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.9
第41卷 第9期

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第41卷 第9期
2020年9月15日

目 次

Eco-Environmental Knowledge Web

环 境 科 学
Environmental Science

第41卷第9期 2020年9月
Vol.41, No.9 Sep., 2020

鼎湖山大气颗粒物中 OC 与 EC 的浓度特征及粒径分布

李安娜[1,2], 温天雪[2*], 华维[1], 杨员[2], 孟泽[3], 胡波[2], 辛金元[1,2]

(1. 成都信息工程大学大气科学学院, 成都 610225; 2. 中国科学院大气物理研究所, 大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029; 3. 中国科学院华南植物园, 广州 510650)

摘要: 为了解华南背景区域鼎湖山站碳质气溶胶的浓度水平与来源,采用 DRI Model 2001A 热/光碳分析仪测定了鼎湖山站大气颗粒物分级样品中的有机碳(OC)与元素碳(EC)浓度水平,并分析了碳质组分的浓度特征和粒径分布. 结果表明,在 $PM_{1.1}$、$PM_{2.1}$ 和 $PM_{9.0}$ 中,鼎湖山 OC 的平均质量浓度分别为(5.6 ± 2.0)、(7.3 ± 2.4)和(12.8 ± 4.0) $\mu g \cdot m^{-3}$, EC 的平均质量浓度分别为(2.3 ± 1.4)、(2.7 ± 1.6)和(3.4 ± 1.7) $\mu g \cdot m^{-3}$. $PM_{1.1}$ 和 $PM_{2.1}$ 中 OC 分别占 $PM_{9.0}$ 中 OC 的 43.8% 和 57.0%, EC 占 67.6% 和 79.4%. OC 和 EC 主要富集在细粒子中. $PM_{1.1}$ 和 $PM_{2.1}$ 中 OC 和 EC 在秋季最高,OC 在冬季最低,EC 在夏季最低. $PM_{9.0}$ 中 OC 夏季最高. 鼎湖山中碳质气溶胶以 OC2、EC1、OC3 和 OC4 为主,夏季 OC3 > EC1,生物排放源增强,冬季 EC1 质量浓度最高,局地的机动车排放源更强. OC 和 EC 在 4 个季节都呈现双峰型分布,细粒径段峰值位于 0.43 ~ 0.65 μm,粗粒径段峰值出现在 3.3 ~ 5.8 μm. $PM_{1.1}$ 和 $PM_{2.1}$ 中 OC 以一次排放为主,二次有机碳(SOC)在春季最高[(3.0 ± 1.4) $\mu g \cdot m^{-3}$],冬季最低[(1.3 ± 1.4) $\mu g \cdot m^{-3}$],春季二次转化更强. 鼎湖山大气细粒径段 OC 主要来自燃煤和机动车排放,粗粒径段主要来自生物源排放,EC 主要受到燃煤、机动车排放和扬尘的影响.

关键词: 有机碳(OC); 元素碳(EC); 浓度分布; 粒径分布; 季节变化

中图分类号: X513 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2020)09-3908-10 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.201911237

Characterization and Size Distribution of Carbonaceous Aerosols at Mountain Dinghu

LI An-na[1,2], WEN Tian-xue[2*], HUA Wei[1], YANG Yuan[2], MENG Ze[3], HU Bo[2], XIN Jin-yuan[1,2]

(1. School of Atmospheric Sciences, Chengdu University of Information Technology, Chengdu 610225, China; 2. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry (LAPC), Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 3. South China Botanical Garden, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510650, China)

Abstract: To understand the characterization and sources of carbonaceous aerosols at Mountain Dinghu, organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in size-resolved aerosol samples were measured at a regional background site in South China using a DRI Model 2001A analyzer. The average mass concentrations of organic carbon (OC) are (5.6 ± 2.0) $\mu g \cdot m^{-3}$ in $PM_{1.1}$, (7.3 ± 2.4) $\mu g \cdot m^{-3}$ in $PM_{2.1}$, and (12.8 ± 4.0) $\mu g \cdot m^{-3}$ in $PM_{9.0}$; the average mass concentrations of elemental carbon (EC) are (2.3 ± 1.4) $\mu g \cdot m^{-3}$ in $PM_{1.1}$, (2.7 ± 1.6) $\mu g \cdot m^{-3}$ in $PM_{2.1}$, and (3.4 ± 1.7) $\mu g \cdot m^{-3}$ in $PM_{9.0}$. OC concentrations in $PM_{1.1}$ and $PM_{2.1}$ account for 43.8% and 57.0% of OC in $PM_{9.0}$, and EC concentrations in $PM_{1.1}$ and $PM_{2.1}$ account for 67.6% and 79.4%, respectively. OC and EC are enriched with fine particles. In $PM_{1.1}$ and $PM_{2.1}$, the highest concentrations of OC and EC are measured in autumn, and the lowest concentration of OC is measured in winter and EC in summer. In $PM_{9.0}$, the highest OC concentration is measured in summer. Carbonaceous aerosols are mainly composed of OC2, EC1, OC3, and OC4. In summer, the concentration of OC3 is higher than that of EC1, suggesting that biogenic sources are dominant during summer. The concentration of EC1 in winter is the highest, indicating that the impacts of motor vehicle emissions are prominent in the local area during winter. OC and EC both show bimodal distributions in four seasons, with peaks in the size ranges of 0.43-0.65 μm for fine particles and 3.3-5.8 μm for coarse particles. In $PM_{1.1}$ and $PM_{2.1}$, the sources of OC are mainly primary emissions. In $PM_{2.1}$, the highest concentration of SOC is measured in spring at (3.0 ± 1.4) $\mu g \cdot m^{-3}$ and the lowest in winter at (1.3 ± 1.4) $\mu g \cdot m^{-3}$, indicating that the secondary aerosol formation is significant in spring. At the Mountain Dinghu background site, OC is mainly from coal combustion and motor vehicle emissions for fine particles and from biogenic sources for coarse particles. EC is mainly from coal combustion, motor vehicle emissions, and dust.

Key words: organic carbon (OC); elemental carbon (EC); concentration distributions; size distributions; seasonal changes

碳质气溶胶是大气颗粒物的重要组分,主要包括有机碳(organic carbon, OC)和元素碳(elemental carbon, EC). OC 主要由燃烧排放源直接排放和经大气光化学反应二次生成,也有部分来自生物源直接排放; EC 由生物质和化石燃料的不完全燃烧产生. OC 和 EC 对光具有散射和吸收作用,从而影响着地球-大气辐射平衡、大气能见度、气候变化和人体健康[1~4],因此研究碳质气溶胶的污染特征具有重要意义.

收稿日期: 2019-11-26; **修订日期**: 2020-03-21

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFC0202001); 国家自然科学基金项目(41375128)

作者简介: 李安娜(1994 ~),女,硕士研究生,主要研究方向为大气物理与大气环境,E-mail: lianna@dq.cern.ac.cn

* 通信作者,E-mail: wtx@dq.cern.ac.cn

珠江三角洲是中国参与经济全球化的主体区域，是南方对外开放的门户. 随着经济的快速发展和人口的剧增，珠江三角洲的大气环境特别是大气颗粒物污染也备受关注. 近些年来，针对珠江三角洲大气颗粒物污染开展了大量的研究，大多集中在广州、深圳和中山等城市地区，围绕碳质气溶胶主要研究了城市区域有机碳和元素碳的浓度分布特征、季节变化特征或解析其来源及其贡献等[5~12]，背景区域大气颗粒物污染以水溶性无机盐、气态污染物、元素等的浓度分布特征及污染来源研究为主，对碳质气溶胶的研究相对较少，特别是长时间序列的粒径分布特征的研究则鲜见报导[13~18].

鼎湖山属于国家级自然保护区，位于珠江三角洲内的西北区域，其大气环境主要受珠江三角洲的影响，是研究该区域大气环境的理想背景观测站点[18]. 本文研究了鼎湖山背景站大气颗粒物中 OC 和 EC 的浓度水平、季节变化和粒径分布特征，探讨了 OC 与 EC 的可能来源，对研究珠江三角洲地区大气污染水平具有重要的参考意义，以期为之后的研究提供数据基础.

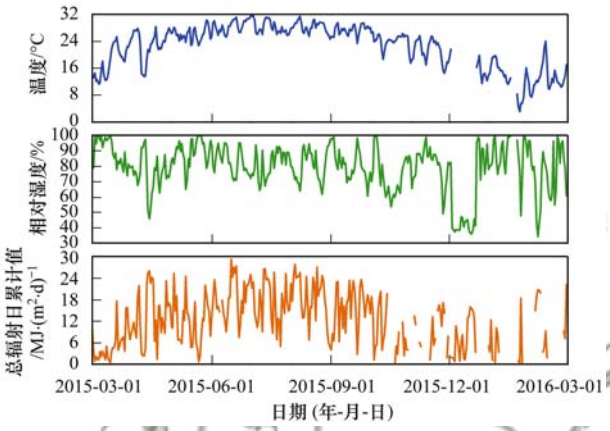
1　材料与方法

1.1　样品采集

鼎湖山采样点(23°10′N, 112°33′E)位于广东省肇庆市鼎湖山国家级自然保护区内的中国科学院鼎湖山森林生态系统定位研究站院内. 采样点东距广州市 86 km，西距肇庆市 18 km，周边主要为森林和村庄，是中国科学院大气本底观测网的站点之一.

利用安德森八级撞击式采样器(Andersen, Series 20-800，美国)分级采集了 2015 年 3 月至 2016 年 2 月期间鼎湖山大气颗粒物样品. 采集流速为 28.3 $L\cdot min^{-1}$，粒子的 50% 切割等效空气动力学粒径为 9.0、5.8、4.7、3.3、2.1、1.1、0.65 和 0.43 μm，每隔一周采集一次，每次连续采集 48 h，共采集 24 组 216 个有效样品，同时将空白膜放置在仪器旁采集空白样品. 采样前将石英纤维滤膜(PALL, America)放入马弗炉中在 450℃ 下焙烧 4 h，以消除采样膜上可能的有机物质，接着在恒温恒湿箱中平衡 24 h[25℃，(45 ±5)%]，采样结束后冷冻保存样品直到分析，以减少有机碳的挥发. 所有样品均扣除空白值，采样期间空白样品中 OC 与 EC 的平均质量浓度为 0.31 $\mu g\cdot m^{-3}$ 与 0.00 $\mu g\cdot m^{-3}$，OC1、OC2、OC3 与 OC4 的平均空白质量浓度分别为 0.03、0.11、0.12 和 0.05 $\mu g\cdot m^{-3}$.

气象数据来自中国生态系统研究网络(Chinese Ecosystem Research Network, CERN)鼎湖山站自动观测站，利用 Milos520(Vaisala，芬兰)自动气象站与辐射表(Kipp &Zonen 荷兰)对气象要素和辐射进行观测，利用 DM520 数据采集器进行采集，采集频率为每分钟采集一次[19]. 鼎湖山气候上属于南亚热带湿润型季风气候，4 ~9 月为主要的降雨季节，植物植被类型丰富. 观测期间鼎湖山的大气温度在 3.1 ~31.6℃之间(图 1)，变化范围较大，春季、夏季和秋季温度较高，平均气温均在 22℃ 以上，冬季最低，为 13.9℃. 大气相对湿度较大，春季与夏季分别为 84% 和 82%，秋季和冬季略低，分别为 79% 和 73%. 夏季总辐射日累计值最高，为 18.1 $MJ\cdot(m^2\cdot d)^{-1}$，冬季最低，为 8.1 $MJ\cdot(m^2\cdot d)^{-1}$.



2015 年 12 月 2 ~22 日温度传感器故障，2016 年 1 月 17 ~22 日期间存储卡故障，所以一部分温度数据缺失；辐射数据缺失是因为剔除了一些异常数据和存储卡故障

图 1　气象变量的时间序列

Fig. 1　Meteorological data during sampling periods

1.2　样品分析

OC 和 EC 的分析采用 DRI 2001A 热光碳分析仪(Sunset Lab, America). 该方法的主要测试原理是：将滤膜在纯氦气环境中分别在 140℃(OC1)、280℃(OC2)、480℃(OC3)和 580℃(OC4)的温度下进行逐步升温，使样品中的有机碳挥发出来并转化为 CO_2，接着在氦氧混合气体(90% He/10% O_2)的环境中继续加热升温，在 580℃(EC1)、740℃(EC2)和 840℃(EC3)的条件下使样品中的元素碳释放出来. 生成的 CO_2 在还原炉中被还原为甲烷，甲烷经由氢火焰离子化检测器(FID)进行定量检测. 在无氧阶段中部分有机碳会转变为焦化碳(OPC)，导致有机碳和元素碳不易区分，因此采用 633 nm 的氦-氖激光全程照射样品，监测光强的变化来确定元素碳氧化的起始点并科学区分 OC 和 EC.

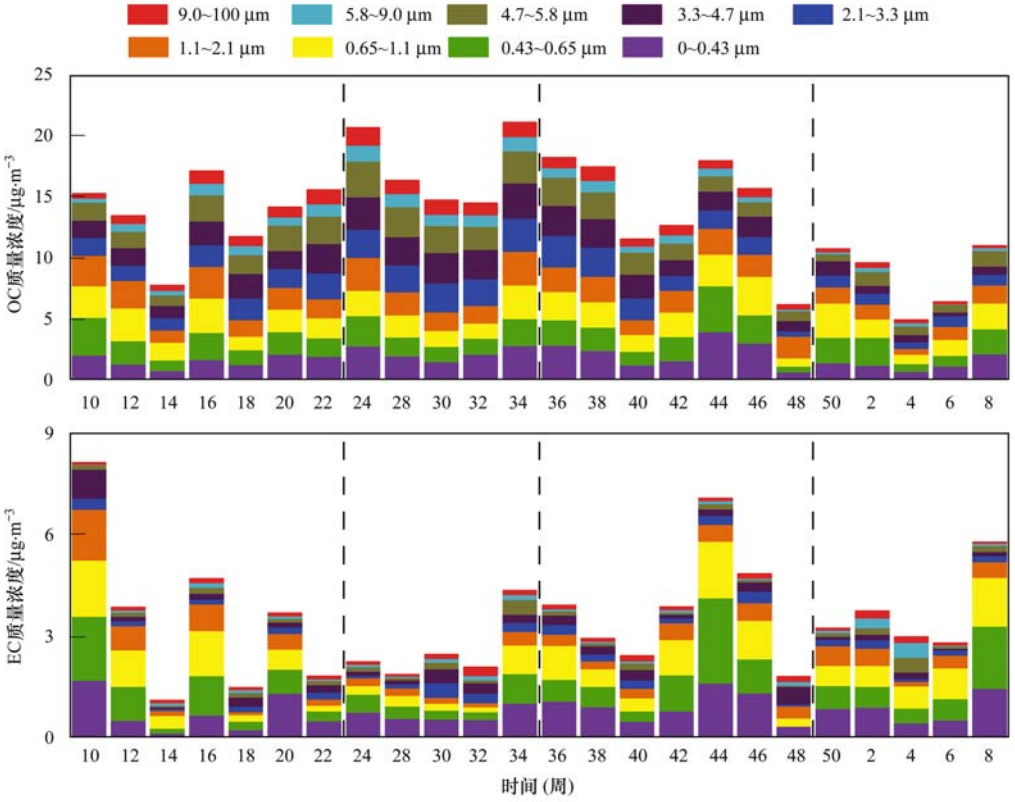
根据 IMPROVE_A 协议[20]，OC 定义为：OC = OC1 + OC2 + OC3 + OC4 + OPC，EC 定义为：EC = EC1 + EC2 + EC3 − OPC.

2 结果与讨论

2.1 OC 与 EC 的质量浓度

2.1.1 质量浓度特征

采样期间鼎湖山大气颗粒物中的 OC 和 EC 质量浓度变化见图 2. OC 的浓度变化范围较大,为 4.9 ~21.0 μg·m^{-3}. EC 变化相对较小,为 1.1 ~ 8.1 μg·m^{-3}. OC 明显高于 EC,鼎湖山大气颗粒物中碳质气溶胶以 OC 为主. $PM_{1.1}$中 OC 和 EC 的平均质量浓度为(5.6 ±2.0) μg·m^{-3}和(2.3 ±1.4) μg·m^{-3}, $PM_{2.1}$中为(7.3 ± 2.4) μg·m^{-3}和(2.7 ± 1.6) μg·m^{-3}, $PM_{9.0}$中为(12.8 ±4.0) μg·m^{-3}和(3.4 ± 1.7) μg·m^{-3}. $PM_{1.1}$和 $PM_{2.1}$中 OC 分别占 $PM_{9.0}$中 OC 的 43.8% 和 57.0%, EC 占 67.6% 和 79.4%. 由此可见鼎湖山大气颗粒物中 OC 和 EC 特别是 EC 主要富集在 $PM_{2.1}$的细粒子范围内.



横坐标 10 表示 2015 年第 10 周, 2 表示 2016 年第 2 周,以此类推

图 2 采样期间 OC 与 EC 的质量浓度(2015 年 3 月 ~2016 年 2 月)

Fig. 2 Mass concentration of OC and EC of different size during sampling periods

全国各站点的 OC 与 EC 浓度水平见表 1. 鼎湖山 $PM_{2.1}$中 OC 和 EC 低于广州[21]、佛山[22]、珠海[23]和肇庆[24]等珠江三角洲地区的城市站,但与这些城市站的浓度水平相差不大,也远低于北京[25]、天津[26]、南京[27]、杭州[28]、乌鲁木齐[29]、兰州[30]和重庆[31]等城市站. 但鼎湖山高于鹤咀[24]、尖峰岭[32]、长白山[32]、崇明[32]、黄山[33]、庐山[34]、珠穆朗玛峰[35]和纳木错[36]等背景站,低于上甸子[37]和临安[38]背景站. $PM_{1.1}$中 OC 和 EC 也呈现出相似的结果[39,40]. 由此可见鼎湖山所代表的珠江三角洲区域浓度水平较高,OC 和 EC 高于大部分背景站,尤其是 EC,和城市地区的浓度水平相当,仅低于华北、长三角地区背景站,体现出区域排放量的差异. 相比于 2006 年[32,41],鼎湖山 OC 质量浓度仅增加了 37.7%,EC 却增加了 285.7%,EC 排放量的显著增加与珠三角地区近十年来机动车排放的显著增加密切相关.

2.1.2 季节变化

鼎湖山大气颗粒物 $PM_{1.1}$、$PM_{2.1}$和 $PM_{9.0}$中不同季节的 OC 和 EC 平均质量浓度见表 2. 从中可知,鼎湖山大气颗粒物中 OC 和 EC 有明显的季节变化.

$PM_{2.1}$中 OC 的季节变化表现为秋季 > 夏季 > 春季 > 冬季,在秋季、夏季和春季较高的 OC 说明鼎湖山细粒径段中的 OC 可能来自化石燃料等燃烧源排放的细粒子和燃烧源以及植物排放的挥发性有机物经过光化学反应生成[42]. 鼎湖山植物生长旺盛,会排放较多的挥发性有机物(volatile organic compounds, VOCs)[43],并且大气平均温度较高,相对湿度大,总辐射强(图 1),有利于 OC 的二次生成,春、夏和秋季较高的二次有机碳(secondary

表 1　各站点 OC 和 EC 的质量浓度及比值[1)]

Table 1　Mass concentration of OC and EC at different sites

站点	日期(年-月-日)	OC/μg·m^{-3}	EC/μg·m^{-3}	OC/EC	方法	文献
鼎湖山	2015-03 ~ 2016-02	7.3 ± 2.4	2.7 ± 1.6	2.7	TOR	本研究
广州	2015-01 ~ 2015-11	8.31 ± 4.53	3.56 ± 2.72	2.3	TOR	[21]
佛山	2008-11 ~ 2014-12	12.9 ± 13.9	5.1 ± 2.5	2.19 ~ 4.13	—	[22]
珠海	2015-01-10 ~ 2015-11-10	11.62	3.56	3.6	TOR	[23]
肇庆	2006-08-14 ~ 2007-08-28	8.2 ± 5.6	3.9 ± 2.0	2.1	TOR	[24]
北京	2015-04 ~ 2016-03	13.49 ± 4.32	5.41 ± 1.83	2.5	TOR	[25]
天津	2016-02-22 ~ 2016-03-22	13.1	4.3	3	TOR	[26]
南京	2015-01-09 ~ 2015-01-31	20.32 ± 10.3	5.39 ± 3.07	3.8	TOR	[27]
杭州	2013-12 ~ 2014-02	23.7 ± 7.5	5.0 ± 2.4	5.3 ± 1.9	TOR	[28]
乌鲁木齐	2013-01 ~ 2014-02	15.73 ± 8.50	5.48 ± 2.70	2.9	TOR	[29]
兰州	2014-12 ~ 2015-11	25.4 ± 15.3	6.7 ± 4.5	4.1	—	[30]
成都($PM_{1.1}$)	2015-04、2015-07、2015-10 和 2016-01	10.38 ± 7.15	2.85 ± 1.75	3.6	—	[40]
成都	2014-10、2015-01、2015-04 和 2015-07	10.9 ± 7.6	3.6 ± 2.7	—	TOR	[31]
重庆	2014-10、2015-01、2015-04 和 2015-07	13.1 ± 10.0	4.5 ± 2.6	—	TOR	[31]
上甸子	2015-01 ~ 2015-12	8.6 ± 6.0	1.6 ± 1.1	2.8	TOR	[37]
临安	2015-06-07 ~ 2015-08-31	14.3	3.33	4.75	TOR	[38]
鹤咀	2006-08-14 ~ 2007-08-28	4.1 ± 3.0	1.8 ± 1.2	2.3	TOR	[24]
长白山	2007-07-23 ~ 2007-07-28	4.9	0.5	9.8	—	[32]
黄山($PM_{2.1}$)	2014-06-30 ~ 2014-07-27	3.76 ± 2.05	0.17 ± 0.24	22.1	TOR	[33]
泰山	2014-09-19 ~ 2014-10-18	7.37 ± 4.12	0.90 ± 0.34	8.20 ± 4.32	TOT	[39]
泰山($PM_{1.1}$)	2014-09-19 ~ 2014-10-18	5.57 ± 3.42	0.61 ± 0.21	9.13 ± 5.02	TOT	[39]
庐山	2011-08 ~ 2011-09	3.78	1.28	3.8	TOR	[34]
崇明东平国家森林公园	2006-06-13 ~ 2006-06-15	9.8	1.6	6.1	—	[32]
尖峰岭	2006-11-20 ~ 2006-11-26	2.4	0.2	12	—	[32]
珠穆朗玛峰	2009-08 ~ 2010-07	1.43 ± 1.16	0.25 ± 0.22	6.69	TOR	[35]
纳木错	2015-11-23 ~ 2015-12-30	0.85	0.09	9.4	TOR	[36]
鼎湖山	2006-08-02 ~ 2006-08-14	5.1	0.69	7.4	TOT	[32]
鼎湖山	2006-08-02 ~ 2006-08-10	5.3	0.7	7.6	TOT	[41]

1)未注明 $PM_{1.1}$ 与 $PM_{2.1}$ 的站点均为 $PM_{2.5}$ 中的 OC 与 EC 的质量浓度；“—”表示文章中无相关数据

organic carbon, SOC)质量浓度也印证了这一点. $PM_{1.1}$ 中 OC 的季节变化与 $PM_{2.1}$ 相同,但 $PM_{9.0}$ 中 OC 的季节变化与 $PM_{2.1}$ 明显不同,呈现为夏季最高,冬季最低的变化趋势. 夏季粗粒子($PM_{2.1\sim9.0}$)中 OC[(8.4 ± 0.8) μg·m^{-3}]远高于其他季节和细粒径段的浓度,由此看出鼎湖山夏季在粗粒径段的排放源对 OC 的影响较大,推测一方面可能是夏季旅游旺季带来的车扬尘源增加,另一方面可能是夏季旺盛的植物排放如花粉孢子类增加造成的. 夏季虽然降水较多,但降水对真菌孢子排放无影响[44].

$PM_{2.1}$ 中 EC 的季节变化与 OC 不同,表现为秋季 > 冬季 > 春季 > 夏季,除夏季外其他 3 个季节浓度均较高. 秋季、冬季和春季可能均受到化石燃料燃烧和机动车排放的影响,夏季可能由于季风带来较干净的海洋气团并且受到湿清除作用因而浓度最低. $PM_{1.1}$ 和 $PM_{9.0}$ 中 EC 与 $PM_{2.1}$ 中的 EC 变化一致. EC 在 4 个季节粗粒径段的平均质量浓度相差不大,均小于 1.0 μg·m^{-3},可以看出 EC 的排放源在粗粒径段贡献较小.

表 2　$PM_{1.1}$、$PM_{2.1}$ 和 $PM_{9.0}$ 中 OC 与 EC 的季节平均质量浓度/μg·m^{-3}

Table 2　Seasonal mean mass concentrations of OC and EC in $PM_{1.1}$, $PM_{2.1}$, and $PM_{9.0}$/μg·m^{-3}

季节	$PM_{1.1}$		$PM_{2.1}$		$PM_{9.0}$	
	OC	EC	OC	EC	OC	EC
春	5.4 ± 1.5	2.3 ± 1.5	7.3 ± 2.0	2.8 ± 2.0	12.9 ± 2.7	3.5 ± 2.3
夏	5.9 ± 1.5	1.5 ± 0.7	7.9 ± 2.0	1.7 ± 0.8	16.3 ± 2.8	2.5 ± 0.9
秋	6.3 ± 2.6	2.7 ± 1.6	8.1 ± 2.8	3.1 ± 1.6	13.5 ± 3.9	3.7 ± 1.6
冬	4.6 ± 1.7	2.5 ± 1.1	5.7 ± 2.0	2.9 ± 1.2	8.3 ± 2.4	3.6 ± 1.1

2.2　OC 与 EC 各组分的浓度特征

研究碳质气溶胶中各组分的分布特征和季节变化有助于了解鼎湖山大气颗粒物的来源. 有研究表明 OC1 来自生物质燃烧排放、机动车排放和植物排放的挥发性有机物[45],OC2 为燃煤排放,OC3、OC4 来自生物质碎片排放[42],OC3、OC4 和 EC1 来自汽

油车尾气排放,EC2 和 EC3 来自柴油车尾气排放[46]. OC 和 EC 各组分的分级平均质量浓度见图 3. 其中 OC1 在各粒径段的质量浓度较低,这可能因为挥发性有机物在大气中容易发生反应并转化. OC2 的平均质量浓度除冬季外在各粒径段都大于其他组分,说明鼎湖山的 OC 在春季、夏季和秋季这 3 个季节可能以燃煤排放源为主; 在 2.1 ~5.8 μm 粗粒径段上 OC2 的质量浓度比细粒径段略大,可能是燃煤排放的 OC 在输送过程中附着在扬尘或花粉孢子等粗粒子上,此外 OC3 在 2.1 ~4.7 μm 也有相同的变化趋势,表明粗粒径段的 OC2 可能部分来自植物的直接排放. OC4 则相反,在细粒径段质量浓度比粗粒径段大,且 EC1 与 OC4 的变化趋势相同,两者之间相关性较好($PM_{9.0}$, $R^2 = 0.76$, $P < 0.01$),说明鼎湖山的这两种组成具有同源性,可能都来自尾气排放.

不同粒径中 OC 和 EC 各组分的季节变化如图 4 所示. $PM_{2.1}$ 中碳质气溶胶组分主要为 OC2、EC1、OC3 和 OC4,在春季和秋季均表现为 OC2 > EC1 > OC3 > OC4 > EC2 > OC1 > EC3,由此看出鼎湖山细粒子中春、秋季节以燃煤和机动车源为主,夏季则在 OC3 和 EC1 上略微有点不同,表现为 OC3 > EC1,表明夏季生物质排放源增强,而冬季则表现为 EC1 > OC3 > OC4 > OC2 > EC2 > OC1 > EC3 的变化趋势,这表明冬季局地的机动车排放源更强,这与 Cao 等[47]的研究结果一致. $PM_{2.1\sim9.0}$ 中 OC3 [(1.3 ± 0.5) $\mu g \cdot m^{-3}$] 的质量浓度较高,而其他组分相差不大,均值均小于 0.5 $\mu g \cdot m^{-3}$,由此可知鼎湖山粗粒径段主要是以生物质排放源为主.

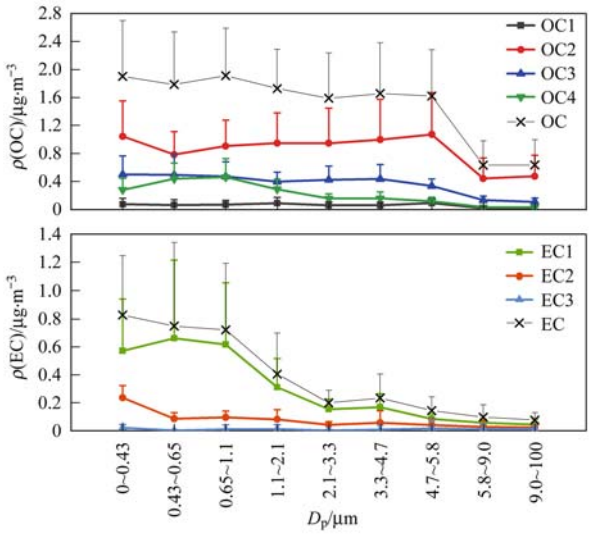


图 3 不同粒径 OC 和 EC 各组分的平均质量浓度的分布

Fig. 3 Mean mass concentrations of carbon fractions of different diameters

2.3 OC 与 EC 的粒径分布特征

由于 OC 与 EC 的来源与粒径分布关系密切[48],所以研究鼎湖山 OC 与 EC 的粒径分布对进一步判断源有着重要意义. OC 和 EC 平均质量浓度的粒径分布及季节变化如图 5 所示. OC 和 EC 的质量浓度在 4 个季节都呈现双峰型分布,OC 在 4 个季节的峰值都位于 0.43 ~0.65 μm 和 4.7 ~5.8 μm

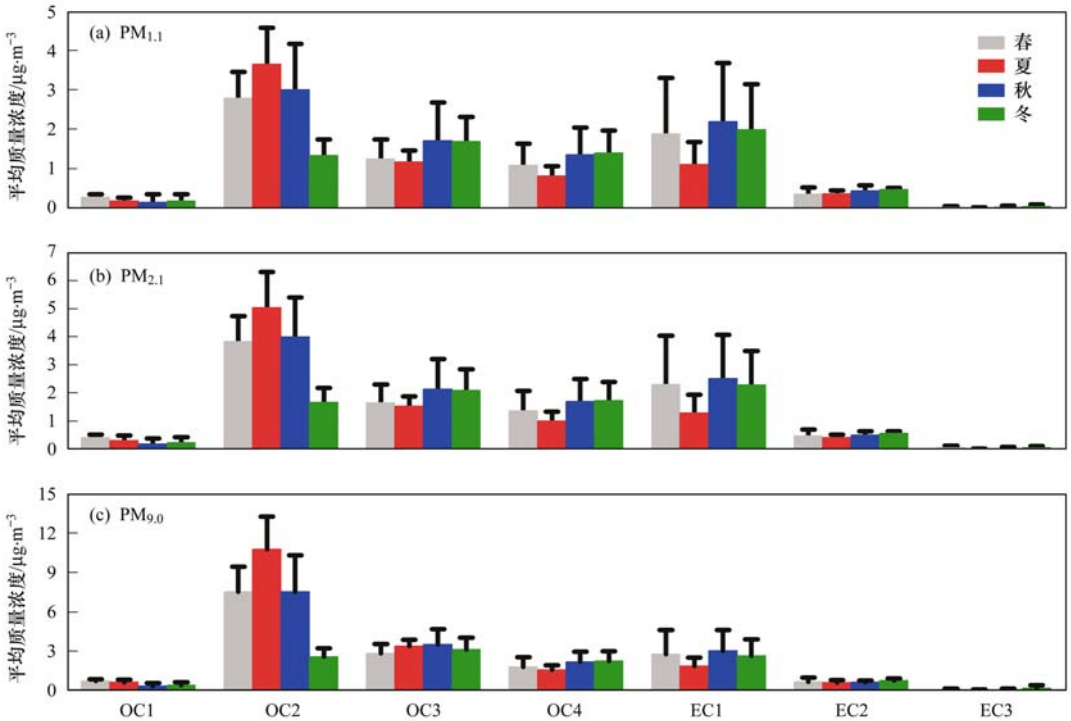


图 4 $PM_{1.1}$、$PM_{2.1}$ 和 $PM_{9.0}$ 中碳组分的季节变化

Fig. 4 Seasonal variations of carbonaceous fractions in $PM_{1.1}$, $PM_{2.1}$, and $PM_{9.0}$

粒径段上，这与段卿等[49]的研究结果相同，细粒径段主要由燃煤和机动车排放的一次有机碳 POC (primary organic carbon，POC) 和燃烧源及植物排放的 VOCs 经过一系列大气光化学反应生成[42]，粗粒径段来自扬尘和生物气溶胶如花粉、孢子和植物残体等[50]. OC 在春季、夏季和秋季在粗粒径段的峰值远高于细粒径段的峰值，冬季相差不大，夏季尤其高与鼎湖山的自然背景相符. 尽管冬季边界层相对较低易于污染物积累，但鼎湖山各粒径段的 OC 在冬季均低于其他季节，这可能是因为冬季气温和相对湿度降低，总辐射减少，植物排放相对于其他季节减少. 所以从粒径分布来看，鼎湖山 OC 以燃煤、机动车和生物源占主导.

鼎湖山 4 个季节 EC 的峰值都在 0.43 ~ 0.65 μm 上，春季和秋季在粗粒径段的峰值位于 3.3 ~ 4.7 μm 粒径段上，夏季和冬季的峰值在 4.7 ~ 5.8 μm 粒径段上. 细粒径段 EC 的峰值在春季、秋季和冬季均高于夏季峰值，这可能与鼎湖山夏季季风带来的降水对粒子的湿清除作用有关. 4 个季节的 EC 在细粒径段的峰值明显高于粗粒径段，粗粒径段各季节之间峰值相差不大，可见鼎湖山的 EC 主要受到燃煤和机动车尾气排放的影响.

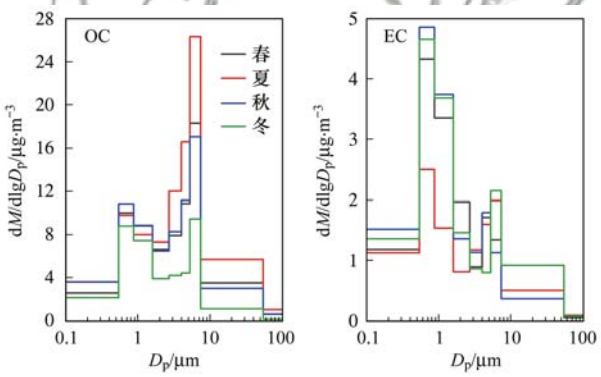


图 5　OC 与 EC 的粒径分布

Fig. 5　Size distribution of OC and EC

2.4　OC 与 EC 的相关性分析

通过 OC 与 EC 的相关性分析可以识别碳质气溶胶的来源，若相关性好，表明 OC 与 EC 的污染来源具有一致性，反之则表明污染来源复杂[51]. 鼎湖山 OC 和 EC 的季节相关性见图 6. 春季和秋季 $PM_{1.1}$ 中 R^2 分别为 0.87 ($P < 0.01$) 和 0.87 ($P < 0.01$)，$PM_{2.1}$ 中 R^2 分别为 0.85 ($P < 0.01$) 和 0.85 ($P < 0.01$)，OC 和 EC 显著相关，而夏季 $PM_{1.1}$ 与 $PM_{2.1}$ 中 OC 和 EC 的相关系数分别为 0.73 ($P < 0.1$) 和 0.72 ($P < 0.1$)，在 10% 的水平上相关，以上表明春季、夏季和秋季 $PM_{1.1}$ 和 $PM_{2.1}$ 中 OC 和 EC 的来源都具有同源性，3 个季节可能都受到化石燃料燃烧源的影响；冬季 $PM_{1.1}$ 和 $PM_{2.1}$ 中 OC 和 EC 的相关性较差，表明其来源相对较复杂，可能冬季 EC 主要来自机动车排放，而 OC 则更多的与燃煤和生物质燃烧等排放有关. $PM_{9.0}$ 中 OC 和 EC 在各季节相关性较差，表明 OC 和 EC 同源性较差，在鼎湖山背景区域粗粒径段 OC 主要来自植物排放，而 EC 可能来自车扬尘等的影响，所以表现为不相关.

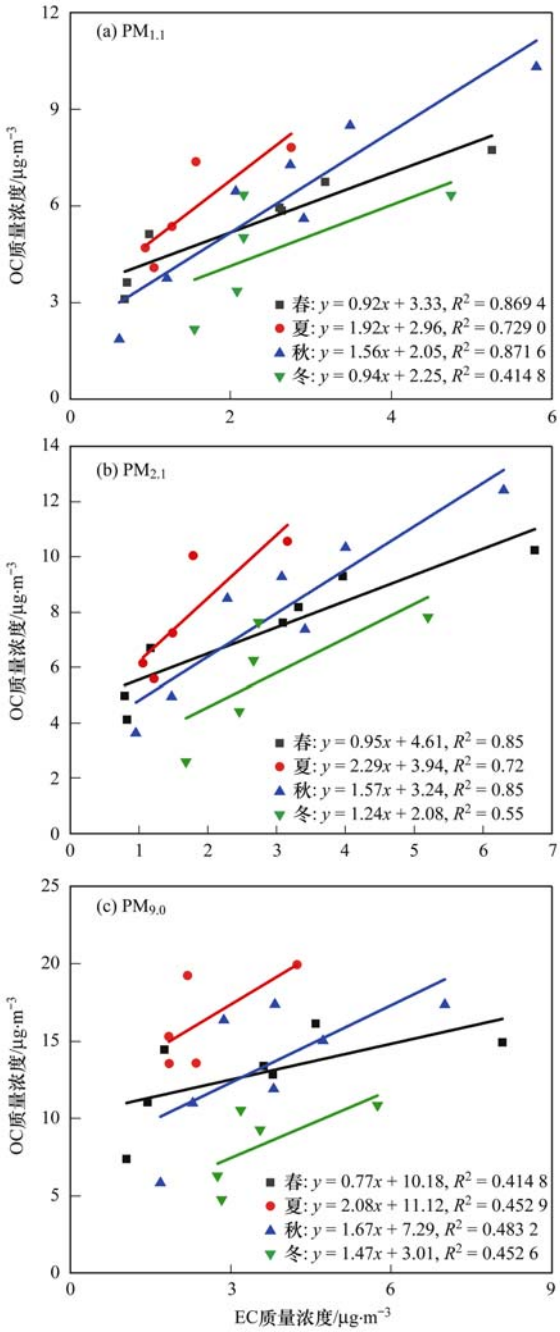


图 6　$PM_{1.1}$、$PM_{2.1}$ 与 $PM_{9.0}$ 中 OC 和 EC 的季节相关性

Fig. 6　Seasonal correlation of OC and EC in $PM_{1.1}$, $PM_{2.1}$, and $PM_{9.0}$

2.5　OC/EC 值与 SOC 估算

鼎湖山 $PM_{2.1}$ 与 $PM_{2.1\sim9.0}$ 中 OC/EC 值如图 7 所示. $PM_{2.1}$ 中 OC/EC 值在 1.5 ~ 6.3 之间，春夏的比

值相对于秋冬较高，4 个季节的 OC/EC 值与年均值分别为 3.7、4.8、2.9、2.0 和 3.4 ± 1.5. 夏季 OC/EC 值较大是因为鼎湖山夏季以生物质源为主，冬季机动车源较强，所以冬季比值较低，四季 OC 与 EC 的比值体现出季节间源强的差异. $PM_{9.0}$ 与 $PM_{2.1}$ 的变化趋势一致，而 $PM_{2.1\sim9.0}$ 中 OC/EC 值在春季、夏季和秋季较高，夏季最高达到 22，冬季最低，均小于 7. 有研究表明当 OC/EC 值为 1.0 ~ 4.2 代表柴油和汽油排放[52]，乔木树枝燃烧烟尘中 OC/EC 值为 2.5 ~ 8.4[53]，燃煤排放为 2.5 ~ 10[54]，木材燃烧的 OC/EC 值为 10.8，地面扬尘为 13.1，生物质燃烧为 16.8 ~ 40. 从上述比值来看，鼎湖山 $PM_{2.1}$ 中 OC 和 EC 主要受到机动车尾气排放、燃煤和森林乔木树枝燃烧等燃烧源排放的影响，$PM_{2.1\sim9.0}$ 中 OC 和 EC 则主要受扬尘、生物源排放等影响. 鼎湖山 $PM_{2.1}$ 中 OC/EC 值与东莞(2.3)、广州和深圳(2.6)、佛山(2.9)、从化(3.8)和珠海(4.6)等珠三角城郊站点的比值接近[4]，更加体现了珠三角地区较强的机动车源环境背景.

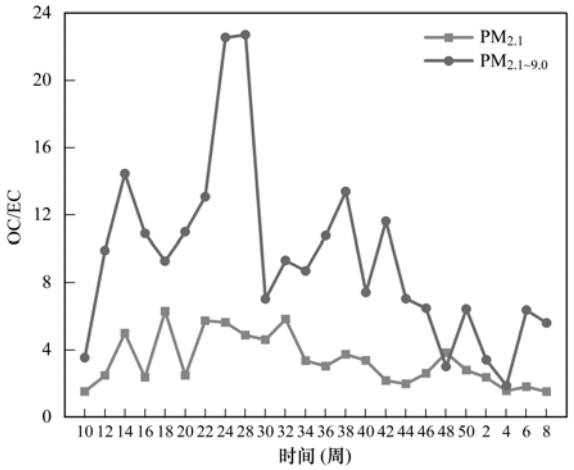
本文综合采用了 Turpin 等[51]和 Castro 等[55]提出的估算 SOC 的方法，计算公式为：

$$\rho(OC_{pri}) = \rho(EC) \times [\rho(OC)/\rho(EC)]_{min}$$

$$\rho(OC_{sec}) = \rho(OC) - \rho(OC_{pri})$$

式中，$\rho(OC_{pri})$ 为一次有机碳，$\rho(OC_{sec})$ 为二次有机碳即 SOC，将 $[\rho(OC)/\rho(EC)]_{min}$ 看作一次排放过程中的 OC/EC 值.

不同粒径段的 POC 与 SOC 的季节变化见图 8. 从中可见 $PM_{1.1}$ 和 $PM_{2.1}$ 中 4 个季节下 SOC 的质量浓度均小于 POC，说明鼎湖山细粒径段 OC 以一次排放为主. $PM_{2.1}$ 中，POC 的平均质量浓度表现为秋季[(6.1 ± 3.3) μg·m^{-3}] > 夏季[(5.8 ± 2.5) μg·m^{-3}] > 冬季[(4.4 ± 1.8) μg·m^{-3}] > 春季[(4.3 ±3.0) μg·m^{-3}]，SOC 表现为春季[(3.0 ± 1.4) μg·m^{-3}] > 夏季[(2.1 ± 1.3) μg·m^{-3}] > 秋季[(2.0 ± 1.3) μg·m^{-3}] > 冬季[(1.3 ± 1.4) μg·m^{-3}]，4 个季节 ρ(SOC)/ρ(OC) 比值为 41.0%、26.4%、25.0% 和 22.9%，由此看出鼎湖山夏季、秋季和冬季以一次排放为主，而春季二次转化更强. $PM_{2.1\sim9.0}$ 中 SOC 的季节变化为秋季[(3.5 ± 1.9) μg·m^{-3}] > 春季[(3.3 ± 1.7) μg·m^{-3}] > 夏季[(3.1 ± 2.4) μg·m^{-3}] > 冬季[(1.4 ± 0.7) μg·m^{-3}]，粗粒子中 SOC 的质量浓度相比于细粒子在相应季节均有上升，$PM_{2.1}$ 和 $PM_{2.1\sim9.0}$ 中 SOC 分别约占 $PM_{9.0}$ 中 OC 的 16.9% 和 22.7%，因为粒径较大的颗粒物为气粒转化反应提供了较大的反应表面，



横坐标 10 表示 2015 年第 10 周，2 表示 2016 年第 2 周，以此类推

图 7 $PM_{2.1}$ 与 $PM_{2.1\sim9.0}$ 中 OC/EC 值 (2015 年 3 月 ~ 2016 年 2 月)

Fig. 7 OC/EC in $PM_{2.1}$ and $PM_{2.1\text{-}9.0}$ during sampling periods

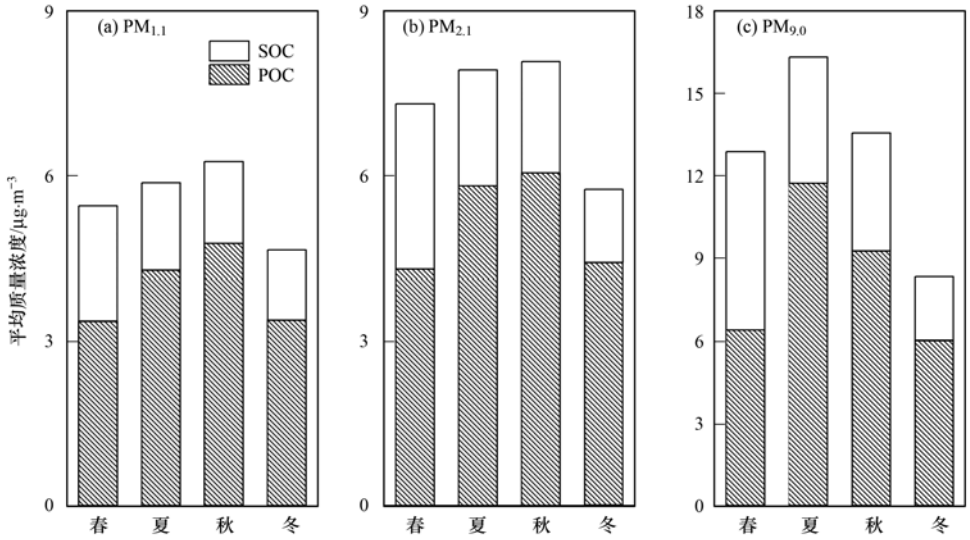


图 8 $PM_{1.1}$、$PM_{2.1}$ 和 $PM_{9.0}$ 中 POC 与 SOC 的季节变化

Fig. 8 Seasonal variations of POC and SOC in $PM_{1.1}$, $PM_{2.1}$, and $PM_{9.0}$

所以 OC 在粗粒径段的二次转化更多. 与佛山禅城[56]冬季 SOC[(7.75 ± 5.34) μg·m^{-3}]大于夏季[(2.01 ± 1.3) μg·m^{-3}]不同的是鼎湖山夏季大于冬季,鼎湖山在冬季的二次转化较弱.

3　结论

(1)鼎湖山的碳质气溶胶以 OC 为主,OC 和 EC 特别是 EC 主要富集在 $PM_{2.1}$ 的细粒子范围内. OC 和 EC 呈现出明显的季节变化. $PM_{1.1}$ 和 $PM_{2.1}$ 中 OC 的季节变化表现为秋季 > 夏季 > 春季 > 冬季,$PM_{9.0}$ 中 OC 呈现为夏季最高,冬季最低的变化趋势. 各粒径段 EC 的季节变化一致,均表现为秋季 > 冬季 > 春季 > 夏季.

(2)鼎湖山碳质气溶胶主要组分为 OC2、EC1、OC3 和 OC4,春秋季 OC2 和 EC1 质量浓度最高,夏季 OC3 > EC1,而冬季 EC1 质量浓度最高. 夏季生物质排放源增强,而冬季局地的机动车排放源更强.

(3)鼎湖山 OC 和 EC 的平均质量浓度在 4 个季节都呈现双峰型分布,峰值位于 0.43 ~ 0.65 μm 和 3.3 ~ 5.8 μm 粒径段.

(4)鼎湖山 $PM_{1.1}$ 和 $PM_{2.1}$ 中 OC 和 EC 在春季、夏季和秋季的相关性较好,具有同源性,冬季相关性较差,$PM_{9.0}$ 中 OC 和 EC 在各季节相关性也较差,粗粒径段 OC 和 EC 来自不同的源.

(5)鼎湖山碳质气溶胶以燃煤、机动车和生物源占主导,OC 以一次排放为主,春季二次转化更强,冬季二次转化较弱. 细粒径段 OC 主要来自化石燃料排放,粗粒径段主要来自生物源排放. 鼎湖山 EC 主要受到燃煤和机动车排放以及扬尘的影响.

参考文献:

[1] Zhao Z Z, Wang Q Y, Xu B Q, *et al*. Black carbon aerosol and its radiative impact at a high-altitude remote site on the southeastern Tibet Plateau[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2017, **122**(10): 5515-5530.

[2] Kim D C, Wang C E, Ekman A M L, *et al*. Distribution and direct radiative forcing of carbonaceous and sulfate aerosols in an interactive size-resolving aerosol-climate model[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2008, **113**(D16): D16309.

[3] 杨丝絮, 马玉霞, 周建丁, 等. 上海市大气污染对感冒疾病相对危险度的影响[J]. 环境科学, 2018, **39**(4): 1552-1559.
Yang S X, M Y X, Zhou J D, *et al*. Effect of air pollution on the cold disease in Shanghai[J]. Environmental Science, 2018, **39**(4): 1552-1559.

[4] 杨毅红, 瞿群, 刘随心, 等. 夏季珠江三角洲地区 $PM_{2.5}$ 化学组分特征及其对大气能见度的影响[J]. 环境科学, 2015, **36**(8): 2758-2767.
Yang Y H, Qu Q, Liu S X, *et al*. Chemical compositions in $PM_{2.5}$ and its impact on visibility in summer in Pearl River Delta, China[J]. Environmental Science, 2015, **36**(8): 2758-2767.

[5] 黄虹, 李顺诚, 曹军骥, 等. 广州市夏季室内外 $PM_{2.5}$ 中有机碳、元素碳的分布特征[J]. 环境科学学报, 2005, **25**(9): 1242-1249.
Huang H, Lee S C, Cao J J, *et al*. Characterization of indoor/outdoor organic and elemental carbon in $PM_{2.5}$ during summer in Guangzhou city[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2005, **25**(9): 1242-1249.

[6] 刘新民, 邵敏, 曾立民, 等. 珠江三角洲地区气溶胶中含碳物质的研究[J]. 环境科学, 2002, **23**(S1): 54-59.
Liu X M, Shao M, Zeng L M, *et al*. Study on EC and OC compositions of ambient particles in Pearl River Delta region[J]. Environmental Science, 2002, **23**(S1): 54-59.

[7] Ho K F, Cao J J, Harrison R M, *et al*. Indoor/outdoor relationships of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in $PM_{2.5}$ in roadside environment of Hong Kong[J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(37): 6327-6335.

[8] Tao J, Zhang L M, Cao J J, *et al*. Source apportionment of $PM_{2.5}$ at urban and suburban areas of the Pearl River Delta region, south China-with emphasis on ship emissions[J]. Science of the Total Environment, 2017, **574**: 1559-1570.

[9] Han Y M, Lee S C, Cao J J, *et al*. Spatial distribution and seasonal variation of char-EC and soot-EC in the atmosphere over China[J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(38): 6066-6073.

[10] Zheng M, Wang F, Hagler G S W, *et al*. Sources of excess urban carbonaceous aerosol in the Pearl River Delta Region, China[J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**(5): 1175-1182.

[11] Hu D, Bian Q J, Lau A K H, *et al*. Source apportioning of primary and secondary organic carbon in summer $PM_{2.5}$ in Hong Kong using positive matrix factorization of secondary and primary organic tracer data[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2010, **115**(D16): D16204.

[12] Zhou S Z, Wang T, Wang Z, *et al*. Photochemical evolution of organic aerosols observed in urban plumes from Hong Kong and the Pearl River Delta of China[J]. Atmospheric Environment, 2014, **88**: 219-229.

[13] 陈林, 王莉莉, 吉东生, 等. 广州亚运会期间鼎湖山站大气污染特征[J]. 应用气象学报, 2013, **24**(2): 151-161.
Chen L, Wang L L, Ji D S, *et al*. Characteristics of atmospheric pollutants at Dinghushan station during the Asian Games in Guangzhou[J]. Journal of Applied Meteorological Science, 2013, **24**(2): 151-161.

[14] 刘子锐, 王跃思, 刘全, 等. 鼎湖山秋季大气细粒子及其二次无机组分的污染特征及来源[J]. 环境科学, 2011, **32**(11): 3160-3166.
Liu Z R, Wang Y S, Liu Q, *et al*. Pollution characteristics and source of the atmospheric fine particles and secondary inorganic compounds at Mount Dinghu in autumn season[J]. Environmental Science, 2011, **32**(11): 3160-3166.

[15] 赵亚南, 王跃思, 刘全. 鼎湖山秋季大气气溶胶中水溶性离子浓度与粒径分布[J]. 环境化学, 2012, **31**(8): 1277-1278.
Zhao Y N, Wang Y S, Liu Q. The concentration and the size distributions of water-souble ions in atmospheric aerosols at Dinghushan in autumn[J]. Environmental Chemistry, 2012, **31**(8): 1277-1278.

[16] 刘鲁宁, 郝庆菊, 刘子锐, 等. 鼎湖山地区大气颗粒物中水溶性无机盐粒径分布特征[J]. 中国农学通报, 2010, **26**(17): 357-361.
Liu L N, Hao Q J, Liu Z R, *et al*. Size distributions of water

soluble ions of atmosphere in the Mountain Dinghu[J]. Chinese Agricultural Science Bulletin, 2010, **26**(17): 357-361.

[17] 赵亚南, 王跃思, 温天雪, 等. 鼎湖山 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子浓度特征分析[J]. 环境科学, 2013, **34**(4): 1232-1235.
Zhao Y N, Wang Y S, Wen T X, *et al*. Characterization of water-soluble ions in $PM_{2.5}$ at Dinghu Mount[J]. Environmental Science, 2013, **34**(4): 1232-1235.

[18] 杨勇杰, 王跃思, 温天雪, 等. 鼎湖山 $PM_{2.5}$ 中化学元素的组成及浓度特征和来源[J]. 环境科学, 2009, **30**(4): 988-992.
Yang Y J, Wang Y S, Wen T X, *et al*. Element characteristics and sources of $PM_{2.5}$ at Mount Dinghu in 2006 [J]. Environmental Science, 2009, **30**(4): 988-992.

[19] 刘慧, 胡波, 王跃思, 等. 山东禹城紫外辐射变化特征及其估测方程的建立[J]. 大气科学, 2015, **39**(3): 503-512.
Liu H, Hu B, Wang Y S, *et al*. Variation characteristics and establishment of estimating equation for ultraviolet radiation in Yucheng, Shandong Province [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 2015, **39**(3): 503-512.

[20] Chow J C, Watson J G, Chen L W A, *et al*. The IMPROVE_A temperature protocol for thermal/optical carbon analysis: maintaining consistency with a long-term database[J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2007, **57**(9): 1014-1023.

[21] 张晓雨, 赵欣, 应蓉蓉, 等. 广州大气 $PM_{2.5}$ 中含碳组分的污染特征及来源解析[J]. 生态与农村环境学报, 2018, **34**(7): 659-666.
Zhang X Y, Zhao X, Ying R R, *et al*. Characteristics and source apportionments of carbonaceous components in atmospheric fine particles in Guangzhou [J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2018, **34**(7): 659-666.

[22] Tan J H, Duan J C, Ma Y L, *et al*. Long-term trends of chemical characteristics and sources of fine particle in Foshan City, Pearl River Delta: 2008-2014[J]. Science of the Total Environment, 2016, **565**: 519-528.

[23] Liang Z B, Zhao X F, Chen J Y, *et al*. Seasonal characteristics of chemical compositions and sources identification of $PM_{2.5}$ in Zhuhai, China [J]. Environmental Geochemistry & Health, 2019, **41**(2): 715-728.

[24] Huang H, Ho K F, Lee S C, *et al*. Characteristics of carbonaceous aerosol in $PM_{2.5}$: pearl Delta River Region, China [J]. Atmospheric Research, 2012, **104-105**: 227-236.

[25] 张婷婷, 马文林, 亓学奎, 等. 北京城区 $PM_{2.5}$ 有机碳和元素碳的污染特征及来源分析[J]. 环境化学, 2018, **37**(12): 2758-2766.
Zhang T T, Ma W L, Qi X K, *et al*. Characteristics and sources of organic carbon and element carbon in $PM_{2.5}$ in the urban areas of Beijing[J]. Environmental Chemistry, 2018, **37**(12): 2758-2766.

[26] 程渊, 刘保双, 毕晓辉, 等. 天津市区夏冬季环境空气 $PM_{2.5}$ 中碳组分污染特征及来源研究[J]. 环境科学学报, 2018, **38**(9): 3394-3405.
Cheng Y, Liu B S, Bi X H, *et al*. Character and source analysis of carbonaceous aerosol in $PM_{2.5}$ during summer-winter period, Tianjin urban area[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018, **38**(9): 3394-3405.

[27] 康晖, 朱彬, 王红磊, 等. 长三角典型站点冬季大气 $PM_{2.5}$ 中 OC、EC 污染特征[J]. 环境科学, 2018, **39**(3): 961-971.
Kang H, Zhu B, Wang H L, *et al*. Characterization and variation of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in $PM_{2.5}$ during the winter in the Yangtze River Delta Region, China[J]. Environmental Science, 2018, **39**(3): 961-971.

[28] 杜荣光, 齐冰, 徐宏辉, 等. 杭州市 $PM_{2.5}$ 中碳气溶胶污染特征[J]. 环境化学, 2013, **32**(12): 2400-2401.
Du R G, Qi B, Xu H H, *et al*. Pollution characterization of carbonaceous aerosols in $PM_{2.5}$ in Hangzhou[J]. Environmental Chemistry, 2013, **32**(12): 2400-2401.

[29] 刘新春, 陈红娜, 赵克蕾, 等. 乌鲁木齐大气细颗粒物($PM_{2.5}$)有机碳和元素碳污染特征分析[J]. 生态环境学报, 2016, **25**(5): 821-828.
Liu X C, Chen H N, Zhao K L, *et al*. Analysis the pollution characteristics on organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) of fine particulate matter ($PM_{2.5}$) in Urumqi[J]. Ecology and Environmental Sciences, 2016, **25**(5): 821-828.

[30] Zhang Y L, Kang S C. Characteristics of carbonaceous aerosols analyzed using a multiwavelength thermal/optical carbon analyzer: a case study in Lanzhou City[J]. Science China Earth Sciences, 2019, **62**(2): 389-402.

[31] Wang H B, Tian M, Chen Y, *et al*. Seasonal characteristics, formation mechanisms and source origins of $PM_{2.5}$ in two megacities in Sichuan Basin, China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, **18**(2): 865-881.

[32] Li L, Wang W, Feng J L, *et al*. Composition, source, mass closure of $PM_{2.5}$ aerosols for four forests in eastern China[J]. Journal of Environmental Sciences, 2010, **22**(3): 405-412.

[33] 缪青, 张泽锋, 李艳伟, 等. 黄山夏季大气颗粒物中碳粒径分布特征及其输送潜在源区[J]. 中国环境科学, 2015, **35**(7): 1938-1946.
Miao Q, Zhang Z F, Li Y W, *et al*. Size distributions of carbonaceous aerosols and their potential sources at Mt. Huang during summer[J]. China Environmental Science, 2015, **35**(7): 1938-1946.

[34] Li P H, Wang Y, Li T, *et al*. Characterization of carbonaceous aerosols at Mount Lu in South China: implication for secondary organic carbon formation and long-range transport [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2015, **22**(18): 14189-14199.

[35] Cong Z Y, Kang S, Kawamura K, *et al*. Carbonaceous aerosols on the south edge of the Tibetan Plateau: concentrations, seasonality and sources[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, **15**(3): 1573-1584.

[36] 张丹, 楚宝临, 赵丽, 等. 拉萨市大气颗粒物碳组分污染特征及来源分析[J]. 环境影响评价, 2018, **40**(3): 65-70.
Zhang D, Chu B L, Zhao L, *et al*. Characteristics and source of carbonaceous species in PM of Lhasa City[J]. Environmental Impact Assessment, 2018, **40**(3): 65-70.

[37] Li Y, Tao J, Zhang L M, *et al*. High contributions of secondary inorganic aerosols to $PM_{2.5}$ under polluted levels at a regional station in Northern China [J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2016, **13**(12): 1202.

[38] Liang L L, Engling G, Zhang X Y, *et al*. Chemical characteristics of $PM_{2.5}$ during summer at a background site of the Yangtze River Delta in China[J]. Atmospheric Research, 2017, **198**: 163-172.

[39] 林瑜, 叶芝祥, 杨怀金, 等. 成都市中心城区大气 PM_1 的污染特征及来源解析[J]. 中国环境科学, 2017, **37**(9): 3220-3226.
Lin Y, Ye Z X, Yang H J, *et al*. Pollution level and source apportionment of atmospheric particles PM_1 in downtown area of Chengdu[J]. China Environmental Science, 2017, **37**(9): 3220-3226.

[40] Zhao T, Yang L X, Yan W D, *et al*. Chemical characteristics of $PM_1/PM_{2.5}$ and influence on visual range at the summit of Mount Tai, North China[J]. Science of the Total Environment, 2017, **575**: 458-466.

[41] Wang W, Wu M H, Li L, *et al*. Polar organic tracers in $PM_{2.5}$ aerosols from forests in eastern China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2008, **8**(24): 7507-7518.

[42] Duan J C, Tan J H, Wang S L, *et al*. Roadside, Urban, and Rural comparison of size distribution characteristics of PAHs and carbonaceous components of Beijing, China [J]. Journal of Atmospheric Chemistry, 2012, **69**(4): 337-349.

[43] Fehsenfeld F, Calvert J, Fall R, *et al*. Emissions of volatile organic compounds from vegetation and the implications for atmospheric chemistry [J]. Global Biogeochemical Cycles, 1992, **6**(4): 389-430.

[44] Li L, Lai W, Pu J G, *et al*. Polar organic tracers in $PM_{2.5}$ aerosols from an inland background area in Southwest China: correlations between secondary organic aerosol tracers and source apportionment[J]. Journal of Environmental Sciences, 2018, **69**: 281-293.

[45] Cao J J, Wu F, Chow J C, *et al*. Characterization and source apportionment of atmospheric organic and elemental carbon during fall and winter of 2003 in Xi'an, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2005, **5**(11): 3127-3137.

[46] Watson J G, Chow J C, Lowenthal D H, *et al*. Differences in the carbon composition of source profiles for diesel- and gasoline-powered vehicles [J]. Atmospheric Environment, 1994, **28**(15): 2493-2505.

[47] Cao J J, Huang H, Lee S C, *et al*. Indoor/outdoor relationships for organic and elemental carbon in $PM_{2.5}$ at residential homes in Guangzhou, China [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2012, **12**(5): 902-910.

[48] 樊晓燕, 温天雪, 徐仲均, 等. 北京大气颗粒物碳质组分粒径分布的季节变化特征[J]. 环境化学, 2013, **32**(5): 742-747.
Fan X Y, Wen T X, Xu Z J, *et al*. Characteristics and size distributions of organic and element carbon of atmospheric particulate matters in Beijing, China [J]. Environmental Chemistry, 2013, **32**(5): 742-747.

[49] 段卿, 安俊琳, 王红磊, 等. 南京北郊夏季大气颗粒物中有机碳和元素碳的污染特征[J]. 环境科学, 2014, **35**(7): 2460-2467.
Duan Q, An J L, Wang H L, *et al*. Pollution characteristics of organic and elemental carbon in atmospheric particles in Nanjing northern suburb in summer[J]. Environmental Science, 2014, **35**(7): 2460-2467.

[50] 石广玉, 檀赛春, 陈彬. 沙尘和生物气溶胶的环境和气候效应[J]. 大气科学, 2018, **42**(3): 559-569.
Shi G Y, Tan S C, Chen B. Environmental and climatic effects of mineral dust and bioaerosol [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 2018, **42**(3): 559-569.

[51] Turpin B J, Huntzicker J J. Identification of secondary organic aerosol episodes and quantitation of primary and secondary organic aerosol concentrations during SCAQS[J]. Atmospheric Environment, 1995, **29**(23): 3527-3544.

[52] Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, *et al*. Measurement of emissions from air pollution sources. 5. C_1-C_{32} organic compounds from gasoline-powered motor vehicles [J]. Environmental Science & Technology, 2002, **36**(9): 1169-1180.

[53] 黄柯, 刘刚, 周丽敏, 等. 森林生物质燃烧烟尘中的有机碳和元素碳[J]. 环境科学, 2015, **36**(6): 1998-2004.
Huang K, Liu G, Zhou L M, *et al*. Organic carbon and elemental carbon in forest biomass burning smoke [J]. Environmental Science, 2015, **36**(6): 1998-2004.

[54] Chen Y J, Zhi G R, Feng Y L, *et al*. Measurements of emission factors for primary carbonaceous particles from residential raw-coal combustion in China[J]. Geophysical Research Letters, 2006, **33**(20): L20815.

[55] Castro L M, Pio C A, Harrison R M, *et al*. Carbonaceous aerosol in urban and rural European atmospheres: estimation of secondary organic carbon concentrations[J]. Atmospheric Environment, 1999, **33**(17): 2771-2781.

[56] 秦娟娟, 杨艳蓉, 周雪明, 等. 佛山市大气细粒子碳质组分时空分布特征及其影响因素[J]. 生态环境学报, 2018, **27**(11): 2081-2087.
Qin J J, Yang Y R, Zhou X M, *et al*. Spatial and temporal distribution and influence factors of carbonaceous species of fine particles in Foshan City [J]. Ecology and Environmental Sciences, 2018, **27**(11): 2081-2087.

HUANJING KEXUE Vol. 41 No. 9
Environmental Science (monthly) Sep. 15, 2020

CONTENTS