とう知库 Eco-Environmental Knowledge Web



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.11 第41卷 第11期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第41卷 第11期 2020年11月15日

目 次

中国工业源挥发性有机物排放清单
环境空气 PM _{2.5} 化学组分监测数据审核指标的建立:以长三角地区为例
张哲,乔利平,周敏,朱书慧,郭会琴,王红丽,楼展荣,陶士康,陈长虹(4786) 南京江北新区大气颗粒物化学组分的粒径分布特征 张毓秀,于兴娜,刘偲嘉,安俊琳,张程(4803) 郑州市 PM2.5 化学组分的季节变化特征及来源解析 张剑飞,姜楠,段时光,孙有昌,郝祺,张瑞芹(4813) 山西大学城 PM2.5 中元素特征、来源及健康风险评估 李雪梅,牟玲,田妹,郑利荣,李杨勇(4825) 2000~2019 年中国 PM2.5 时空演化特征 夏晓圣,汪军红,宋伟东,程先富(4832) 北京地区偏南风和偏东风条件下污染特征差异 尹晓梅,乔林,朱晓婉,郭恒,刘湘雪,熊亚军(4844) 基于天气背景天津大气污染输送特征分析 蔡子颖,杨旭,韩素芹,姚青,刘敬乐(4855)
南京江北新区大气颗粒物化学组分的粒径分布特征
郑州市 PM2.5 化学组分的季节变化特征及来源解析 张剑飞,姜楠,段时光,孙有昌,郝祺,张瑞芹(4813) 山西大学城 PM2.5 中元素特征、来源及健康风险评估 李雪梅,牟玲,田妹,郑利荣,李杨勇(4825) 2000~2019 年中国 PM2.5 时空演化特征 夏晓圣,汪军红,宋伟东,程先富(4832) 北京地区偏南风和偏东风条件下污染特征差异 尹晓梅,乔林,朱晓婉,郭恒,刘湘雪,熊亚军(4844) 基于天气背景天津大气污染输送特征分析 蔡子颖,杨旭,韩素芹,姚青,刘敬乐(4855)
山西大学城 PM _{2.5} 中元素特征、来源及健康风险评估 李雪梅, 牟玲, 田妹, 郑利荣, 李杨勇(4825 2000~2019 年中国 PM _{2.5} 时空演化特征 夏晓圣, 汪军红, 宋伟东, 程先富(4832 北京地区偏南风和偏东风条件下污染特征差异 尹晓梅, 乔林, 朱晓婉, 郭恒, 刘湘雪, 熊亚军(4844 基于天气背景天津大气污染输送特征分析 蔡子颖, 杨旭, 韩素芹, 姚青, 刘敬乐(4855
2000~2019 年中国 PM _{2.5} 时空演化特征
北京地区偏南风和偏东风条件下污染特征差异 ·················· 尹晓梅,乔林,朱晓婉,郭恒,刘湘雪,熊亚军(4844 基于天气背景天津大气污染输送特征分析 ····································
基于天气背景天津大气污染输送特征分析 蔡子颖,杨旭,韩素芹,姚青,刘敬乐(4855
基于环境空气中 VOCs 在线监测数据精准识别化工园区 VOCs 排放源 孙佳宁, 谢绍东(4874
芜湖市大气挥发性有机物污染特征、大气反应活性及源解析高亢,章慧,刘梦迪,赵晓宇,吴婷,贾其娜(4885
密云水库上游白河地表水质对不同空间尺度景观格局特征的响应 张微微,李晓娜,王超,赵春桥,史瑞双(4895
北京密云水库流域水体夏季 DOC 和 DIC 质量浓度及同位素组成初探
2009~2018 年太湖湖泛强度变化及其影响因素
雷州半岛岭北地区地下水水文地球化学特征
基于多环境介质氮素和同位素的滦平盆地地下水硝酸盐来源示踪 孙厚云,卫晓锋,贾凤超,李多杰,李健,李霞,殷志强(4936
会仙岩溶湿地水体金属元素分布与健康风险评价 李军, 邹胜章, 梁永平, 林永生, 周长松, 赵一(4948
太白山自然保护区水体 CDOM 吸收与三维荧光特征 ····································
强降雨对平原河网区人湖河道氮、磷影响 连心桥,朱广伟,杨文斌,朱梦圆,许海(4970
长江流域淡水生态系统内分泌干扰物、药物和个人护理品的风险排序
嘉兴市城市河网区多环芳烃污染源解析及生态风险评价 杨延梅,赵航晨,孟睿,何连生,赵昊,杜士林,丁婷婷(4989
污水处理厂对漓江桂林市区河段淡水生物中微塑料累积的影响
村镇生活污水处理设施抗生素浓度分布规律 卢亚楠, 郭雅妮, 王坤, 陆伟东, 王拓, 柴玉峰, 柳蒙蒙, 钟慧, 陈梅雪, 魏源送(5008
冬季小流域水体微生物多样性及影响因素 朱金山,秦海兰,孙启耀,王宝珍,高润霞,郭锐利,李武斌(5016
水库热分层期沉积物中有机物特性及对好氧反硝化细菌脱氮的影响 王彤,文刚,黄廷林,司凡,王晨旭,路林超,林薇(5027
长三角地区 MBBR 泥膜复合污水厂低温季节微生物多样性分析 ······ 韩文杰, 吴迪, 周家中, 何强, 阚渝姣(5037
类群划分方法对南亚热带水库夏季浮游植物群落与环境响应关系的影响 郭芳, 顾继光, 赵剑, 余华章, 肖利娟(5050
基于决策树的城市黑臭水体遥感分级 李玲玲,李云梅,吕恒,徐杰,杨子谦,毕顺,许佳峰(5060
纳米零价铁强化微生物电催化-厌氧膜生物组合反应器抗膜污染能力及其调控机制
温度和基质浓度对厌氧氨氧化工艺中N2O释放的影响 ····································
以污泥发酵液与尾水混合液为补给碳源的 A ² /O 污染物去除特性 ························ 荣懿,邵劲博,于优城,石炬,金鹏康(5089
不同停曝比对连续流亚硝化颗粒污泥运行的影响 ····································
中温厌氧消化与高温厌氧消化对污泥重金属风险及稳定性的影响 田中科,王芬,闫钊(5106
基于 PMF 模型及地统计的土壤重金属健康风险定量评价 ······ 韩琳,徐夕博(5114
再开发利用工业场地土壤重金属含量分布及生态风险
有机改性蒙脱土对萘的吸附机制和影响因子 侯静雯, 施维林, 高娟(5133
硫酸亚铁和硝酸铁施用对根际土壤-水稻系统中镉运移的影响 … 李义纯,陈勇,唐明灯,李林峰,林晓扬,王艳红,许迪豪,艾绍英(5143
叶用油菜和孔雀草间作对植物生长和镉累积的影响 闫秀秀,徐应明,王林,陶雪莹,孙约兵,梁学峰(5151
重金属固定细菌调控土壤铁氧化物阻控小麦 Cd 吸收效应 ····································
油-稻轮作模式下修复材料对土壤铜修复的持续性影响 赵颖颖,李虹川,胡宏祥,薛中俊,刘娜,吴孟君(5168
氮肥使用对北方夏玉米季氨挥发的影响 ····································
生物质炭影响下土壤呼吸温度敏感性及细菌群落结构的变化 曹坤坤,张沙沙,胡学玉,黄洋(5185
铜尾矿白羊草重金属含量对叶际和根际真菌群落的影响 贾形,郭婷艳,王瑞宏,柴宝峰(5193
典型水环境微生物源异嗅物研究进展 张海涵,苗雨甜,黄廷林,刘凯文,刘祥,黄鑫,杨尚业,司凡,李程遥(5201
广告:国家微生物科学数据中心 ···············(前插
《环境科学》征订启事(4785) 《环境科学》征稿简则(4947) 信息(5015,5124,5132)



郑州市 PM2.5 化学组分的季节变化特征及来源解析

张剑飞^{1,2},姜楠^{2,3*},段时光²,孙有昌^{1,2},郝祺^{1,2},张瑞芹^{2,3}

(1.郑州大学化学学院,郑州 450001; 2.郑州大学环境科学研究院,郑州 450001; 3.郑州大学生态与环境学院,郑州 450001)

摘要:为了解析郑州市 $PM_{2.5}$ 的污染特征和来源,同时为了研究不同季节以及市区和市郊之间的差异,本研究于 2018 年 四季在郑州市环境保护监测中心站(市区)和郑州大学(市郊)点位共计采集环境 $PM_{2.5}$ 有效样品1 284个. 通过离子色谱仪、碳分析仪和 X 射线荧光光谱仪分别测试得到 9 种无机水溶性离子、两种碳组分和 27 种元素浓度,分析了郑州市城郊 $PM_{2.5}$ 中化学组分的季节变化特征,使用富集因子法、地累积指数法、化学质量平衡模型、后向轨迹法和潜在源贡献因子法,研究了郑州市城郊不同季节 $PM_{2.5}$ 的来源差异. 结果表明,市区和市郊点位年平均 $PM_{2.5}$ 浓度达到(59.7 ± 24.0) μ g·m⁻³和(74.7 ± 13.5) μ g·m⁻³,郊区点位(除冬季外)季节平均浓度均高于市区点位,季节均值呈现冬季 > 秋季 > 春季 > 夏季的变化. 市郊春季受地壳物质的影响较大,夏秋两季全部组分浓度均高于市区;冬季市区受燃煤源和机动车源影响更大. Cu、As、Zn、Pb 和 Sb 受到人为源的影响强烈,市区富集程度更大,Zn、Cu、As 和 Pb 存在一定的潜在生态风险. 源解析结果显示,两点位春夏秋冬四季均分别受到扬尘源、二次硫酸盐、二次硝酸盐和燃煤源的较大影响,此外,市区四季受二次污染源和机动车源的影响较大,而市郊秋冬季受生物质源影响较大。来自山东的气团、西北方向的气团(除夏季外)、南方气团(除冬季外)对郑州市 $PM_{2.5}$ 的污染水平影响较大,其潜在来源区域主要为省内及与邻省的交界处.

关键词:郑州市; PM_{2.5}; 季节变化; 城郊差异; 化学质量平衡(CMB); 来源解析 中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)11-4813-12 **DOI**: 10.13227/j. hjkx. 202004099

Seasonal Chemical Composition Characteristics and Source Apportionment of PM_{2.5} in Zhengzhou

ZHANG Jian-fei^{1,2}, JIANG Nan^{2,3}*, DUAN Shi-guang², SUN You-chang^{1,2}, HAO Qi^{1,2}, ZHANG Rui-qin^{2,3} (1. College of Chemistry, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 2. Research Institute of Environmental Science, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 3. School of Ecology and Environment, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: The aim of this study was to fully understand the pollution characteristics and sources of PM2.5 in Zhengzhou, and to investigate the differences in four seasons and between urban and suburban areas. At the Zhengzhou environmental monitoring center (urban areas) and Zhengzhou University (suburban areas), 1284 environmental PM2.5 samples were collected in the four seasons of 2018. The concentrations of nine kinds of inorganic water-soluble ions, organic carbon, elemental carbon and 27 kinds of elements, were measured by ion chromatography, carbon analyzer, and X-ray fluorescence spectrometry, respectively. Enrichment factors (EF), index of geoaccumulation (I_{sep}) , potential ecological risk index (RI), chemical mass balance model (CMB), backward trajectory, and potential source contribution function were the methods used to study the chemical component characteristics and source differences of PM, 5 in different seasons in the urban and suburban areas of Zhengzhou. The results showed that the annual average PM, 5 concentration at the Zhengzhou environmental monitoring center and Zhengzhou University sites reached (59. 7 ± 24. 0) μg·m⁻³ and (74.7 ± 13.5) µg·m⁻³, respectively. The PM_{2.5} concentration at the suburban point was higher than at the urban point with the exception of winter, and the seasonal mean concentration decreased in the order of winter > autumn > spring > summer. Compared with the urban areas, the suburban areas were more affected by crustal substances in spring, and the concentrations of all components were higher in summer and autumn than the urban areas. Nevertheless, urban areas were more affected by coal burning sources and motor vehicle sources in winter. The component analysis results showed that the influences of soil dust and building dust were greater in the suburbs in spring than in the urban areas. In autumn, the suburbs were more affected by biomass sources than the urban areas, while the urban areas were more affected by building dust than were the suburbs. The concentrations of Cu, As, Zn, Pb, and Sb were strongly influenced by anthropogenic sources, and the enrichments of Zn, Cu, As, and Pb in urban areas were greater than in the suburbs. In addition, Zn, Cu, As, and Pb exhibited potential ecological risks. The outcomes of the CMB model showed that dust sources, secondary sulfate, secondary nitrate, and coal burning sources contributed significantly to PM25 concentrations in spring, summer, autumn and winter, respectively. The contributions of secondary pollution sources (secondary organic aerosol, secondary sulfate, and secondary nitrate) and motor vehicle sources to urban areas were higher than to suburban areas, and the influences of biomass sources in autumn and winter were significantly higher than in spring and summer and urban areas. The backward trajectory

收稿日期: 2020-04-11; 修订日期: 2020-05-20

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0212400); 国家自然科学基金项目(51808510); 京津冀及周边"2+26"城市来源解析研究项目 (DOGG0107-26)

作者简介: 张剑飞(1995 ~) , 男 , 硕士研究生 , 主要研究方向为大气环境化学 , E-mail ; zhangjianfeiZT@ 163. com

^{*} 通信作者,E-mail:jiangn@zzu.edu.cn

results indicated that the local $PM_{2.5}$ concentration was affected by distant transmission from the northwest except in summer, was affected by neighboring provinces in the east in four seasons, and was affected by transmission from the south, with the exception of winter. Furthermore, the consequences of potential sources demonstrated that the local $PM_{2.5}$ concentration was mainly affected by the potential areas in Henan province and its boundary with neighboring provinces.

Key words: Zhengzhou City; PM_{2.5}; seasonal variation; differences between urban and suburban areas; chemical mass balance model (CMB); source apportionment

近年来,霾已经成为我国城镇化和工业化过程中重要的空气污染问题之一. PM_{2.5}是霾形成的重要原因^[1],由于其粒径小,更易进入人体肺部,同时其比表面积大,更易吸附有害物质,此外较高的 PM_{2.5}浓度有利于增加空气中真菌和细菌的浓度^[2],因此对人体健康可能产生较大影响^[3]. 这些影响都与PM_{2.5}复杂的构成密切相关^[4]. PM_{2.5}主要由无机水溶性离子、碳组分和元素构成,其通过改变气溶胶的吸湿性,从而改变气溶胶的光学特性,破坏地球辐射平衡^[5];还能够增强气溶胶对光的散射和吸收,从而降低大气能见度^[6];另外重金属可能对人体健康产生较大的危害^[7,8].

国内外很多学者对霾的主要化学成分进行了较 为详细的讨论,如 Saxena 等[9]的研究发现印度 Dellni 地区 2013~2014 年冬季水溶性离子浓度明显 高于其他季节, 平均浓度达 (74.41 ± 47.55) μg·m⁻³; Custódio 等^[10]的研究表明 2013 年 1 月 ~ 2014年1月葡萄牙 Oporto 样品中碳质组分占 PM2.5 质量的 56%, 秋冬季浓度明显高于春季; Bhuyan 等[11]分析了2010~2014年雅鲁藏布江河谷地区气 溶胶及其组分特征,发现其浓度在冬季最高,雨季最 低,水溶性离子和碳组分总质量占 PM₁₀质量的 34%; Xu 等[12]的研究发现北京二次无机物种占比 从 2014 年冬季的 37% 增长到 2016 年冬季的 47%, 其中硝酸盐(从 12%~20%)增长最为明显; Yu 等[13]对 2015 年 5 月 ~ 2016 年 4 月北京水溶性有机 碳、有机碳和元素碳的研究表明, 秋季和冬季平均浓 度高于春夏季,冬季尤为明显; Wu 等[14] 通过调研 发现我国有机气溶胶浓度整体上表现为北方远高于 南方,冬季最高而夏季最低. 这些研究对理解霾或 PM_{2.5}中主要化学成分的季节变化、地区差异及受气 候的影响非常有意义.

受体模型是常用的源解析方法^[15],如化学质量平衡模型(chemical mass balance model, CMB)和正定矩阵因子分解模型(positive matrix factorization, PMF)等,之前已经有学者对这些模型的原理及应用进行了详细的讨论^[16,17]. 国内外很多地区都利用CMB模型做了比较详细的源解析工作,如 Ryou等^[18]通过调研韩国 2000~2017 年间使用 PMF 和CMB 得到的源解析结果发现,机动车源和二次气溶

胶是韩国最常见和最具影响的来源; Islam 等[19]的 研究发现垃圾焚烧(18%±5%)、生物质燃烧(17% ±10%)及汽油和柴油发动机(18%±9%)是2015 年尼泊尔 Kathmandu 地区有机碳的主要来源; Wu 等[14]通过调研发现我国北方工业地区、珠江三角洲 和华东地区有机气溶胶浓度受工业排放和机动车尾 气的影响较大,而其他地区冬季和夏季分别受居民 燃煤和机动车尾气的影响较大; 王彤等[20]的研究 发现二次颗粒物(36%~48%)、交通(8%~26%)、 民用燃煤(8%~16%)和生物质燃烧(5%~16%)是 2014~2015 年秋冬季京津冀郊区 PM25的主要贡献 源; Zhang 等[21]的研究发现 2016 年二次硫酸盐 (17%)、二次硝酸盐(17%)和二次有机碳(13%)对 莱芜市 PM, 家 度的贡献接近一半; Shen 等[22]的研 究发现二次气溶胶贡献了台湾南部 2016 年两次重 污染过程中 PM,5浓度的 38.3%. 这些研究对深刻 理解 PM25的来源及其地区和季节间的差异非常有 帮助,有助于判断源解析结果的准确性.

郑州市作为我国中部地区重要的交通枢纽,有 望成为新兴特大城市,文献[23]显示,2017年常驻 人口达到988.1万人,城镇化率为72.2%,机动车保 有量为 312.9 万辆(不包括摩托车). 2017 年郑州 市在74城市空气质量排名[24] 倒数第9,2018年 169 城市排名[25] 倒数第 18, 2018 年 PM, 5和臭氧为 首要污染物的占比分别达到30%和40%.有学者研 究了郑州市 PM,5的污染特征,如陈纯等[26]的研究 针对郑州市采暖季和非采暖季 PM,5的质量特征以 及 PM_{2.5}中元素和水溶性离子的特征进行了较为全 面的分析,并使用主成分分析法对 PM25的主要来源 进行解析. 段时光等[27]的研究使用混合型单粒子拉 格朗日综合轨迹(hybrid single particle lagrangian integrated trajectory, HYSPLIT) 方法模拟了郑州市冬 季的后向轨迹,并进行了聚类分析,使用潜在源贡献 因子法(potential source contribution function, PSCF) 和浓度权重轨迹(concentration weighted trajectory, CWT)方法分析了潜在污染源及其对郑州市 PM,5 浓度的贡献. 这些研究对了解郑州市 PM2.5污染问题 具有一定的意义,但仍缺乏针对郑州市不同季节市 区和市郊 PM25 污染的变化特征及来源差异的研究, 此外随着经济的不断发展以及环境防治工作的不断

进行,郑州市 PM_{2.5} 的污染特征和来源已经变化. 因此为了进一步探究郑州市大气 PM_{2.5} 污染的季节变化特征,以及不同季节市区和市郊化学组分及来源的差异,本研究使用郑州市 2018 年四季离线受体数据,分析了市区和市郊点位 PM_{2.5}不同季节的组分变化特征,使用 CMB 模型对市区和市郊不同季节进行来源解析,并使用 HYSPLIT 方法分析了四季 PM_{2.5} 的传输路径和潜在贡献源,以期为郑州市精准治霾和科学治霾提供依据.

1 材料与方法

1.1 数据来源及分析测试

本研究使用郑州市环境保护监测中心站 (34°46′N, 113°42′E, 市区, 监测站) 和郑州大学 (34°48′N, 113°32′E, 市郊) 点位 2018 年 4、7、10、 11、12 和 2019 年 1 月离线样品数据共计1 428个, 每天采集4个样品,包含两个石英膜和两个特氟龙 膜,整组去除停电、仪器故障等引起的缺失数据以及 不满足阴阳离子平衡等[28]统计要求的异常数据,得 到有效样品1284个. 水溶性无机离子分析测试使用 美国戴安公司的 ICS-900 型(阴离子)离子色谱仪和 ICS-90 型(阳离子)离子色谱仪^[29]. 碳组分分析测 试使用美国 Sunset Lab Inc Model 的碳分析仪[30]. 无 机元素组分分析测试使用德国布鲁克公司生产的 S8 TIGER 型波长散射 X 射线荧光光谱仪[31]. 质量 控制和保证详见本实验室之前的研究[32,33]. 后向轨 迹分析中使用来自美国国家环境预报中心(National Centers for Environmental Prediction, NCEP) 全球数 据同化系统(global data assimilation system, GDAS) 的气象场数据(https://ready. arl. noaa. gov/ HYSPLIT. php).

1.2 研究方法

质量重构是将 $PM_{2.5}$ 中的众多组分进行分类重组,可以较好地反映不同样品间组分的差异. 根据文献报道,重构结果中有机物用 OC 的 1. 4 倍估算[34]; 地壳物质 = 1. 89 × [Al] + 2. 14 × [Si] + 1. 4 × [Ca] + 1. 43 × [Fe]; 微量元素为 F、Cr、Mn、Co、Na、Mg、P、K、Ti、V、Ni、Cu、Zn、Ga、As、Se、Sr、Cd、Sn、Sb、Ba 和 Pb 浓度之和. 本研究中二次有机碳(secondary organic carbon,SOC)使用 OC/EC 最小比值法估算[35].

CMB 模型是一种发展较为成熟的受体模型,该模型假设在受体点位所测得污染物的量是各类污染源对其贡献量的线性加和,通过测量采样点受体中各种物质的浓度来确定各污染源的贡献.模型需要输入环境观测数据、源谱及不确定度,结果需要同时

满足 χ^2 < 2、 R^2 > 0.8、80% < mass% < 120%及 T-statistic > 2,关于该模型的详情参见 CMB8. 2 使用手册 (https://www.epa.gov/scram/chemical-mass-balance-cmb-model).

富集因子法(enrichment factors, EF)是将样品 中元素的含量与对应元素在土壤中背景值的比值作 为该元素的富集程度的方法,该方法常被用来判断 人为源对元素富集程度的影响[36],该方法中使用的 元素背景值来自文献[37]. 地累积指数法(index of geoaccumulation, I_{sso})可以被用来定量评价 PM, 5中 元素的污染水平,其可按 Müllar 分级标准从无污染 到极强污染分为7个等级[38].潜在生态风险指数法 (potential ecological risk index, RI)是潜在生态风险 单项指数 (E_i) 的加和,该方法可以用来评价大气环 境样品中单一污染物或多种污染物对生态系统的潜 在风险, E, 以 < 40、40~80、80~160、160~320和 >320 为限值可分为轻微、中、较强、强和极强这 5 个等级,RI以<150、150~300、300~600和>600 为限值可分为轻微、中、强和极强这4个等级[39] EF_{i} 、 I_{eo} 和 E_{i} 的计算公式及分级标准详见徐静等[38] 的研究.

本研究将郑州大学(34°48′N,113°32′E)点位设为起始点,高度设置为500 m,每天以00:00、06:00、12:00 和18:00 作为模拟起始时间,轨迹时长为24 h,使用 TrajStat 进行轨迹聚类 [40]. 将轨迹覆盖区域进行网格化,网格大小为0.5°×0.5°,将通过 HYSPLIT 模型得到的轨迹与 $PM_{2.5}$ 浓度相对应,计算网格内超过一定阈值的轨迹数与网格内轨迹总数的比值,即 PSCF 值,本研究使用的阈值为《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)中的二级日均标准限值75 μ g·m⁻³,通过加权计算后得到 WPSCF 值,PSCF 和 WPSCF 的计算参考段时光等 [27]的研究.

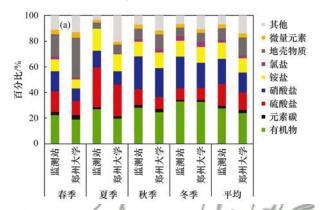
2 结果与讨论

2.1 PM, 家度分布及重构特征

图 1 为两个点位大气 $PM_{2.5}$ 四季的平均重构结果. 监测站和郑州大学点位年平均 $PM_{2.5}$ 浓度分别为 (59.7 ± 24.0) μ g·m⁻³和(74.7 ± 13.5) μ g·m⁻³,分 别是《环境空气质量标准》 $PM_{2.5}$ 年均二级标准限值 (35 μ g·m⁻³)的 1.71 和 2.13 倍. $PM_{2.5}$ 浓度具有较为明显的季节变化规律,由高到低依次为冬、秋、春和夏季,监测站和郑州大学点位与这 4 个季节对应的季节平均浓度分别为 92.7、60.6、48.9、36.8 μ g·m⁻³和 86.9、79.4、76.9、55.6 μ g·m⁻³.

由图 1(a) 中各组分占比可知, 季节变化表现 为春季地壳物质占比较高而铵盐占比较低; 夏季 硫酸盐占比较高; 秋冬季硝酸盐占比较高,此外冬季有机物占比也较高. 与市区相比,四季市郊有机物、硫酸盐(冬季除外,与冬季市郊 PM_{2.5}浓度低于市区有关)和硝酸盐的占比较低,而元素碳、地壳物质和氯盐(春季除外)与春季市郊 PM_{2.5}浓度较高有关.

由图 1(b) 中各组分重构浓度对比可知,两点位组分浓度季节特征较为一致,春季地壳物质浓度较高而铵盐浓度较低;夏季硫酸盐浓度较高,而氯盐和地壳物质浓度较低,分别与夏季高温及降雨增多



有关; 秋冬季有机物和硝酸盐浓度均明显升高,此外冬季铵盐和氯盐浓度也较高. 与市区相比,春季市郊(除硫酸盐、硝酸盐和铵盐外)组分浓度均高于市区,表明市区春季受二次无机污染物的影响更大;夏秋两季所有组分均高于市区;冬季除元素碳和地壳物质外均低于市区,但这些组分(除硝酸盐外)浓度在两个点位的差异不大且均高于秋季,表明冬季两点位受到燃煤源和机动车源的影响增大,而市区硝酸盐浓度(25.5 μg·m⁻³)明显高于市郊(18.2 μg·m⁻³),表明市区受到机动车源的影响更大.

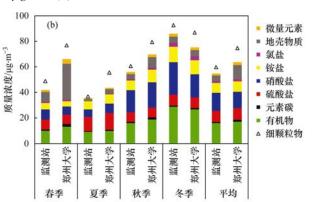


图 1 监测站和郑州大学点位四季的平均重构特征

Fig. 1 Average reconstruction characteristics of four seasons at the sites of Zhengzhou environmental monitoring center and Zhengzhou University

2.2 组分特征

表 1 为监测站和郑州大学点位 $PM_{2.5}$ 中水溶性 离子的季节特征. 市郊点位春季 Ca^{2+} 平均浓度 $(2.9~\mu g \cdot m^{-3})$ 是市区 $(1.1~\mu g \cdot m^{-3})$ 的 2.6 倍,表明市郊可能受到土壤扬尘和建筑扬尘的影响较大 $[^{41}]$. 两点位夏季 SO_4^{2-} 平均浓度在四季中均最高,可能是由于夏季温度较高,促进了光化学反应,从而导致二次硫酸盐的大量生成 $[^{41}]$,而夏季 NO_3^- 浓度没有明显升高可能与其热稳定性差有关 $[^{42}]$,夏季市郊 SO_4^{2-} 浓度高于市区,表明市郊光

化学反应更强,二次硫酸盐生成更多. 秋季两点位 NO_3^- 平均浓度均明显升高且市郊高于市区,表明市郊秋季二次硝酸盐生成更高,市郊 K^+ 和 $C1^-$ 浓度高于市区,表明秋季市郊受生物质燃烧源 $^{[43]}$ 的影响大于市区; 秋季市区 Mg^{2+} 和 Ca^{2+} 浓度大于市郊,而 Mg^{2+} 和 Ca^{2+} 是建筑扬尘源的标识物 $^{[44]}$,因此市区可能受到建筑扬尘源的影响较大. 冬季市区 NO_3^- 平均浓度高于市郊,而机动车排放的大量 NO_2 是二次硝酸盐的重要前体物,因此市区可能受到机动车源的影响更大.

表 1 监测站和郑州大学点位 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子特征/ $\mu g \cdot m^{-3}$

Table 1 Water-soluble ions characteristics of PM_{2.5} at the sites of Zhengzhou environmental monitoring center and Zhengzhou University/µg·m⁻³

点位	季节	Na +	$\mathrm{NH_4}^+$	K *	Mg^{2+}	Ca ^{2 +}	F -	Cl -	NO_3^-	SO ₄ -
监测站	春季	0. 2 ± 0. 1	5. 1 ± 4. 2	0.4 ± 0.2	0. 1 ± 0. 1	1.1 ± 0.8	0. 1 ± 0. 1	0.9 ± 0.6	8.0 ± 6.7	7. 8 ± 4. 6
	夏季	0.1 ± 0.1	6.4 ± 2.6	0.3 ± 0.1	0.0 ± 0.0	0.5 ± 0.3	0.1 ± 0.2	0.1 ± 0.1	5.7 ± 5.9	11.3 ± 5.0
	秋季	0.2 ± 0.1	7.5 ± 5.0	0.0 ± 0.1	0.3 ± 1.5	2.5 ± 1.6	0.1 ± 0.1	1.0 ± 0.7	17. $4 \pm 12. 4$	7.3 ± 3.7
	冬季	0.3 ± 0.2	12. 0 ± 8.0	1.0 ± 0.7	0.0 ± 0.0	0.5 ± 0.5	0.2 ± 0.1	3.3 ± 2.1	25.5 ± 18.9	8.6 ± 7.2
	全年	0.2 ± 0.1	7.8 ± 3.0	0.4 ± 0.4	0.1 ± 0.1	1.2 ± 0.9	0.1 ± 0.1	1.3 ± 1.4	14.2 ± 9.1	8.8 ± 1.8
郑州大学	春季	0.3 ± 0.4	4.2 ± 3.1	0.5 ± 0.2	0.2 ± 0.2	2.9 ± 2.5	0.2 ± 0.2	1.0 ± 0.6	6.3 ± 3.9	7.2 ± 3.7
	夏季	0.2 ± 0.1	7.3 ± 3.3	0.3 ± 0.1	0.1 ± 0.1	0.7 ± 1.2	0.0 ± 0.0	0.4 ± 0.5	7.2 ± 8.2	13. 2 ± 5.4
	秋季	0.3 ± 0.2	9.8 ± 5.9	0.8 ± 0.4	0.1 ± 0.1	1.1 ± 1.1	0.2 ± 0.1	1.7 ± 1.2	19. 8 ± 14.6	7.8 ± 5.3
	冬季	0.3 ± 0.2	10.9 ± 6.0	1. 1 ± 0.7	0.1 ± 0.1	0.6 ± 0.5	0.1 ± 0.1	3.1 ± 1.5	18.2 ± 11.2	8.4 ± 6.1
	全年	0.3 ± 0.0	8.1 ± 3.0	0.7 ± 0.4	0.1 ± 0.1	1.3 ± 1.1	0.1 ± 0.1	1.6 ± 1.2	12.9 ± 7.1	9. 2 ± 2. 7

图 2 为无机离子的电荷关系,图 2(a1)中数据点分布在 1:1线附近,呈现低浓度集中,高浓度逐

渐发散的趋势,表明市区高浓度时受到未检测离子(如有机水溶性离子)的影响增大.图 2(b1)中

数据点大部分位于 1:1线上方,表明市郊受到有机水溶性阴离子(如草酸根)的影响.图 2(a2)和图 2(b2)中较高浓度时 $[NH_4^+]/[SO_4^{2-}]$ 基本都大于 1,说明 SO_4^{2-} 可以被 NH_4^+ 完全中和, SO_4^{2-} 的存在形式为 NH_4HSO_4 和 $(NH_4)_2SO_4$,而较低浓度时

 SO_4^{2-} 还有其他存在形式. 图 2(a3) 和图 2(b3) 中较低浓度时[NH_4^+]/[$SO_4^{2-} + NO_3^-$]存在小于 1 的情况,表明大气中 NH_4^+ 浓度较低时不足以中和所有的 NO_3^- ,说明大气中 NO_3^- 除了 NH_4NO_3 还有其他的存在形式.

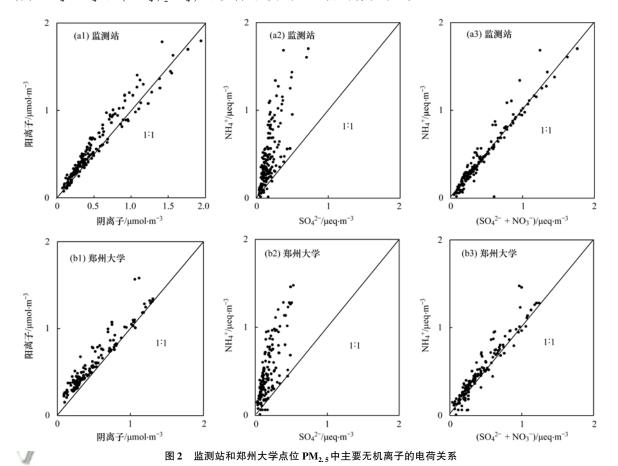


Fig. 2 Relationship of charges between major inorganic ions in PM_{2.5} at the sites of Zhengzhou environmental monitoring center and Zhengzhou University

表2展示了两个点位不同季节 PM_{2.5}中 OC、EC 和 SOC 浓度及 OC/EC、SOC/OC 和 OC/PM_{2.5} 比值 特征. 两个点位 OC 和 EC 浓度表现出相同的季节变 化特征,其中 OC 浓度表现为冬季 > 秋季 > 春季 > 夏季,EC 浓度表现为春季 > 秋季 > 冬季 > 夏季. 秋冬季 OC/EC > 2 且明显高于其他季节,表明秋冬季 SOC 的生成比较显著^[45]. OC 和 EC 的比值有助于

判断 $PM_{2.5}$ 中碳质组分的主要来源,比值在 $1.0 \sim 4.2$ 表示柴油车和汽油车的尾气排放是碳质组分的主要来源 $[^{46,47}]$; $2.5 \sim 10.5$ 表示主要来自燃煤排放 $[^{48}]$; $16.8 \sim 40.0$ 表示主要来自生物质燃烧排放 $[^{49}]$; $32.9 \sim 81.6$ 表示主要来自餐饮油烟 $[^{50}]$. 生物质燃烧和燃煤源排放的污染物具有较高的 OC/EC,说明秋冬季受到生物质燃烧源和燃煤源的影响

表 2 监测站和郑州大学点位 PM_{2.5} 中碳组分特征

Table 2 G	arbon componen	t characteristics of 1	m _{2.5} at the sites of	Zilengzilou environi	nentar monitoring t	cinci and zincingzin	ou emversity
点位	季节	OC/μg·m ⁻³	EC/μg·m ⁻³	SOC/μg⋅m ⁻³	OC/EC	SOC/OC	OC/PM _{2.5}
	春季	7. 1 ± 2. 6	1. 1 ± 0. 6	4.2 ± 2.0	7.2 ± 2.2	0.6 ± 0.2	0. 2 ± 0. 1
	夏季	6.4 ± 1.8	0.6 ± 0.2	2.9 ± 1.3	11.9 ± 2.4	0.4 ± 0.1	0.2 ± 0.1
监测站	秋季	11.4 ± 4.3	1.0 ± 0.5	6.6 ± 3.3	12. 0 ± 3.8	0.6 ± 0.2	0.2 ± 0.0
	冬季	20.5 ± 10.1	0.9 ± 0.5	12. 4 ± 7.8	23. $8 \pm 9. 2$	0.6 ± 0.2	0.2 ± 0.0
	全年	11.4 ± 6.5	0.9 ± 0.2	6.5 ± 4.2	13. 7 ± 7.1	0.5 ± 0.1	0.2 ± 0.0
	春季	9. 3 ± 2. 9	2. 3 ± 1. 0	2. 1 ± 1. 1	4. 3 ± 0. 9	0. 3 ± 0. 1	0. 1 ± 0. 1
	夏季	7.0 ± 2.1	1.0 ± 0.4	3.0 ± 1.8	7.4 ± 2.5	0.4 ± 0.2	0. 1 ± 0.1
郑州大学	秋季	13.4 ± 5.9	1.6 ± 0.5	7.9 ± 5.6	8.4 ± 3.4	0.5 ± 0.2	0.2 ± 0.0
	冬季	19. 0 ± 7.3	1.1 ± 0.4	8.7 ± 5.5	17. 3 ± 4.5	0.4 ± 0.2	0.2 ± 0.1
	全年	12 2 + 5 3	1 5 + 0 6	54 + 34	9 4 + 5 6	0.4 ± 0.1	0.2 ± 0.0

较大. 监测站和郑州大学点位 OC/EC 比值范围分别为 2.6~49.0 和 3.1~27.5, 表明郊区和市区点位均受到柴油车和汽油车、燃煤源和生物质燃烧排放的影响,此外市区点位受到餐饮油烟源的影响更大. SOC 主要来自大气中 VOCs 的二次转换^[6], 其浓度在冬季最高, 其次是秋季、夏季和春季, 可能是由于冬季前体物的大量排放导致二次反应的加剧; 另外冬季大气混合层高度降低, 易形成逆温, 静稳天气较多, 导致污染物的快速积累^[51]. 监测站点位的 SOC浓度高于郑州大学点位,且 SOC/OC 较高,说明市区点位受到 SOC 二次生成的影响较大,这可能与市区车流量密度大且车速慢从而排放更多污染物有关.

图 3 (a) 汇总了两个点位不同季节 PM_{2.5} 中 19 种元素的富集因子(EF值). 可以发现,Si、Ti、Mg、Na、Sr、Fe 和 Ca 的富集因子在两个点位的四季中均小于 10,表明这些元素主要来自土壤或岩石的风化等自然源^[52]. V、Cr、Mn、Ni、Cu、As、Zn、Pb 和 Sb 的 EF 值绝大部分都大于 10,表明这些元素受到人为源的影响较大^[53],其中 Cu、As、Zn、Pb 和 Sb 的 EF 值在夏秋冬三季均大于 100,表明这些元素受到人为源的强烈影响. 如 Zn、Cu 和 Mn 是工艺过程

源的示踪物,Ni 是机动车源的示踪物,As 是燃煤源的示踪物^[44],Pb 是燃煤源和工艺过程源的示踪物^[54],这些元素的 EF 值较高,表明郑州市受到工艺过程源、机动车源和燃煤源的影响较大.受到人为源影响较大的元素在市郊的 EF 值普遍低于市区点位,这可能是因为市区车流量密度大且车速慢从而排放更多污染物,机动车润滑油、机油添加剂、发动机磨损、刹车片和轮胎磨损等也会造成 Zn、Ca、Cu、Pb、Mn 和 Fe 元素浓度的升高^[47,55~64];另一方面可能是由于市郊环境空旷,易于污染物的稀释和扩散,裸露的地表尘土进入环境空气也会降低 PM_{2.5}中受人为源影响较大的元素的相对浓度^[9].

图 3(b) 汇总了本研究时段内主要元素的 I_{geo} 值. Si、Ti、Al、Mg、Sr、Na、Fe、K、Ba 和 V 元素的 I_{geo} 值在不同季节中均小于 0,表明这些元素主要来自自然源,比如地壳源. Ca 元素除了市郊点位的春季 I_{geo} 值为 0. 4,污染级别为轻度,表明 Ca 元素受到自然源和人为源的共同影响,其他季节 I_{geo} 值均小于 0,这一点印证了前文关于春季更多受到扬尘源(土壤扬尘和建筑扬尘)影响的观点. Cu、As、Zn、Pb、Sn 和 Sb 的 I_{geo} 值在不同季节均大于 1,污染级别达

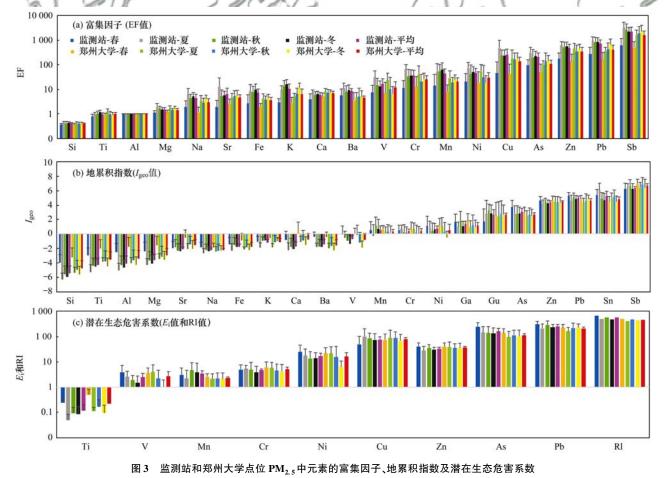


Fig. 3 Enrichment factors, geoaccumulation indexes, and potential ecological risk indexes of elements in $PM_{2.5}$ at the sites of Zhengzhou environmental monitoring center and Zhengzhou University

到偏中度以上,表明这些元素受到人为源的影响较大.该评价结果与富集因子法的结论基本一致.

图 3(c) 汇总了两个点位不同季节的 E_i 值和 RI

值. Cr、Mn、Ti、V 和 Ni 的 E_i 值在不同季节中均小于 40,表明这些元素的潜在生态危害程度为轻微,Zn 的 E_i 值只在春季达到 40.4,其他季节均小于

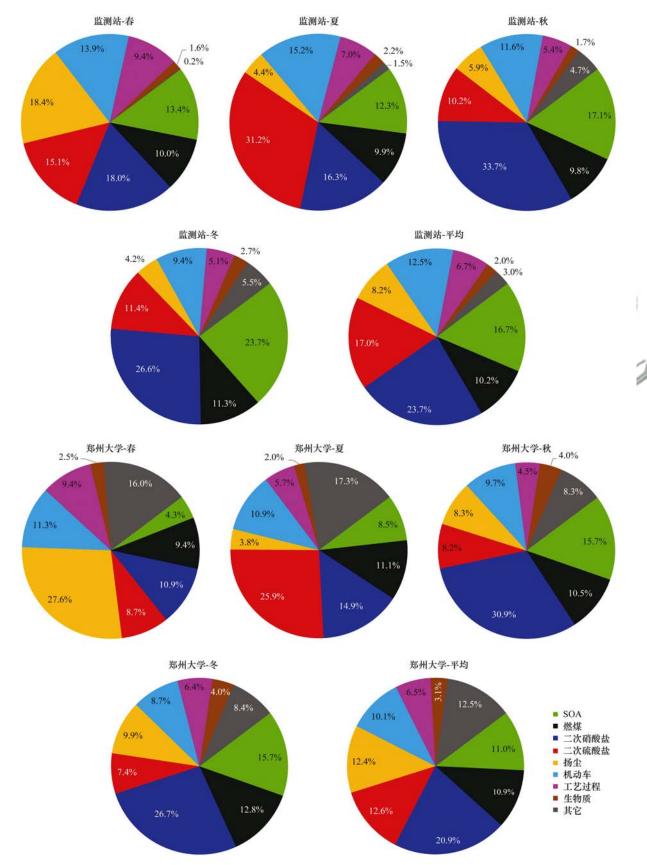


图 4 监测站和郑州大学点位四季来源解析结果

Fig. 4 Results of source apportionment for four seasons at the sites of Zhengzhou environmental monitoring center and Zhengzhou University

40,因此可以认为 Zn 的潜在生态危害等级为轻微. 两个点位 Cu 的 E_i 值较为一致,春冬两季均在 $40 \sim 80$ 之间,潜在生态危害等级为中,夏秋两季则在 $80 \sim 160$ 之间,潜在生态危害等级为较强,表明 Cu 元素在夏秋两季的潜在生态风险强于春冬两季. As 的 E_i 值只在市区点位春季时达到 240.5 ,风险等级为强,其他季节和市郊点位一样,均为较强. Pb 的 E_i 值均处于 $160 \sim 320$ 之间,风险等级为强,两个点位差别不大,表明 Pb 在郑州市的生态潜在风险普遍存在.

2.3 来源解析

本研究使用 CMB 模型对受体数据进行来源解析,所使用的源成分谱数据来自 Cao^[65]的研究 (http://www.sourceprofile.org.cn/),为降低结果的不确定性,本研究将按 OC/EC 最小比值法估算出的SOC 的 1.4 倍^[66]视为二次有机气溶胶(SOA),将减去 SOA 的 PM_{2.5}浓度输入模型,使之与源成分谱更加匹配,最后将 SOA 计入模型的源解析结果中.图4为本研究期间两点位四季源解析结果,整体来看,四季市区点位 SOA、二次硝酸盐(冬季除外)和二次硫酸盐贡献占比均高于市郊,表明市区受到二次污染物的影响明显大于市郊;四季机动车源在市区点位的贡献均高于市郊点位,可能与市区车流量大、密度高及车速较慢有关,这一结果印证组分特征的结论;

市郊点位秋冬季生物质源贡献较高可能与农村使用秸秆等生物质燃料有关. 两点位源贡献的季节变化趋势较为一致,均表现为春季受扬尘源影响较大,但市郊点位占比(27.6%)明显高于市区点位(18.4%),表明市郊受扬尘源影响更大,这与组分分析结果一致. 夏季均受到二次硫酸盐的显著影响,可能是由于夏季温度较高,光化学反应强烈,二次污染物生成增加,而硝酸盐在高温条件下易受热分解,因此贡献并不高,市区二次硝酸盐贡献占比(31.2%)高于市郊点位(25.9%)可能与夏季市区PM_{2.5}浓度低于市郊点位有关. 秋季市区和市郊点位二次硝酸盐占比均最高,分别达到33.7%和30.9%,表明秋季二次硝酸盐生成较高. 冬季市区和市郊点位燃煤源贡献在四季中均最高,分别达到11.3%和12.8%,可能是受到冬季燃煤供暖的影响.

2.4 后向轨迹和潜在源分析

为了进一步分析本研究地区受到区域传输的影响程度和方向,本研究使用 HYSPLIT 模型进行轨迹模拟,并进行轨迹聚类分析. 图 5 为四季模拟得到的轨迹聚类分析结果,春季主要受到西北(内蒙古、山西和陕西)、东北(山东)和南(湖北)方向的传输影响;夏季主要受到来自东北(山东)、东(江苏和安徽)和南(湖北)方向的传输影响;秋季主要受到西北(内蒙古、山西和陕西)、省内南部、东(山东)和东

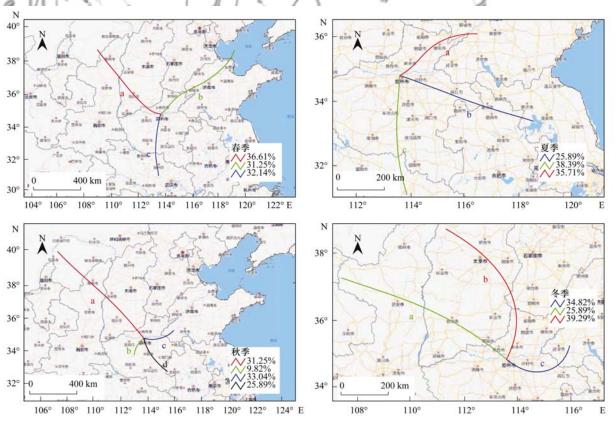


图 5 郑州市四季后向轨迹聚类分析结果

Fig. 5 Results for back-trajectory clusters in four seasons in Zhengzhou

南(安徽)方向的传输影响;冬季主要受到西北(陕西)、北(山西)和东(山东)方向的传输影响.其中秋季轨迹 b、c和d以及冬季轨迹 c属于短距离传输,可能是由于这些方向的气象条件稳定,不利于污染物的扩散.

图 6 为不同季节潜在源结果. 春季 WPSCF 高值 (大于 0.4)出现在郑州市西部和东部,包括洛阳市和开封市,表明这些地区的区域传输在春季对郑州市存在一定影响;夏季在郑州市东部和南部出现 WPSCF 高值,河南省内主要包括新郑市和商丘市,另外河南、山东、安徽和江苏这 4 省交界处以及徐州

市南部区域也出现高值区,但这些区域的 WPSCF 值 (大于 0. 1)相对其他季节较低,表明这些区域在夏季对郑州市存在一定程度上影响; 秋季在河南省西北部与山西省交界处出现 WPSCF 高值,主要包括济源市、阳城县和沁水县等区域,且这些区域的 WPSCF 值大于 0. 5,表明这些地区在秋季的污染传输对郑州市存在较大的影响; 冬季在河南省西南部与安徽省交界处出现 WPSCF 高值,主要包括许昌市、漯河市和周口市等地区,这些区域的 WPSCF 值均大于 0. 4,部分地区大于 0. 6,表明这些地区在冬季的区域传输对郑州市存在较大影响.

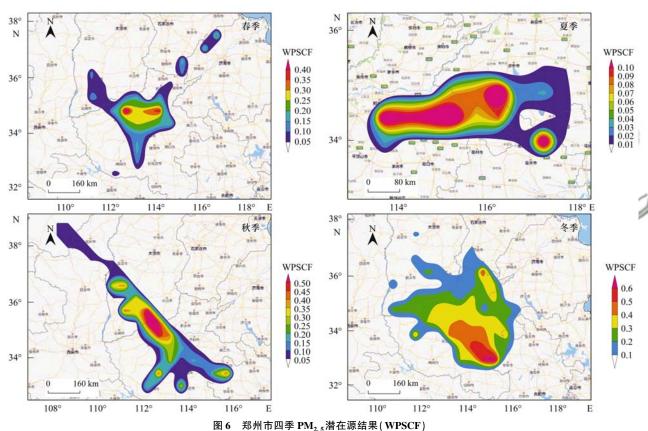


Fig. 6 Results of potential sources (WPSCF) of PM_{2.5} in four seasons in Zhengzhou

3 结论

- (1)监测站和郑州大学点位年平均 PM_{2.5}浓度分别为(59.7 ± 24.0) μg·m⁻³和(74.7 ± 13.5) μg·m⁻³,两点位季节平均浓度变化规律一致,由高到低依次为冬季、秋季、春季和夏季.相比于市区,市郊春季受地壳物质的影响较大,夏秋两季全部组分浓度均高于市区;冬季市区受燃煤源和机动车源影响更大.
- (2)组分分析结果表明,春季市郊受土壤扬尘 和建筑扬尘影响较大;秋季市郊受生物质源影响强 于市区,而秋季市区受建筑扬尘影响较大;冬季市 区二次硝酸盐生成较高.市区受餐饮油烟源的影响

大于市郊,且冬季 SOC 的生成高于其他季节. Cu、As、Zn、Pb 和 Sb 受到人为源的影响强烈,市区富集程度大于市郊,Zn、Cu、As 和 Pb 存在一定的潜在生态风险.

- (3)源解析结果表明,四季二次污染源和机动车源对市区的贡献均高于市郊,市郊秋冬季受生物质源的影响明显高于春夏季及市区点位.两点位源贡献的季节变化趋势较为一致,春夏秋冬四季均分别受到扬尘源、二次硫酸盐、二次硝酸盐和燃煤源的影响较大.
- (4)四季均受到山东的传输影响;除夏季外均 受到西北(内蒙古、山西和陕西)方向的传输影响; 除冬季外均受到南方向的传输影响,春夏季主要来

自湖北,秋季则来自省内;此外,夏季还受到来自东部(安徽和江苏)的传输影响.郑州市 PM_{2.5}浓度的潜在来源区域主要为省内及与邻省的交界处.

参考文献:

4822

- [1] 唐兆康, 吴峡生, 高嵩, 等. 南京冬季一次重霾污染事件 PM_{2.5}区域传输收支分析[J]. 环境科学学报, 2018, **38** (12): 4605-4611.

 Tang Z K, Wu X S, Gao S, et al. Analysis on PM_{2.5} regional transport and budget of a winter heavy haze pollution event in Nanjing[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018, **38** (12): 4605-4611.
- [2] Liu Z J, Li H, Cao G Q. Quick estimation model for the concentration of indoor airborne culturable bacteria; an application of machine learning [J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2017, 14(8): 857.
- [3] Duan J C, Tan J H. Atmospheric heavy metals and arsenic in China; situation, sources and control policies [J]. Atmospheric Environment, 2013, 74(1); 93-101.
- [4] 胡敏, 唐倩, 彭剑飞, 等. 我国大气颗粒物来源及特征分析 [J]. 环境与可持续发展, 2011, **36**(5): 15-19. Hu M, Tang Q, Peng J F, *et al.* Study on characterization and source apportionment of atmospheric particulate matter in China [J]. Environment and Sustainable Development, 2011, **36**(5): 15-19.
- [5] Zhang R Y, Wang G H, Guo S, et al. Formation of urban fine particulate matter [J]. Chemical Reviews, 2015, 115; 3803-3855.
- [6] 刘晓迪, 孟静静, 侯战方, 等. 济南市夏、冬季 PM_{2.5} 中化学组分的季节变化特征及来源解析[J]. 环境科学, 2018, **39** (9): 4014-4025.
 - Liu X D, Meng J J, Hou Z F, et al. Analysis of seasonal variations in chemical characteristics and sources of PM_{2.5} during summer and winter in Ji'nan City[J]. Environmental Science, 2018, **39**(9): 4014-4025.
- [7] 张鑫, 赵小曼, 孟雪洁, 等. 北京, 新乡夏季大气颗粒物中重金属的粒径分布及人体健康风险评价[J]. 环境科学, 2018, **39**(3): 997-1003.

 Zhang X, Zhao X M, Meng X J, et al. Particle size distribution and human health risk assessment of heavy metals in atmospheric particles from Beijing and Xinxiang during summer [J]. Environmental Science, 2018, **39**(3): 997-1003.
- [8] 郑元铸, 葛琳琳, 郑旭军, 等. 温州市区 PM_{2.5}无机元素污染特征及来源分析[J]. 环境化学, 2017, **36**(1): 84-91. Zheng Y Z, Ge L L, Zheng X J, *et al.* Characteristics and source apportionment of inorganic elements in PM_{2.5} in Wenzhou, Zhejiang[J]. Environmental Chemistry, 2017, **36**(1): 84-91.
- [9] Saxena M, Sharma A, Sen A, et al. Water soluble inorganic species of PM₁₀ and PM_{2.5} at an urban site of Delhi, India; seasonal variability and sources [J]. Atmospheric Research, 2017, 184: 112-125.
- [10] Custódio D, Cerqueira M, Alves C, et al. A one-year record of carbonaceous components and major ions in aerosols from an urban kerbside location in Oporto, Portugal[J]. Science of The Total Environment, 2016, 562: 822-833.
- [11] Bhuyan P, Barman N, Bora J, et al. Attributes of aerosol bound water soluble ions and carbon, and their relationships with AOD over the Brahmaputra Valley [J]. Atmospheric Environment, 2016, 142: 194-209.
- [12] Xu W Q, Sun Y L, Wang Q Q, et al. Changes in aerosol chemistry from 2014 to 2016 in winter in Beijing; insights from

- high-resolution aerosol mass spectrometry [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2019, **124** (2): 1132-1147.
- [13] Yu S Y, Liu W J, Xu Y S, et al. Characteristics and oxidative potential of atmospheric PM_{2.5} in Beijing: source apportionment and seasonal variation [J]. Science of the Total Environment, 2019, 650: 277-287.
- [14] Wu X F, Vu T V, Shi Z B, et al. Characterization and source apportionment of carbonaceous PM_{2.5} particles in China-a review [J]. Atmospheric Environment, 2018, 189: 187-212.
- [15] Hu J J, Zhang H L, Chen S H, et al. Identifying PM_{2.5} and PM_{0.1} sources for epidemiological studies in California [J]. Environmental Science & Technology, 2014, 48 (9): 4980-4990.
- [16] Harrison R M, Beddows D C, Dall'Osto M. PMF analysis of wide-range particle size spectra collected on a major highway [J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45 (13): 5522-5528.
- [17] Shi G L, Zeng F, Li X, et al. Estimated contributions and uncertainties of PCA/MLR-CMB results: source apportionment for synthetic and ambient datasets [J]. Atmospheric Environment, 2011, 45(17): 2811-2819.
- [18] Ryou H G, Heo J, Kim S Y. Source apportionment of PM₁₀ and PM_{2.5} air pollution, and possible impacts of study characteristics in South Korea[J]. Environmental Pollution, 2018, 240: 963-972.
- [19] Islam M R, Jayarathne T, Simpson I J, et al. Ambient air quality in the Kathmandu Valley, Nepal, during the premonsoon: concentrations and sources of particulate matter and trace gases[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020, 20 (5): 2927-2951.
- [20] 王彤, 华阳, 许庆成, 等. 京津冀郊区站点秋冬季大气 PM_{2.5}来源解析[J]. 环境科学, 2019, **40**(3): 1035-1042. Wang T, Hua Y, Xu Q C, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} in suburban area of Beijing-Tianjin-Hebei region in autumn and winter[J]. Environmental Science, 2019, **40**(3): 1035-1042.
- [21] Zhang G Q, Ding C, Jiang X J, et al. Chemical compositions and sources contribution of atmospheric particles at a typical steel industrial urban site [J]. Scientific Reports, 2020, 10 (1): 7654.
- [22] Shen H Z, Yang T M, Lu C C, et al. Chemical fingerprint and source apportionment of PM_{2.5} in highly polluted events of southern Taiwan [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2020, 27(7): 6918-6935.
- [23] 郑州市统计局,国家统计局郑州调查队.郑州统计年鉴 2018 [M].北京:中国统计出版社,2019.
- [24] 中华人民共和国生态环境部. 2017 中国生态环境公报[EB/OL]. http://www. mee. gov. cn/hjzl/zghjzkgb/lnzghjzkgb/201805/P020180531534645032372. pdf, 2018-05-22.
- [25] 中华人民共和国生态环境部. 2018 中国生态环境公报[EB/OL]. http://www.mee.gov.cn/hjzl/zghjzkgb/lnzghjzkgb/201905/P020190619587632630618.pdf, 2019-05-22.
- [26] 陈纯,朱泽军,刘丹,等. 郑州市大气 PM_{2.5}的污染特征及源解析[J]. 中国环境监测, 2013, **29**(5): 47-52. Chen C, Zhu Z J, Liu D, *et al.* Pollution characteristics and source apportionment of PM_{2.5} of ambient air in Zhengzhou[J]. Environmental Monitoring in China, 2013, **29**(5): 47-52.
- [27] 段时光,姜楠,杨留明,等.郑州市冬季大气 PM_{2.5}传输路径和潜在源分析[J].环境科学,2019,40(1):86-93.

 Duan S G, Jiang N, Yang L M, et al. Transport pathways and potential sources of PM_{2.5} during the winter in Zhengzhou[J].

- Environmental Science, 2019, 40(1): 86-93.
- [28] Liu X H, Jiang N, Yu X, et al. Chemical characteristics, sources apportionment, and risk assessment of PM_{2.5} in different functional areas of an emerging megacity in China [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2019, 19(10): 2222-2238.
- [29] Jiang N, Guo Y, Wang Q, et al. Chemical composition characteristics of PM_{2.5} in three cities in Henan, central China [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2017, 17 (10): 2367-2380.
- [30] Jiang N, Dong Z, Xu Y Q, et al. Characterization of PM₁₀ and PM_{2.5} source profiles of fugitive dust in Zhengzhou, China [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2018, 18(2): 314-329.
- [31] Jiang N, Liu X H, Wang S S, et al. Pollution characterization, source identification, and health risks of atmospheric-particle-bound heavy metals in PM₁₀ and PM_{2.5} at multiple sites in an emerging megacity in the central region of China[J]. Aerosol and Air Quality Research, 2019, 19(2): 247-271.
- [32] Jiang N, Duan S G, Yu X, et al. Comparative major components and health risks of toxic elements and polycyclic aromatic hydrocarbons of PM_{2.5} in winter and summer in Zhengzhou: Based on three-year data [J]. Atmospheric Research, 2018, 213: 173-184.
- [33] Wang S B, Yan Q S, Yu F, et al. Distribution and source of chemical elements in size-resolved particles in Zhengzhou, China; effects of regional transport[J]. Aerosol and Air Quality Research, 2018, 18(2); 371-385.
- [34] 田鵬山,曹军骥,韩永明,等. 关中地区冬季 PM_{2.5} 中碳气溶胶的污染特征及来源解析 [J]. 环境科学, 2016, **37**(2): 427-433.

 Tian P S, Cao J J, Han Y M, *et al.* Pollution characteristics and
 - sources of carbonaceous aerosol in $PM_{2.5}$ during winter in Guanzhong area [J]. Environmental Science, 2016, 37(2): 427-433.
- [35] 张程,于兴娜,安俊琳,等. 南京北郊不同大气污染程度下气溶胶化学组分特征[J]. 环境科学,2017,38(12):4932-4942.
 - Zhang C, Yu X N, An J L, *et al.* Aerosol chemical characteristics for different air pollution levels in north suburban Nanjing [J]. Environmental Science, 2017, **38** (12): 4932-4942
- [36] Hsu S C, Liu S C, Tsai F, et al. High wintertime particulate matter pollution over an offshore island (Kinmen) off southeastern china; an overview [J]. Journal of Geophysical Research; Atmospheres, 2010, 115 (D17); D17309.
- [37] 国家环境保护局. 中国土壤元素背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990.
- [38] 徐静, 李杏茹, 张兰, 等. 北京城郊 PM_{2.5}中金属元素的污染特征及潜在生态风险评价[J]. 环境科学, 2019, **40**(6): 2501-2509.
 - Xu J, Li X R, Zhang L, *et al.* Concentration and ecological risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} collected in urban and suburban areas of Beijing[J]. Environmental Science, 2019, **40** (6): 2501-2509.
- [39] 赵珍丽,赵委托,黄庭,等.电镀厂周边大气PM₁₀中重金属季节性分布特征及生态风险评价[J].环境科学,2018,39 (1):18-26.
 - Zhao Z L, Zhao W T, Huang T, *et al.* Seasonal characteristics and ecological risk assessment of heavy metals in PM₁₀ around electroplating plants [J]. Environmental Science, 2018, **39**(1): 18-26.
- [40] Sheng Z Z, Che H Z, Chen Q L, et al. Aerosol vertical

- distribution and optical properties of different pollution events in Beijing in autumn $2017[\,\mathrm{J}\,]$. Atmospheric Research, 2019, 215: 193-207
- [41] 杨留明, 王申博, 郝祺, 等. 郑州市 PM_{2.5} 中水溶性离子特征及来源分析[J]. 环境科学, 2019, **40**(7): 2977-2984.

 Yang L M, Wang S B, Hao Q, *et al.* Characteristics and source analysis of water-soluble ions in PM_{2.5} in Zhengzhou [J]. Environmental Science, 2019, **40**(7): 2977-2984.
- 42] 程渊, 吴建会, 毕晓辉, 等. 武汉市大气 PM_{2.5}中水溶性离子 污染特征及来源[J]. 环境科学学报, 2019, **39**(1): 189-196.
 - Cheng Y, Wu J H, Bi X H, et al. Characteristics and source apportionment of water-soluble ions in ambient $PM_{2.5}$ in Wuhan, China[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2019, 39(1): 189-196
- [43] Liu J, Wu D, Fan S J, et al. A one-year, on-line, multi-site observational study on water-soluble inorganic ions in PM_{2.5} over the Pearl River Delta region, China [J]. Science of the Total Environment, 2017, 601-602: 1720-1732.
- [44] 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.
- [45] Chow J C, Watson J G, Lu Z Q, et al. Descriptive analysis of PM_{2.5} and PM₁₀ at regionally representative locations during SJVAQS/AUSPEX [J]. Atmospheric Environment, 1996, 30 (12): 2079-2112.
- [46] Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, et al. Measurement of emissions from air pollution sources. 2. C₁ through C₃₀ organic compounds from medium duty diesel trucks [J]. Environmental Science & Technology, 1999, 33(10): 1578-1587.
- [47] Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, et al. Measurement of emissions from air pollution sources. 5. C₁-C₃₂ organic compounds from gasoline-powered motor vehicles [J]. Environmental Science & Technology, 2002, 36 (6): 1169-1180.
- [48] Chen Y J, Zhi G R, Feng Y L, et al. Measurements of emission factors for primary carbonaceous particles from residential rawcoal combustion in China [J]. Geophysical Research Letters, 2006, 33(20): L20815.
- [49] Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, et al. Measurement of emissions from Air Pollution Sources. 3. C₁-C₂₉ organic compounds from fireplace combustion of wood[J]. Environmental Science & Technology, 2001, 35(9): 1716-1728.
- [50] He L Y, Hu M, Huang X F, et al. Measurement of emissions of fine particulate organic matter from Chinese cooking [J]. Atmospheric Environment, 2004, 38(38); 6557-6564.
- [51] 李伟芳, 白志鹏, 魏静东, 等. 天津冬季大气中 PM_{2.5}及其主要组分的污染特征[J]. 中国环境科学, 2008, **28**(6): 481-486.
 - Li W F, Bai Z P, Wei J D, *et al.* Pollution characteristics of PM_{2.5} and its main components in Tianjin winter atmosphere [J]. China Environmental Science, 2008, **28**(6): 481-486.
- [52] Xu L L, Yu Y K, Yu J S, et al. Spatial distribution and sources identification of elements in PM_{2.5} among the coastal city group in the Western Taiwan Strait region, China[J]. Science of the Total Environment, 2013, 442: 77-85.
- [53] Gao J J, Tian H Z, Cheng K, et al. Seasonal and spatial variation of trace elements in multi-size airborne particulate

- matters of Beijing, China; mass concentration, enrichment characteristics, source apportionment, chemical speciation and bioavailability[J]. Atmospheric Environment, 2014, 99: 257-265.
- [54] 林瑜, 叶芝祥, 杨怀金, 等. 成都市西南郊区春季大气 PM_{2.5}的污染水平及来源解析[J]. 环境科学, 2016, **37**(5): 1629-1638.

 Lin Y, Ye Z X, Yang H J, et al. Pollution level and source apportionment of atmospheric particles PM_{2.5} in southwest suburb of Chengdu in spring [J]. Environmental Science, 2016, **37**

(5): 1629-1638.

- [55] 马召辉,梁云平,张健,等. 北京市典型排放源 PM_{2.5}成分谱研究[J]. 环境科学学报, 2015, **35**(12): 4043-4052. Ma Z H, Liang Y P, Zhang J, et al. PM_{2.5} profiles of typical sources in Beijing[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2015, **35**(12): 4043-4052.
- [56] Adachi K, Tainosho Y. Characterization of heavy metal particles embedded in tire dust[J]. Environment International, 2004, 30 (8): 1009-1017.
- [57] Hwang I J, Hopke P K. Comparison of source apportionment of PM_{2.5} using PMF2 and EPA PMF version 2[J]. Asian Journal of Atmospheric Environment, 2011, 5(2): 86-96.
- [58] Kulshrestha A, Massey D D, Masih J, et al. Source characterization of trace elements in indoor environments at urban, rural and roadside sites in a semi arid region of India[J]. Aerosol and Air Quality Research, 2014, 14(6): 1738-1751.
- [59] Sahu M, Hu S H, Ryan P H, et al. Chemical compositions and source identification of PM_{2.5} aerosols for estimation of a diesel source surrogate [J]. Science of the Total Environment, 2011,

- **409**(13): 2642-2651.
- [60] Dallmann T R, Onasch T B, Kirchstetter T W, et al. Characterization of particulate matter emissions from on-road gasoline and diesel vehicles using a soot particle aerosol mass spectrometer[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014, 14 (14): 7585-7599.
- [61] Dallander T, Antikainen E, Raunemaa T, et al. Particle emissions from a small two-stroke engine: Effects of fuel, lubricating oil, and exhaust aftertreatment on particle characteristics[J]. Aerosol Science and Technology, 2005, 39 (2): 151-161.
- [62] Watson J G, Chow J C, Houck J E. PM_{2.5} chemical source profiles for vehicle exhaust, vegetative burning, geological material, and coal burning in Northwestern Colorado during 1995
 [J]. Chemosphere, 2001, 43(8): 1141-1151.
- [63] Lough G C, Schauer J J, Park J S, et al. Emissions of metals associated with motor vehicle roadways [J]. Environmental Science & Technology, 2005, 39(3): 826-836.
- [64] 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.
- [65] Cao J J. A brief introduction and progress summary of the PM_{2.5} source profile compilation project in China[J]. Aerosol Science and Engineering, 2018, 2(2): 43-50.
- [66] 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.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 41 No. 11 Nov. 15, 2020

CONTENTS

Industrial Volatile Organic Compounds (VOCs) Emission Inventory in China	
Contribution of Emissions from Cement to Air Quality in China	TANG Ling, XUE Xiao-da, BO Xin, et al. (4776)
$Audit\ Indicators\ and\ Suggested\ Ranges\ for\ Data\ Validation\ of\ Chemical\ Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ Ambient\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the Components\ in\ PM_{2.5}\ A\ Case\ Study\ of\ the\ PM_{$	e Yangtze River Delta ·····
Size Distribution of Particulate Chemical Components in Nanjing Jiangbei New Area	
Seasonal Chemical Composition Characteristics and Source Apportionment of $PM_{2.5}$ in Zhengzhou	
Characteristics, Sources, and Health Risks of Elements in PM _{2.5} in Shanxi University Town	
Spatio-temporal Evolution of PM _{2.5} Concentration During 2000-2019 in China	
Differences in Pollution Characteristics Under the Southerly and Easterly Wind in Beijing	
Transport Characteristics of Air Pollution in Tianjin Based on Weather Background	
Influence of Meteorological Conditions on Ozone Pollution at Shangdianzi Station Based on Weather Classification	
Accurate Identification of Ambient VOCs Emission Sources in an Industrial Park Using On-Line Monitoring Data	
Characteristics, Atmospheric Reactivity, and Source Apportionment of Ambient Volatile Organic Compounds in Wuhu	GAO Kang, ZHANG Hui, LIU Meng-di, et al. (4885)
Water Quality Response to Landscape Pattern at Different Spatial Scales in Baihe River in the Upper Reaches of the Miyun I	Reservoir ··· ZHANG Wei-wei, LI Xiao-na, WANG Chao, et al. (4895)
Concentration and Carbon Isotope Composition of DOC and DIC in the Miyun Reservoir Watershed in Summer	····· CHEN Ji-ji, GUO Jing, XU Su-shi, et al. (4905)
Variation and Driving Factors of Black Water Event Intensity in Lake Taihu During 2009 to 2018	XIN Hua-rong, ZHU Guang-wei, WANG Xue-song, et al. (4914)
Hydrogeochemical Investigations of Groundwater in the Lingbei Area, Leizhou Peninsula	ZHANG Hong-xin, WU Ya, LUO Wei-yu, et al. (4924)
Source of Groundwater Nitrate in Luanping Basin Based on Multi-environment Media Nitrogen Cycle and Isotopes	SUN Hou-yun, WEI Xiao-feng, JIA Feng-chao, et al. (4936)
Metal Distributions and Human Health Risk Assessments on Waters in the Huixian Karst Wetland, China	LI Jun, ZOU Sheng-zhang, LIANG Yong-ping, et al. (4948)
Absorption and Three Dimensional Fluorescence Spectra of CDOM in the Water of the Taibaishan Nature Reserve	ZHANG Wen-hao, ZHAO Duo-lin, WANG Xiao-yu, et al. (4958)
Effect of Heavy Rainfall on Nitrogen and Phosphorus Concentrations in Rivers at River-net Plain	LIAN Xin-qiao, ZHU Guang-wei, YANG Wen-bin, et al. (4970)
Risk Ranking of Endocrine Disrupting Compounds, Pharmaceuticals, and Personal Care Products in the Aquatic Environmen	nt of the Yangtze River Basin SU Chao, CUI Yan (4981)
Sources and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Jiaxing River Network	
Impact of a Sewage Treatment Plant on the Accumulation of Microplastics in Freshwater Organisms in the Lijiang River of the	e Guilin Urban Section
Distribution of Antibiotic Concentration in Domestic Wastewater Treatment Facilities in Villages and Towns	
Microbial Diversity and Influencing Factors in a Small Watershed in Winter	
Characteristics of Organic Matter in Sediments During the Thermal Stratification of a Reservoir and Effects on an Aerobic De	
Microbial Diversity Analysis of WWTPs Based on Hybrid-MBBR Process in a Low Temperature Season in the Yangtze River	
Effects of Phytoplankton Classifications on the Relationship Between Phytoplankton Community and Environment in Summer	
74	
Remote Sensing Classification of Urban Black-odor Water Based on Decision Tree	
Enhanced Membrane Anti-fouling Ability of Anaerobic Membrane Bioreactor Equipped with Bio-electrochemical System Using	
Zimaneca seminane sum coming ribinty of simulation seminant biocacca Equipped with bio-caccacantal objects com-	
Effects of Temperature and Substrate Concentration on N ₂ O Release of ANAMMOX Process	
Characteristics of Nutrient Removal in a Pilot-scale A ² /O with Mixture of Sludge Fermentation Liquor and Tail Water as Exte	_
Characteristics of Authen Removal in a Fino-scale A / O with mixture of Shudge Fermentation Eddor and Tail water as Extra	
Effect of Different Ratios of Anaerobic Time and Aeration Time on the Operation of a Continuous-Flow Reactor with Partial N	
Effect of Different Ratios of Anaeropic Time and Aeradon Time on the Operation of a Continuous-Flow Reactor with Fathar F	
Effects of Mesophilic Anaerobic Digestion and Thermophilic Anaerobic Digestion on the Risk and Stability of Heavy Metals in	
Quantitative Evaluation of Human Health Risk of Heavy Metals in Soils Based on Positive Matrix Factorization Model and Ge Distribution and Ecological Risk of Heavy Metals in the Soil of Redevelopment Industrial Sites	
	-
Investigating Adsorption of Naphthalene to Organo-Modified Montmorillonites and Influencing Factors	
Effects of Ferrous Sulfate and Ferric Nitrate on Cadmium Transportation in the Rhizosphere Soil-Rice System	
Effects of Intercropping of Brassica chinenesis L. and Tagetes patula L. on the Growth and Cadmium Accumulation of Plants	
Effects of Heavy Metal-immobilizing Bacteria on Reducing Wheat Uptake Cd by Regulation Soil Iron Oxides	
Sustained Effects of Remediation Materials on Soil Copper Remediation Under Oil-Rice Rotation	
Impacts of Nitrogen Application on Ammonia Volatilization During Maize Season in Northern China	
Effect of Biochar on Changes of the Temperature Sensitivity of Soil Respiration and Bacterial Community Structure	
Effects of Heavy Metal Contents on Phyllosphere and Rhizosphere Fungal Communities for Bothriochloa ischaemum in Copper	r Tailings Area
Advances in Microbe-Derived Taste and Odor Compounds in Typical Aguatic Ecosystems	ZHANG Hai-han, MIAO Yu-tian, HUANG Ting-lin, et al. (5201)