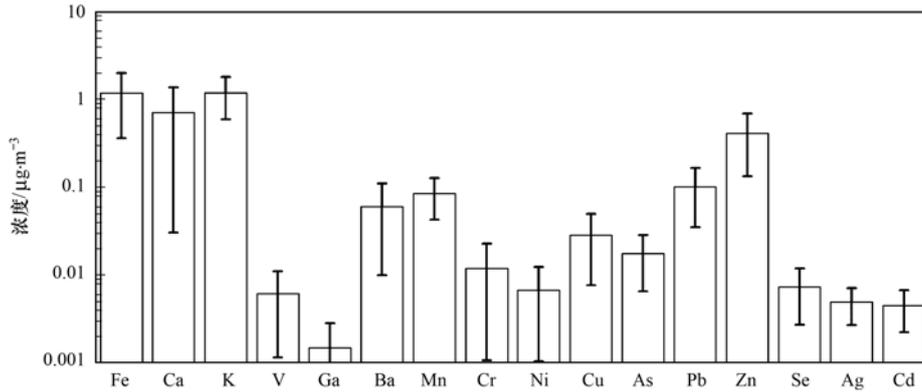


图 3 观测期间上海城区大气 PM_{2.5} 中元素浓度的平均水平

Fig. 3 Average concentrations of inorganic elements of PM_{2.5} in Shanghai

率 PM_{2.5} 及其组分进行来源解析, 解析出 8 类因子及其源成分谱如图 4(a) 所示. 因子 1 的 SO₄²⁻ 和 NH₄⁺ 组分含量较高, 可能为二次硫酸盐, 对 PM_{2.5} 分担率约 20.7%, 见图 5. 因子 2 高比重的 NO₃⁻ 和 NH₄⁺, 可

能为二次硝酸盐, 对 PM_{2.5} 分担率最高, 达到 32.4%. 因子 3 的 Ni 和 V 含量较高, V 通常作为重油燃烧的示踪物^[41,42], 可能为重油燃烧源. 因子 4 富含高浓度的 Mn、Cu 和 Zn 等金属元素, 可能为一

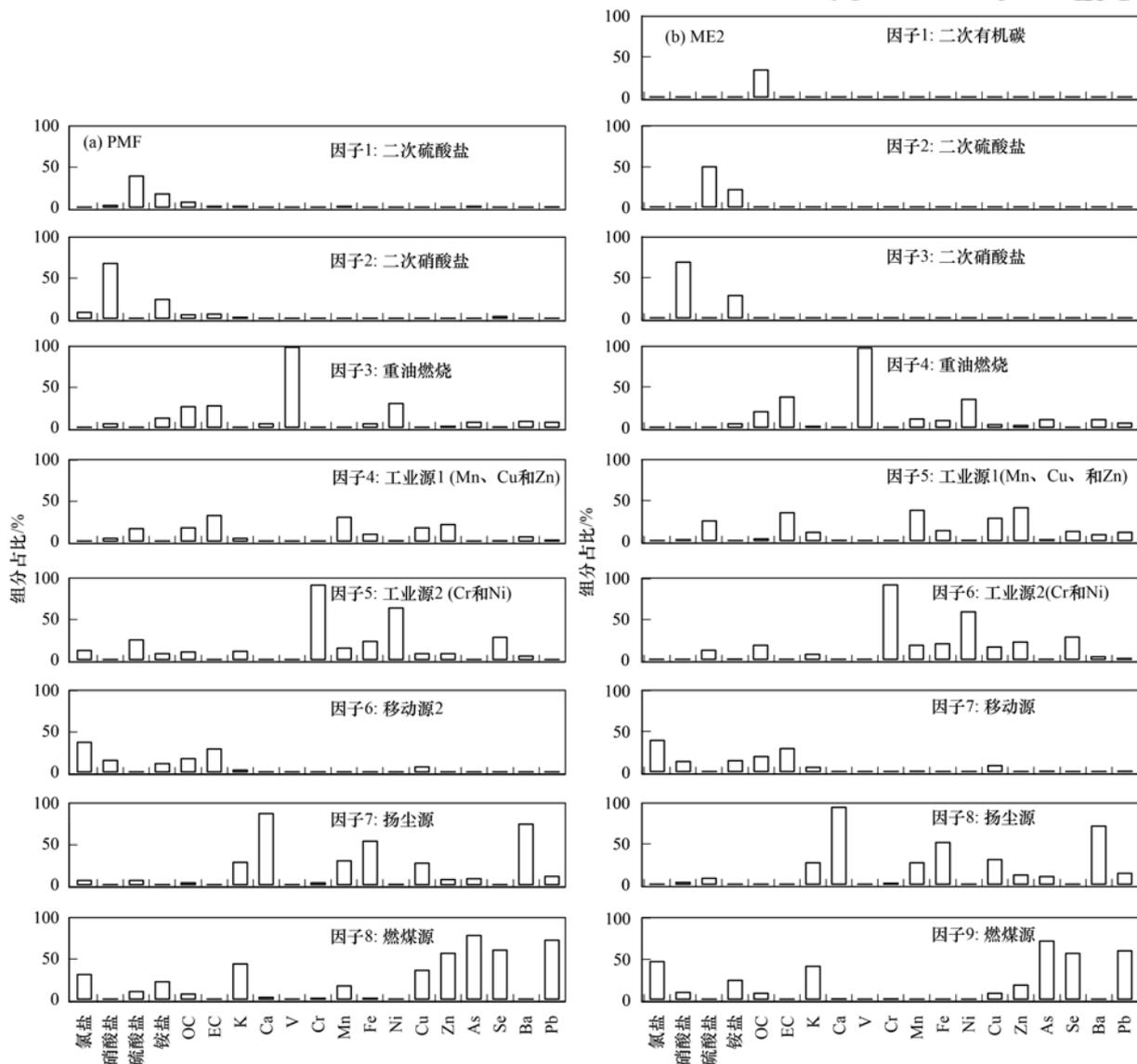


图 4 基于 PMF 和 ME2 获得的源解析因子

Fig. 4 Factor profiles modeled by PMF and ME2 models

种工业源^[43, 44], 命名为工业源 1. 因子 5 含有较高的 Cr 和 Ni 等金属元素, 可能为另一类工业源^[43], 命名为工业源 2. 为了能更好地和其他模型结果对比, 将工业源 1 和工业源 2 合并为工业源, 对 PM_{2.5} 的分担率约为 11.5%. 因子 6 的 EC、OC 和 Cl⁻ 组分含量较高, 可能为移动源^[45], 对 PM_{2.5} 的分担率较高约 24.2%. 因子 7 富含高浓度的 Ca、Fe 和 Ba 等元素, 可能为扬尘源^[46, 47]; 因子 8 的 As、Se 和 Pb 组分含量较高, 可能为燃煤源^[48], 对 PM_{2.5} 分担率约 5.6%.

2.2.2 基于 CMB 模型的 PM_{2.5} 来源解析

将实测的移动源、燃煤源、工业源、重油燃烧源

源谱和“纯”二次硫酸盐(含 72.7% ± 7.27% 的 SO₄²⁻ 和 27.3% ± 2.73% 的 NH₄⁺)、“纯”二次硝酸盐(含 77.5% ± 7.75% 的 NO₃⁻ 和 22.5% ± 2.25% 的 NH₄⁺)、“纯”二次有机碳(含 100% ± 10% 的 OC)的源谱^[7]纳入 CMB 模型计算, 对观测期间上海城区 PM_{2.5} 及其组分数据进行来源解析, 源贡献见图 5. 二次硝酸盐、二次硫酸盐、二次有机碳对 PM_{2.5} 的分担率最大, 总和贡献 PM_{2.5} 的 64%. 移动源和燃煤源对上海冬季 PM_{2.5} 的贡献也较大, 分别占 16.7 和 14.9%. 其他源类对大气 PM_{2.5} 的贡献较小.

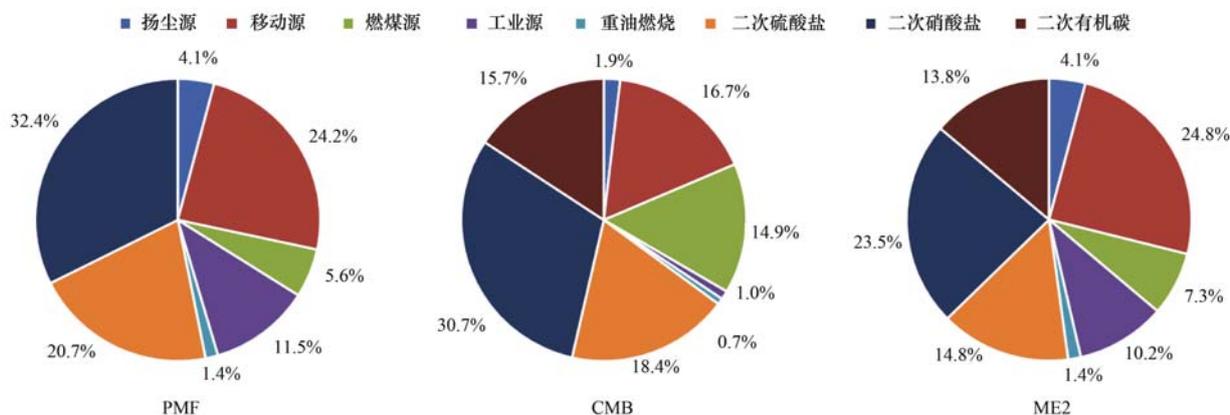


图 5 基于 PMF、CMB 和 ME2 获得的 PM_{2.5} 源贡献

Fig. 5 Contribution percentages of each source obtained by PMF, CMB, and ME2 models

2.2.3 基于 ME2 模型的 PM_{2.5} 来源解析

将“纯”二次硫酸盐、“纯”二次硝酸盐、“纯”二次有机碳的源谱作为限制条件纳入 ME2 模型, 最终解析出 9 类因子, 因子的成分谱如图 4(b) 所示. 因子 1 含有高比重的 OC, 为二次有机碳. 因子 2 含有高比重的硫酸盐、铵盐, 为二次硫酸盐. 因子 3 富含高比重的硝酸盐和铵盐, 为二次硝酸盐. 因子 4 的 Ni 和 V 含量较高, 可能为重油燃烧源. 因子 5 富含高浓度的 Mn、Cu 和 Zn 等金属元素, 可能为一种工业源, 命名为工业源 1. 因子 6 含有较高的 Cr 和 Ni 等金属元素, 可能为另一种工业源, 命名为工业源 2. 工业源 1 和工业源 2 同样合并为工业源. 因子 7 的 EC、OC 和 Cl⁻ 组分含量较高, 可能为移动源. 因子 8 富含高浓度的 Ca、Fe 和 Ba 等元素, 可能为扬尘源. 因子 9 的 As、Se 和 Pb 组分含量较高, 可能为燃煤源. ME2 获得的源贡献结果与 PMF 的类似, 这和 Gao^[28] 和 杨佳美^[49] 的研究结论一致. 二次硝酸盐、二次硫酸盐和二次有机碳等二次源对 PM_{2.5} 的贡献最大, 共占 52.1%. 移动源、工业源和燃煤源的分担率也较高, 分别为 24.8%、10.2% 和 7.3%.

2.3 3 种受体模型获得的源成分谱对比

为对比 3 种受体方法的准确性与差异性, 将

CMB 的源谱处理成单个源的各项组分占比, 并与 PMF 和 ME2 获得的源类进行对比分析, 见图 6.

3 种受体模型获得的相同源类包括二次硫酸盐、二次硝酸盐、移动源、燃煤源、工业源、重油燃烧和扬尘源, 其中 ME2 和 PMF 获得的工业源 1 和工业源 2 合并为工业源. 而 PMF 较 CMB 和 ME2 缺少二次有机碳源, 说明该类源较易与其他源类混合, 通过设定虚拟的二次有机碳源谱才能将该类源分离出来.

3 种模型获得的源谱特征有明显差异, 具体包括: ① ME2 对二次硫酸盐、二次硝酸盐和二次有机碳进行了先设定, 因此源谱特征和 CMB 一致; PMF 获得的二次硫酸盐和二次硝酸盐的特征组分与其他两类模型结果也较一致, 说明这两类源的解析结果可接受. ② 重油燃烧中, CMB 中源特征组分为 Ni 和 V, PMF 和 ME2 获得的特征组分基本符合, 但夹杂了少量的 OC 和 EC 等. ③ 工业源中, CMB 的源特征组分为 Cr、Mn、Fe 和 Pb, PMF 和 ME2 获得的源特征组分包括 Cr、Mn、Cu、Zn、Ni 和 Fe, 较 CMB 获得的源成分更复杂. ④ 移动源中, CMB 的源特征组分为 Cl⁻、OC、EC 和 K, 与 ME2 和 PMF 的源特征组分类似, 说明对移动源的解析结果基本可接受. ⑤ CMB

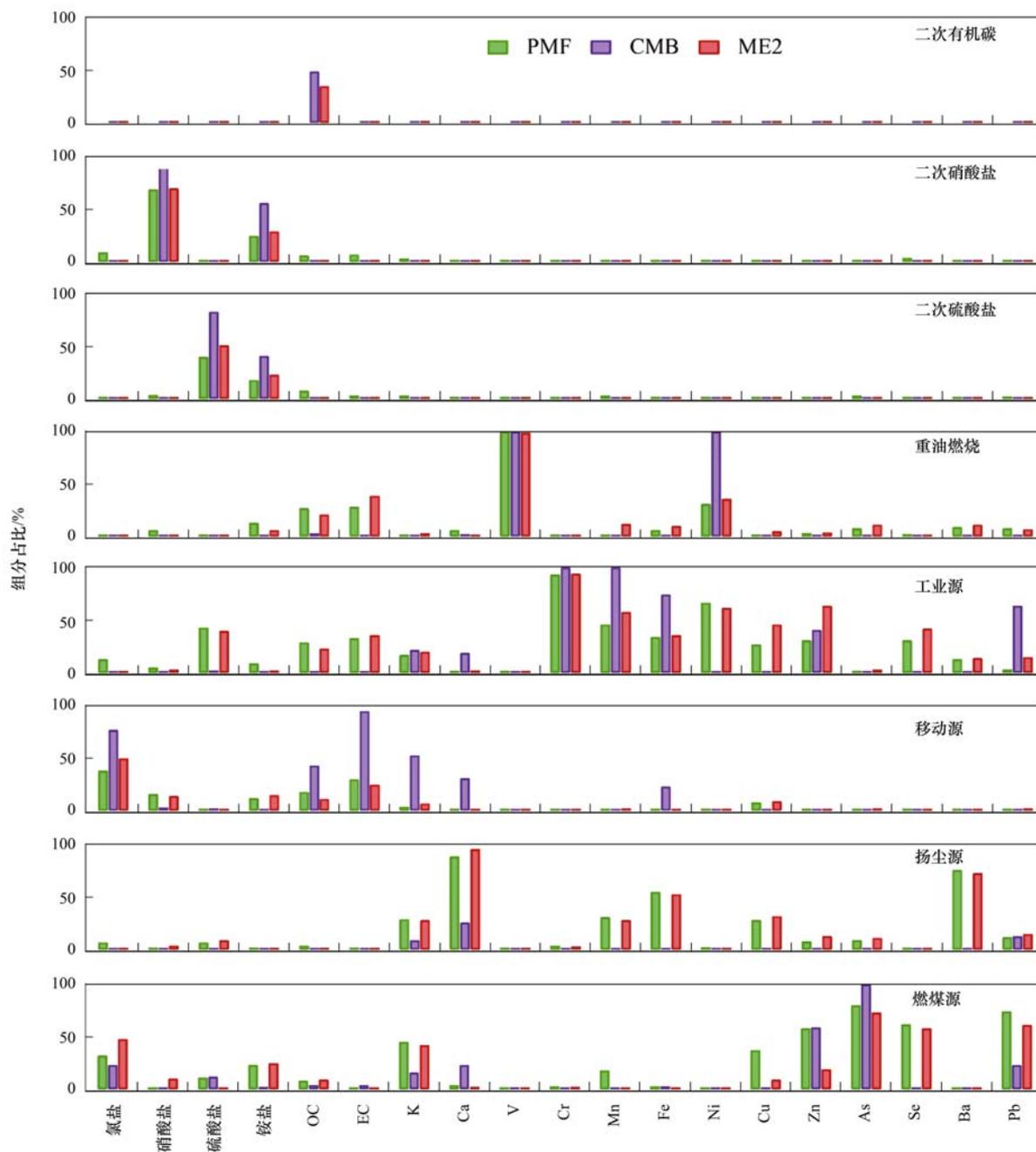


图6 基于PMF、CMB和ME2获得的源特征组分谱对比

Fig. 6 Comparison of factor profiles of PMF, CMB, and ME2 models

的扬尘源特征组分为Ca, ME2和PMF的特征组分为Ca、Fe和Ba,还夹杂了少量的金属元素. ⑥燃煤源中, CMB的源特征组分为Zn、As、Pb和 Cl^- , 与ME2和PMF的源特征组分基本符合.

综上, 3种模型获得的二次硫酸盐、硝酸盐、二次有机碳、移动源和燃煤源的源谱特征较为一致, 而工业源、重油燃烧和扬尘源的特征组分存在差异, 表明受体模型对元素的拟合相对较差.

2.4 3种受体模型获得的 $PM_{2.5}$ 源解析结果对比

图7给出了基于3种受体模型获得的观测期间上海 $PM_{2.5}$ 的不同源浓度的时间序列. 为了更好地验证解析结果的准确性, 本研究还对比了3种受体模

型获得的 $PM_{2.5}$ 不同源浓度的日廓线, 见图8.

从中可知, 二次硫酸盐、二次硝酸盐和二次有机碳的日变化和源浓度水平一致性很好, 说明3种模型对二次污染源的解析结果较好, 结果稳定性好.

对于移动源的解析, 3种模型得到的结果趋势一致性较好, 但是CMB模型获得的浓度水平会略低于ME2和PMF模型. 从日变化看, 移动源在08:00左右和21:00左右出现峰值, 和早晚高峰时间吻合, 解析结果可接受.

燃煤源的解析结果中, ME2和PMF解析的浓度水平比较接近, 略低于CMB得到的浓度. ME2和PMF得到的日变化主要受边界层高度的影响, 该源

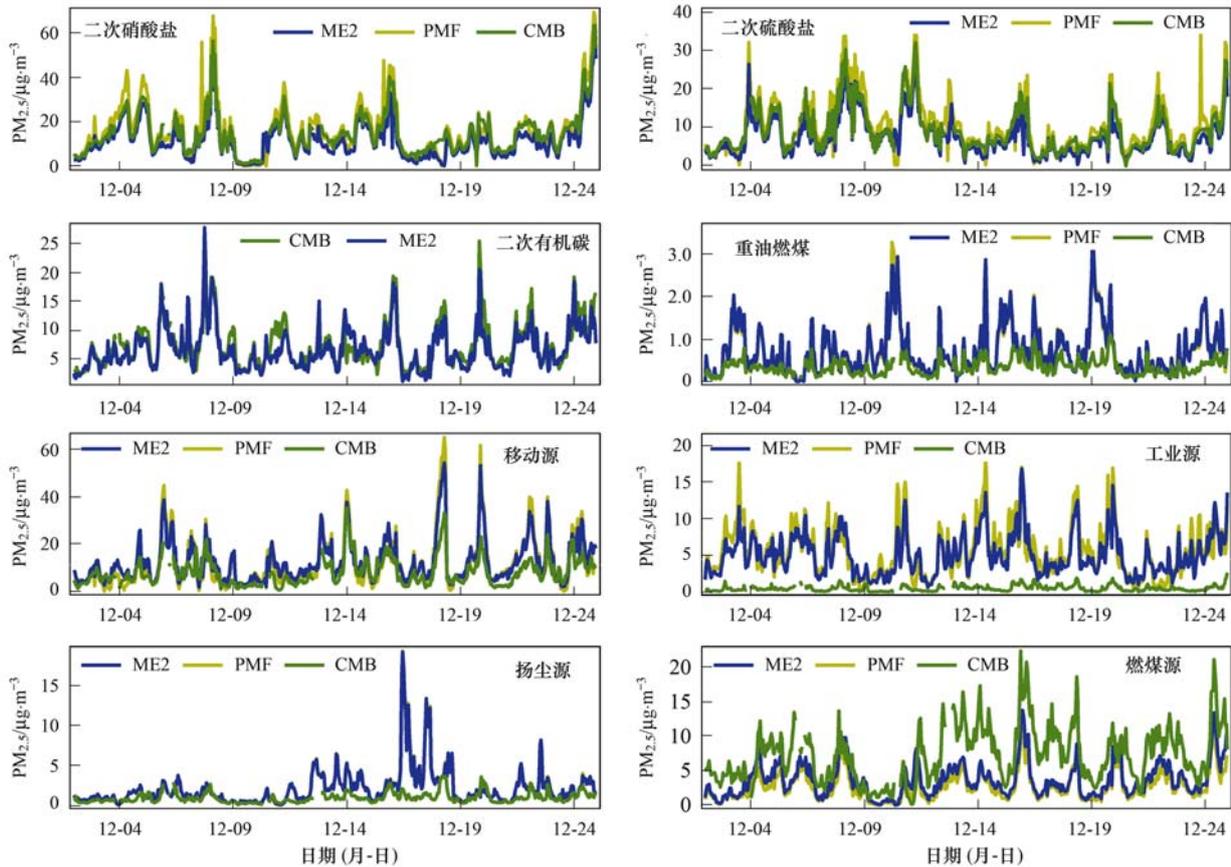


图 7 基于 PMF、CMB 和 ME2 模型获得的不同源类的时间变化序列

Fig. 7 Time series of concentrations of each source obtained by PMF, CMB, and ME2 models

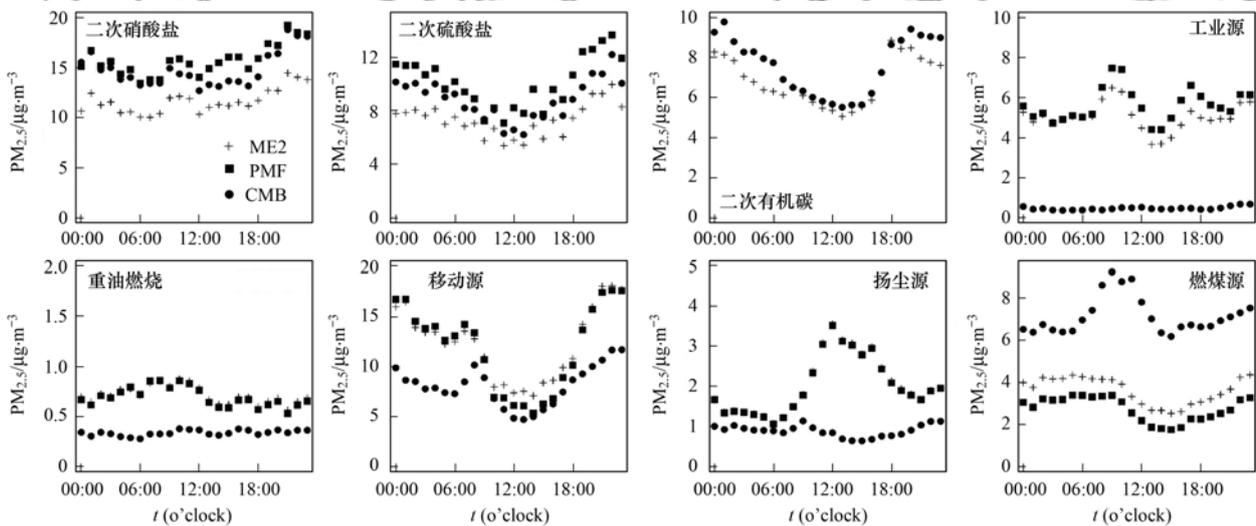


图 8 基于 PMF、CMB 和 ME2 模型获得的不同源类的日变化

Fig. 8 Diurnal variations of concentrations of each source obtained by PMF, CMB, and ME2 models

可以指示区域源的影响,和 Wang 等^[23]的结果较一致,而 CMB 得到的源在早高峰出现明显高值,可能还夹着其他源类。ME2 和 PMF 对燃煤源的解析结果更合理。

工业源中,CMB 获得的源没有明显日变化,和工业源的排放较符合。而 PMF 和 ME2 获得的源浓度水平显著高于 CMB,且在 09:00 和 17:00 出现峰值,源谱中也夹杂了 OC 和 EC,说明 PMF 和 ME2 解

出的源类可能还夹杂着移动源的影响。

扬尘源中,ME2 和 PMF 模型得到的源呈现单峰状,在 12:00 左右出现最大值,这主要与白天风速较大,容易把扬尘卷起出现高浓度有关,符合扬尘源的特征。而 CMB 的浓度水平低于 ME2 和 PMF 模型,且只在早高峰出现一个较小的峰值,说明 CMB 模型解出的扬尘源水平偏低。

重油燃烧源没有明显的日变化,PMF 和 ME2 获

得源的浓度水平高于 CMB, 主要与其特征组分较 CMB 包含更多的 OC 和 EC 有关, 未来可以辅助其他方法对该源的解析结果进一步验证。

综上, 3 种模型对二次硫酸盐、二次硝酸盐、二次有机碳和移动源的解析结果一致性较好, 拟合结果稳定, 不确定较小; 而对金属源和地壳源的拟合一致性略差, 不确定较大。其中, ME2 和 PMF 模型对燃煤源、扬尘源的拟合结果要好于 CMB; 工业源则是 CMB 的结果更好。

3 结论

(1) 观测期间上海市大气 $PM_{2.5}$ 的浓度范围为 $12 \sim 181 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均浓度为 $(64 \pm 33) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。 $PM_{2.5}$ 组分中 OM 的贡献比例最高, 约占 $PM_{2.5}$ 的 28.1%, SNA 中 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 分别占 $PM_{2.5}$ 的 12.4%、17.4% 和 10.7%。无机元素中以 K、Fe、Ca 和 Zn 的浓度水平最高, 分别占总元素的 31.2%、30.9%、18.2% 和 10.9%。

(2) 基于 PMF、CMB 和 ME2 模型分别开展 $PM_{2.5}$ 的来源解析, 共获得 8 类污染源, 包括二次硝酸盐、二次硫酸盐、二次有机碳、重油燃烧源、工业源、移动源、扬尘源和燃煤源。其中, PMF 模型获得二次硝酸盐和二次硫酸盐对上海冬季大气 $PM_{2.5}$ 的分担率最大, 移动源和燃煤源对 $PM_{2.5}$ 的贡献也较大, 分别占 24.2% 和 11.5%, 其他源类对 $PM_{2.5}$ 的贡献较小。CMB 获得的二次硝酸盐、二次硫酸盐和二次有机碳对 $PM_{2.5}$ 的分担率总和为 64%, 移动源和燃煤源对 $PM_{2.5}$ 的贡献分别占 16.7 和 14.9%。ME2 获得的源贡献结果与 PMF 的类似, 二次硝酸盐、二次硫酸盐和二次有机碳等二次源的贡献最大, 共占 52.1%。移动源、工业源和燃煤源的分担率也较高, 分别为 24.8%、10.2% 和 7.3%。

(3) 对比 PMF、CMB 和 ME2 模型获得的 8 类污染源的特征组分、浓度水平和日变化规律发现, 3 种模型对二次硫酸盐、二次硝酸盐、二次有机碳和移动源的解析结果一致性较好, 拟合结果较稳定; ME2 和 PMF 模型对燃煤源和扬尘源的拟合结果要好于 CMB 模型; 工业源则是 CMB 模型的结果更好。

参考文献:

- [1] Cao J J, Xu H M, Xu Q, *et al.* Fine particulate matter constituents and cardiopulmonary mortality in a heavily polluted Chinese City[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2012, **120**(3): 373-378.
- [2] Huang R J, Zhang Y L, Bozzetti C, *et al.* High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China[J]. *Nature*, 2014, **514**(7521): 218-222.
- [3] Qiao L P, Cai J, Wang H L, *et al.* $PM_{2.5}$ constituents and hospital emergency-room visits in Shanghai, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(17): 10406-10414.
- [4] 唐孝炎, 张远航, 邵敏. 大气环境化学[M]. (第二版). 北京: 高等教育出版社, 2006. 305-317.
- [5] 朱坦, 冯银厂. 大气颗粒物来源解析: 原理、技术及应用[M]. 北京: 科学出版社, 2012. 6-8.
- [6] 郑玫, 张延君, 闫才青, 等. 中国 $PM_{2.5}$ 来源解析方法综述[J]. 北京大学学报(自然科学版), 2014, **50**(6): 1141-1154. Zheng M, Zhang Y J, Yan C Q, *et al.* Review of $PM_{2.5}$ source apportionment methods in China [J]. *Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Pekinensis*, 2014, **50**(6): 1141-1154.
- [7] Chow J C, Watson J G, Lowenthal D H, *et al.* PM_{10} source apportionment in California's San Joaquin valley [J]. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1992, **26**(18): 3335-3354.
- [8] Liu W, Wang Y H, Russell A, *et al.* Enhanced source identification of southeast aerosols using temperature-resolved carbon fractions and gas phase components [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(2): 445-466.
- [9] Watson J G, Chen L W A, Chow J C, *et al.* Source apportionment: findings from the U. S. Supersites program [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2008, **58**(2): 265-288.
- [10] Xie M J, Piedrahita R, Dutton S J, *et al.* Positive matrix factorization of a 32-month series of daily $PM_{2.5}$ speciation data with incorporation of temperature stratification [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **65**: 11-20.
- [11] Fang X Z, Bi X H, Xu H, *et al.* Source apportionment of ambient PM_{10} and $PM_{2.5}$ in Haikou, China [J]. *Atmospheric Research*, 2017, **190**: 1-9.
- [12] Watson J G. Overview of receptor model principles [J]. *Journal of the Air Pollution Control Association*, 1984, **34**(6): 619-623.
- [13] Paatero P, Tapper U. Positive matrix factorization: a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values [J]. *Environmetrics*, 1994, **5**(2): 111-126.
- [14] Wang X F, Zhang Y P, Chen H, *et al.* Particulate nitrate formation in a highly polluted urban area: a case study by single-particle mass spectrometry in Shanghai [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(9): 3061-3066.
- [15] Bi X H, Feng Y C, Zhu T, *et al.* Determination of buffering capacity of total suspended particle and its source apportionment using the chemical mass balance approach [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2011, **61**(1): 7-13.
- [16] Shu J, Dearing J A, Morse A P, *et al.* Determining the sources of atmospheric particles in Shanghai, China, from magnetic and geochemical properties [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(15): 2615-2625.
- [17] Jorquera H. Source apportionment of PM_{10} and $PM_{2.5}$ at Tocopilla, Chile (22° 05' S, 70° 12' W) [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2009, **153**(1-4): 235-251.
- [18] Song Y, Tang X Y, Xie S D, *et al.* Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing in 2004 [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2007, **146**(1-2): 124-130.
- [19] Li L, Tan Q W, Zhang Y H, *et al.* Characteristics and source apportionment of $PM_{2.5}$ during persistent extreme haze events in Chengdu, southwest China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **230**: 718-729.
- [20] Tan J H, Zhang L M, Zhou X M, *et al.* Chemical characteristics and source apportionment of $PM_{2.5}$ in Lanzhou, China [J]. *The Science of the Total Environment*, 2017, **601-602**: 1743-1752.
- [21] Song Y, Zhang Y H, Xie S D, *et al.* Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing by positive matrix factorization [J]. *Atmospheric*

- Environment, 2006, **40**(8): 1526-1537.
- [22] Li J F, Song Y, Mao Y, *et al.* Chemical characteristics and source apportionment of PM_{2.5} during the harvest season in eastern China's agricultural regions [J]. Atmospheric Environment, 2014, **92**: 442-448.
- [23] Wang Q Q, Qiao L P, Zhou M. *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} using hourly measurements of elemental tracers and major constituents in an urban environment; investigation of time-resolution influence [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2018, **123**(10): 5284-5300.
- [24] Xue J, Yuan Z B, Lau A K H, *et al.* Insights into factors affecting nitrate in PM_{2.5} in a polluted high NO_x environment through hourly observations and size distribution measurements [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2014, **119**(8): 4888-4902, doi: 10.1002/2013JD021108.
- [25] Griffith S M, Huang X H H, Louie P K K, *et al.* Characterizing the thermodynamic and chemical composition factors controlling PM_{2.5} nitrate: insights gained from two years of online measurements in Hong Kong [J]. Atmospheric Environment, 2015, **122**: 864-875.
- [26] Sun P, Nie W, Chi X G, *et al.* Two years of online measurement of fine particulate nitrate in the western Yangtze River Delta: influences of thermodynamics and N₂O₅ hydrolysis [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, **18**(23): 17177-17190.
- [27] Ding A J, Huang X, Nie W, *et al.* Significant reduction of PM_{2.5} in eastern China due to regional-scale emission control: evidence from SORPES in 2011-2018 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, **19**(18): 11791-11801.
- [28] Gao J, Peng X, Chen G, *et al.* Insights into the chemical characterization and sources of PM_{2.5} in Beijing at a 1-h time resolution [J]. Science of the Total Environment, 2016, **542**: 162-171.
- [29] Paucras J P, Landis M S, Norris G A, *et al.* Source apportionment of ambient fine particulate matter in Dearborn, Michigan, using hourly resolved PM chemical composition data [J]. Science of the Total Environment, 2013, **448**: 2-13.
- [30] 周敏, 陈长虹, 王红丽, 等. 上海秋季典型大气高污染过程中有机碳和元素碳的变化特征 [J]. 环境科学学报, 2013, **33**(1): 181-188.
Zhou M, Chen C H, Wang H L, *et al.* The variation characteristics of organic and element carbon during air pollution episodes in autumn in Shanghai, China [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2013, **33**(1): 181-188.
- [31] Furger M, Minguillion M C, Yadav V, *et al.* Elemental composition of ambient aerosols measured with high temporal resolution using an online XRF spectrometer [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2017, **10**: 2061-2076.
- [32] 张延君, 郑玫, 蔡靖, 等. PM_{2.5} 源解析方法的比较与评述 [J]. 科学通报, 2015, **60**(2): 109-121.
Zhang Y J, Zheng M, Cai J, *et al.* Comparison and overview of PM_{2.5} source apportionment methods [J]. Chinese Science Bulletin, 2015, **60**(2): 109-121.
- [33] 高健, 李慧, 史国良, 等. 颗粒物动态源解析方法综述与应用展望 [J]. 科学通报, 2016, **61**(27): 3002-3021.
Gao J, Li H, Shi G L, *et al.* Overview of the development and application of multi-time resolution source apportionment for particulate matters [J]. Chinese Science Bulletin, 2016, **61**(27): 3002-3021.
- [34] 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.
- [35] Ramadan Z, Eickhout B, Song X H, *et al.* Comparison of positive matrix factorization and multilinear engine for the source apportionment of particulate pollutants [J]. Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 2013, **66**(1): 15-28.
- [36] Turpin B J, Lim H J. Species contributions to PM_{2.5} mass concentrations: revisiting common assumptions for estimating organic mass [J]. Aerosol Science and Technology, 2001, **35**(1): 602-610.
- [37] Wang X L, Sato T, Xing B S. Size distribution and anthropogenic sources apportionment of airborne trace metals in Kanazawa, Japan [J]. Chemosphere, 2006, **65**(11): 2440-2448.
- [38] Duan J C, Tan J H, Hao J M, *et al.* Size distribution, characteristics and sources of heavy metals in haze episode in Beijing [J]. Journal of Environmental Sciences, 2014, **26**(1): 189-196.
- [39] Duan J C, Tan J H, Wang S L, *et al.* Size distributions and sources of elements in particulate matter at curbside, urban and rural sites in Beijing [J]. Journal of Environmental Sciences, 2012, **24**(1): 87-94.
- [40] 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, **10**(23): 11905-11919.
- [41] Lin C C, Chen S J, Huang K L, *et al.* Characteristics of metals in nano-ultrafine/fine/coarse particles collected beside a heavily trafficked road [J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(21): 8113-8122.
- [42] Zhao M J, Zhang Y, Ma W C, *et al.* Characteristics and ship traffic source identification of air pollutants in China's largest port [J]. Atmospheric Environment, 2013, **64**: 277-286.
- [43] Karar K, Gupta A K, Kumar A, *et al.* Characterization and identification of the sources of chromium, zinc, lead, cadmium, nickel, manganese and iron in PM₁₀ particulates at the two sites of Kolkata, India [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2006, **120**(1-3): 347-360.
- [44] Querol X, Zhuang X G, Alastuey A, *et al.* Speciation and sources of atmospheric aerosols in a highly industrialised emerging mega-city in Central China [J]. Journal of Environmental Monitoring, 2006, **8**(10): 1049-1059.
- [45] Kim E, Hopke P K. Source apportionment of fine particles in Washington, DC, utilizing temperature-resolved carbon fractions [J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2004, **54**(7): 773-785.
- [46] Ho K F, Lee S C, Chow J C, *et al.* Characterization of PM₁₀ and PM_{2.5} source profiles for fugitive dust in Hong Kong [J]. Atmospheric Environment, 2003, **37**(8): 1023-1032.
- [47] Qiu X H, Duan L, Gao J, *et al.* Chemical composition and source apportionment of PM₁₀ and PM_{2.5} in different functional areas of Lanzhou, China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2016, **40**: 75-83.
- [48] Chen J, Liu G J, Kang Y, *et al.* Atmospheric emissions of F, As, Se, Hg, and Sb from coal-fired power and heat generation in China [J]. Chemosphere, 2013, **90**(6): 1925-1932.
- [49] 杨佳美, 戴启立, 刘保双, 等. 关中地区背景点环境空气 PM_{2.5} 来源解析与多模型结果对比 [J]. 环境科学研究, 2017, **30**(2): 184-192.
Yang J M, Dai Q L, Liu B S, *et al.* Source apportionment of ambient PM_{2.5} at background sites in Guanzhong area, China: comparison of results obtained by multiple models [J]. Research of Environmental Sciences, 2017, **30**(2): 184-192.

CONTENTS

Comparison of Three Receptor Models for Source Apportionment of PM _{2.5} in Shanghai; Using Hourly Resolved PM _{2.5} Chemical Composition Data	ZHOU Min (1997)
Impact of Differents in the Concentrations of Ozone on the Chemical Composition of Single Particles	WU Meng-xi, CHENG Chun-lei, HUANG Bo, <i>et al.</i> (2006)
Influence of Secondary Organic Coating on Hygroscopicity of a Sodium Chloride Core; Based on Micro-scale Single Particle Analysis	ZHANG Shu-jia, XU Liang, GUO Xin-mei, <i>et al.</i> (2017)
Comparative Analysis of Pollution Characteristics of Carbonaceous Aerosol Components in the Atmosphere Between Urban and Suburban Areas	LI Xin-yue, ZHANG Kai-shan, DENG Lin-li, <i>et al.</i> (2026)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of Elements Bonded with PM _{2.5} and PM ₁₀ in Linyi	LU Ping, ZHAO Xue-yan, YIN Bao-hui, <i>et al.</i> (2036)
Characteristics and Sources of Microbial Aerosols in Urban and Mountainous Areas in Autumn and Winter in Xi'an, China	XIE Wen-wen, LU Rui, MU Fei-fei, <i>et al.</i> (2044)
Pollution Characteristics of Cooking Fumes, Particulates, and Non-methane Hydrocarbons in the Exhaust of Typical Beijing Restaurants	HE Wan-qing, WANG Tian-yi, SHAO Xia, <i>et al.</i> (2050)
PM _{2.5} Concentration Influencing Factors in China Based on the Random Forest Model	XIA Xiao-sheng, CHEN Jing-jing, WANG Jia-jia, <i>et al.</i> (2057)
Spatio-temporal Variation of PM _{2.5} Related Relationships in China from the Perspective of Air Pollution Regional Linkage Control and Prevention	YANG Wen-tao, HUANG Hui-kun, WEI Dong-sheng, <i>et al.</i> (2066)
Characteristics of Spatial and Temporal Evolution and Investigation of Air Pollution in Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area Based on Ground-Space Observation Data	WANG Yao-ting, LIANG Jia-cheng, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (2075)
Hydrochemical Characteristics and Formation Causes of Ground Karst Water Systems in the Longzici Spring Catchment	TANG Chun-lei, ZHENG Xiu-qing, LIANG Yong-ping (2087)
Tempo-spatial and Retention Analysis of Total Phosphorus in the Three Gorges Reservoir	TANG Xiao-ya, TONG Si-chen, HUANG Guo-xian, <i>et al.</i> (2096)
Vertical Distribution Characteristics of Dissolved Oxygen and Chlorophyll a in Typical Tributaries During the Impoundment Period of the Three Gorges Reservoir	YANG Fan, JI Dao-bin, WANG Li-jing, <i>et al.</i> (2107)
Spatial-temporal Distribution of Nutrients in Hanfeng Lake After Official Operation	FU Shi, NI Jiu-pai, HE Bing-hui, <i>et al.</i> (2116)
Spatio-temporal Variations in the Characteristics of Water Eutrophication and Sediment Pollution in Baiyangdian Lake	LIU Xin, SHI Bin, MENG Jing, <i>et al.</i> (2127)
Spatial-temporal Distribution of Suspended Solids and Its Sedimentation Flux and Nutrients Effects in Xin'anjiang Reservoir, China	SHI Peng-cheng, ZHU Guang-wei, YANG Wen-bin, <i>et al.</i> (2137)
Bioavailability Characteristics of Chromophoric Dissolved Organic Matter in Lake Gaoyou, Lake Nansi, and Lake Dongping Under Different Hydrological Scenarios	ZHANG Liu-qing, SHI Yu, LI Yuan-peng, <i>et al.</i> (2149)
Succession Characteristics of Algae Functional Groups and Water Quality Assessment in a Drinking Water Reservoir	LI Yan-qing, HUANG Ting-lin, ZHANG Hai-han, <i>et al.</i> (2158)
Effect of Artificial Mixing on Temporal and Spatial Succession of Algae Community Structure in Jinpen Reservoir	WANG Chen-xu, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2166)
Spatial Distribution Characteristics and Driving Factors of Aerobic Denitrification Bacterial Community Structure from Baiyangdian Lake in Xiong'an New Area During the Winter Freezing Period	ZHOU Shi-lei, SUN Yue, YUE Ge-cheng, <i>et al.</i> (2177)
Spatial and Temporal Succession Characteristics of Aerobic Anoxygenic Photosynthesis Bacteria in a Stratified Reservoir	ZHANG Hai-han, WANG Yan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (2188)
Response of Chromophoric Dissolved Organic Matter Dynamics to Different Hydrological Scenarios in the Two Largest Freshwater Lakes Connected to the Yangtze River	GUO Yan-mi, LI Yuan-peng, SHI Yu, <i>et al.</i> (2198)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Chromophoric Dissolved Organic Matter in a Northern-Side River of the Qinling Mountains in Summer	LIN Zi-shen, HUANG Ting-lin, YANG Shang-ye, <i>et al.</i> (2210)
Distribution, Sources, and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Tributary Waters of the Lower Reaches of the Yangtze River, China	JIA Tian-qi, LEI Rong-rong, WU Xiao-lin, <i>et al.</i> (2221)
Temporal and Spatial Occurrence of NSAIDs in Taihu Lake and Relevant Risk Assessment	LIAN Jie, LI Yi-fei, WANG Xiao-xuan, <i>et al.</i> (2229)
Occurrence and Ecological Risk of Eight Typical PhACs in Surface Water and Its Impact on <i>Daphnia magna</i>	XU Xin-lei, LIU Jian-chao, LU Guang-hua (2239)
Distribution Characteristics and Migration Rules of Pollutants in Sediments of Reservoirs with <i>Eucalyptus</i> Plantation, Southern China	ZHU Ya, LI Yi-ping, LUO Fan, <i>et al.</i> (2247)
Mechanism of Urban Black Odorous Water Based on Continuous Monitoring: A Case Study of the Erkeng Stream in Nanning	LI Yong-xin, WANG Wei, HE Mei, <i>et al.</i> (2257)
Relationship Between Source-Sink Landscape Pattern and Antibiotics in Surface Water in Peri-urban Watershed	LI Min, TANG Jian-feng, CHEN Li-ding, <i>et al.</i> (2264)
Molecular Chemo-diversity of the Dissolved Organic Matter Occurring in Urban Stormwater Runoff	NIE Yun-han, CHEN Hao, LI Lei, <i>et al.</i> (2272)
Regulating Effect and Mechanism of Calcite/Chlorapatite Mixture Addition on Transformation and Transport of Phosphorus in Sediments	BAI Xiao-yun, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (2281)
Stability of Ferrihydrite and Goethite Nanoparticles Under Different Environmental Conditions	WANG Zhi-qiao, MA Jie, CHEN Ya-li, <i>et al.</i> (2292)
Sunflower-Straw-Derived Biochar-Enhanced Fe(III)/S ₂ O ₈ ²⁻ System for Degradation of Benzoic Acid	SUN Peng, ZHANG Kai-kai, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (2301)
Non-activated Peroxymonosulfate-Induced Degradation of Sulfasalazine; Kinetics and Mechanism Investigations	DING Xi, ZHANG Xue-wei, ZHOU Run-sheng, <i>et al.</i> (2310)
Pollution Characteristics and Removal Effects of Antibiotics in Wastewater from Large-Scale Pig Farms in Guizhou	YANG Zhao, LI Jiang, XIANG Fu-liang, <i>et al.</i> (2320)
Nitrogen Removal in Low-C/N Rural Sewage Treatment by Anoxic/Oxic Biofilter Packed with New Types of Fillers	ZHAO Yuan-zhe, YANG Yong-zhe, WANG Hai-yan, <i>et al.</i> (2329)
Nitrogen Removal Performance and Nitrogen/Carbon Balance of Oligotrophic Aerobic Denitrifiers	WEN Gang, WANG Tong, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (2339)
Bacterial Community Shifts and Nitrogen Removal Characteristics for a SNAD Process Treating Anaerobic Digester Liquor of Swine Wastewater (ADLSW) in a Continuous-Flow Biofilm Reactor (CFBR)	QIN Jia-wei, XIN Xin, LU Hang, <i>et al.</i> (2349)
Characteristics of ANAMMOX Granular Sludge and Differences in Microbial Community Structure Under Different Culture Conditions	JIANG Ying, GUO Meng-lei, XIE Jun-xiang, <i>et al.</i> (2358)
Start-up of an Integrated Process of Denitrifying Phosphorus Removal Coupled with Partial Nitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation	CHEN Ya, YIN Wen, ZHANG Xing-xing, <i>et al.</i> (2367)
Construction and Application of an Evaluation System for Soil Environmental Carrying Capacity	LI Xiao-nuo, DING Shou-kang, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i> (2373)
Synthesis of Magnetic Biochar and Its Application in the Remediation of Heavy-Metal-Contaminated Soils	WANG Jun-nan, CHENG Shan-shan, ZHAN Wen-hao, <i>et al.</i> (2381)
Remediation of Heavy-Metal-Contaminated Soil by EGTA Washing Enhanced with Reduction Solubilization	ZHANG Jin-yong, ZHU Yu-ting, WANG Ming-xin, <i>et al.</i> (2390)
Toxicity of Chromium to Root Growth of Barley as Affected by Chromium Speciation and Soil Properties	FU Ping-nan, GONG Xiao-fei, LUO Li-yun, <i>et al.</i> (2398)
Effect of Fertilizer Reduction and Biochar Application on Soil Nitrogen Loss in Purple Upland	WANG Shu, WANG Zi-fang, LONG Yi, <i>et al.</i> (2406)
Relationship Between the Composition of Soil Aggregates and the Distribution of Organic Carbon Under Long-Term Abandoned Restoration	WANG Xing, ZHONG Ze-kun, ZHANG Xin-yi, <i>et al.</i> (2416)
Effects of Biochar Application on Soil Microbial Nutrient Limitations and Carbon Use Efficiency in Lou Soil	WANG Qiang, GENG Zeng-chao, XU Chen-yang, <i>et al.</i> (2425)
N ₂ O Emissions from Tea Plantations with Sorghum Intercropping and Application of Big Urea Pills	ZHANG Ke-bin, LIU Xin-liang, KANG Man, <i>et al.</i> (2434)
Effects of Different Forest Vegetation Types on Soil Nitrogen-Related Microbial Communities and Functions in Jinyun Mountain	WANG Ying-yan, WANG Fu-hua, LUO Dong-hai, <i>et al.</i> (2445)
Nitrous Oxide Emission and Denitrifying Bacterial Communities as Affected by Drip Irrigation with Saline Water in Cotton Fields	GUO Hui-nan, MA Li-juan, HUANG Zhi-jie, <i>et al.</i> (2455)
Effect of Organic Matter Promotion on Nitrogen-Cycling Genes and Functional Microorganisms in Acidic Red Soils	CHU Cheng, WU Zhao-yue, HUANG Qian-ru, <i>et al.</i> (2468)
Effects of Simulated Acid Rain on Soil Fungi Diversity in the Transition Zone of Moso Bamboo and Broadleaf Forest	WANG Nan, PAN Xiao-cheng, WANG Chuan-kuan, <i>et al.</i> (2476)
Differences Between DNA- and RNA-Based Bacterial Communities in Marine Sediments	LI Ming-yue, YANG Yu-hong, MI Tie-zhu, <i>et al.</i> (2485)
Spatial Patterns and Spatial Autocorrelations of Wetland Changes in China During 2003-2013	ZHOU Ting, MA Jiao-jiao, XU Song-jun (2496)