

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

经济快速发展区场地污染特征、源-汇关系与管控对策专辑

我国经济快速发展区工业VOCs排放特征及管控对策

孟博文, 李永波, 孟晶, 李倩倩, 史斌, 周喜斌, 李金灵, 苏贵金



制药



喷涂



橡胶

京津冀

长三角

珠三角

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年3月

第42卷 第3期

Vol.42 No.3

目次

经济快速发展区场地污染特征、源-汇关系与管控对策专辑

我国经济快速发展区工业 VOCs 排放特征及管控对策 孟博文, 李永波, 孟晶, 李倩倩, 史斌, 周喜斌, 李金灵, 苏贵金 (1023)

长江经济带湖北省人为源 VOCs 排放清单及变化特征 代伶文, 孟晶, 李倩倩, 史斌, 苏贵金, 黄利宏 (1039)

经济快速发展区六氯丁二烯的来源与分布特征 陶誉铭, 孟晶, 李倩倩, 史斌, 苏贵金, 郭立新 (1053)

近 20 年中国表层土壤中多环芳烃时空分布特征及源解析 马妍, 程芦, 阮子渊, 史鹏飞, 路超君, 运晓彤, 李璐嫣, 徐雁秋, 史怡 (1065)

电子废物拆解区微塑料与周围土壤环境之间的关系 柴炳文, 尹华, 魏强, 卢桂宁, 党志 (1073)

焦化场地内外土壤重金属空间分布及驱动因子差异分析 顾高铨, 万小铭, 曾伟斌, 雷梅 (1081)

典型石化工业城市土壤重金属源解析及空间分布模拟 孙雪菲, 张丽霞, 董玉龙, 朱林宇, 王政, 吕建树 (1093)

多功能区工业园土壤和地表灰尘重金属污染及生态风险差异分析 曾伟斌, 顾高铨, 万小铭, 雷梅 (1105)

龙岩市某铁锰矿区土壤重金属地球化学空间分布特征与来源分析 王蕊, 陈楠, 张二喜, 李小赛 (1114)

基于全周期场地概念模型的场地环境精准调查应用案例 李培中, 吴乃瑾, 王海见, 张骥, 荣立明, 李翔, 魏文侠, 宋云 (1123)

造纸厂土壤中短链和中链氯化石蜡的污染特征和风险评估 张佩萱, 高丽荣, 宋世杰, 乔林, 徐驰, 黄帝, 王爽, 蒋思静, 郑明辉 (1131)

典型再生铜冶炼厂周边土壤中 PCDD/Fs、PCBs 和 PCNs 的污染特征及健康风险评估 胡吉成, 郭静, 许晨阳, 金军 (1141)

柠檬酸与磷共存对土壤吸附镉的影响 宋子腾, 左继超, 胡红青 (1152)

两种能源草田间条件下对镉和锌的吸收累积 郑瑞伦, 石东, 刘文菊, 孙国新, 侯新村, 胡艳霞, 朱毅, 武菊英 (1158)

钒钛磁铁矿尾矿库复垦土地及周边土壤-玉米重金属迁移富集特征 孙厚云, 卫晓锋, 孙晓明, 贾凤超, 李多杰, 李健 (1166)

盐胁迫下八宝景天不同生态型对土壤中 Cd 积累特征 郭俊梅, 杨俊兴, 杨军, 万小铭, 孟晓飞, 陈同斌, 何孟轲, 周小勇, 徐铁兵 (1177)

水分条件对生物炭钝化水稻土铅镉复合污染的影响 汤家庆, 张绪, 黄国勇, 胡红青 (1185)

壳聚糖改性生物炭对水稻土甲基汞生成及其稻米积累的影响 杨雪玲, 王明星, 徐国敏, 王定勇 (1191)

铬污染对土壤细菌群落结构及其构建机制的影响 于皓, 安益君, 金德才, 靳拓, 王兴润 (1197)

研究报告

COVID-19 疫情期间京津冀大气污染物变化及影响因素分析 赵雪, 沈楠驰, 李令军, 武高峰, 陶静, 赵文吉 (1205)

2020 年初疫情管控对山东省空气质量影响的模拟 刘厚凤, 徐薇, 魏敏, 隋潇, 许鹏举, 李明燕, 张美根 (1215)

南京北郊 PM_{2.5} 中有机组分的吸光性质及来源 尚玥, 余欢, 茅宇豪, 王成, 谢鸣捷 (1228)

西安市大气棕碳污染特性及发色团种类 陈前, 陈庆彩 (1236)

淄博市道路尘细粒子携带金属元素的来源与健康风险评价 郭清源, 白雯宇, 赵雪艳, 郭丽瑶, 王敬华, 耿春梅, 王晓雨, 王静, 杨文, 白志鹏 (1245)

北京市控制 PM_{2.5} 污染的健康效益评估 杜沛, 王建国 (1255)

西宁市大气污染来源和输送季节特征 刘娜, 余晔, 马学谦 (1268)

青岛近海不同污染过程下大气颗粒态氮磷浓度分布特征 袁刚, 祁建华, 丁雪 (1280)

基于走航监测的长三角工业园区周边大气挥发性有机物污染特征 王红丽, 高雅琴, 景盛翱, 楼晟荣, 胡馨遥, 安静宇, 吴宇航, 高伟, 朱亮, 黄成 (1298)

山地型城市冬季大气重污染过程特征及成因分析 刘伟诚, 牛月圆, 吴婧, 闫雨龙, 胡冬梅, 邱雄辉, 彭林 (1306)

兰-白城市群主要大气污染物网格化排放清单及来源贡献 王文鹏, 王占祥, 李继祥, 高宏, 黄韬, 毛潇萱, 马建民 (1315)

2012~2019 年北京市储油库 VOCs 去除及排放水平变化监测分析 华岚英, 崔彤, 李金香, 邹本东, 杨妍妍, 程刚 (1328)

生活垃圾无害化处理大气污染物排放清单 马占云, 姜显聪, 任佳雪, 张阳, 冯鹏, 高庆先, 孟丹 (1333)

长江口邻近海域表层沉积物中的细菌藎多醇及对低氧区的响应判别 尹美玲, 段丽琴, 宋金明, 张乃星 (1343)

鄱阳湖流域水体和水产品中苯酚的暴露特征及人体健康风险评估 徐倩云, 艾舜豪, 高祥云, 王晓南, 刘征涛, 赵师晴, 葛刚, 李霖 (1354)

衡水湖湿地水环境质量时空变化特征及污染源分析 刘魏魏, 郭子良, 王大安, 张曼胤, 张余广 (1361)

丹江口水库及其入库支流水体中微塑料组成与分布特征 潘雄, 林莉, 张胜, 翟文亮, 陶晶祥, 李丹文 (1372)

金盆水库暴雨径流时空演变过程及水质评价 黄诚, 黄廷林, 李扬, 李楠, 齐允之, 司凡, 华逢耀, 赵凌云 (1380)

汛期暴雨径流对饮用水水库溶解性有机质 (DOM) 光谱特征的影响 李程遥, 黄廷林, 温成成, 梁伟光, 林子深, 杨尚业, 李凯, 蔡晓春 (1391)

苏州古城区域河道碳氮磷类污染物的分布特征 白冬锐, 张涛, 陈坦, 王洪涛, 金曦, 郑凯旋, 李忠磊, 杨婷, 金军 (1403)

娘子关泉群水化学特征及成因 唐春雷, 赵春红, 申豪勇, 梁永平, 王志恒 (1416)

过氧化钙重塑底泥对水中磷酸盐的吸附作用 徐楚天, 李大鹏, 王子良, 吴宇涵, 许鑫澎, 黄勇 (1424)

亚热带丘陵区绿狐尾藻人工湿地处理养猪废水氮磷去向 王丽莎, 李希, 李裕元, 张满意, 吴金水 (1433)

紫外/亚硫酸盐高级还原工艺加速降解水中难降解含碘造影剂 刘子奇, 仇付国, 赖曼婷, 李津, 董慧岭, 强志民 (1443)

太阳能热活化过硫酸盐降解染料罗丹明 B 的效能 马萌, 许路, 金鑫, 金鹏康 (1451)

一步法 La@MgFe₂O₄ 的制备及其吸附水中磷的性能 白润英, 宋博文, 张彧, 郝俊峰, 刘建明, 刘宇红 (1461)

工程规模长填龄渗滤液膜生物-纳滤组合设施各单元污染物去除效能 邵立明, 邓樱桃, 仇俊杰, 吕凡, 章骅, 何晶晶 (1469)

ANAMMOX 培养物中硫酸盐型氨氧化生物转化机制 毕贞, 董石语, 黄勇 (1477)

不同季节城市污水处理厂微生物群落特性 贺赞, 李魁晓, 王佳伟, 王慰, 樊鹏超, 陈行行, 王军静 (1488)

麻黄碱在斑马鱼体内的器官特异性蓄积及毒代动力学 殷行行, 郭昌胜, 邓洋慧, 邱紫雯, 张艳, 滕彦国, 徐建 (1496)

内蒙古白云鄂博矿区土壤稀土元素污染特征及评价 王哲, 赵莹晨, 骆逸飞, 郑春丽, 卞园, 张光宇 (1503)

广西典型岩溶区农田土壤-作物系统 Cd 迁移富集影响因素 马宏宏, 彭敏, 郭飞, 刘飞, 唐世琪, 杨峰, 张富贵, 周亚龙, 杨柯, 李括, 刘秀金 (1514)

超顺磁性纳米材料对镉污染稻田土壤微生物和酶的影响 方丹丹, 张立志, 王强 (1523)

水分管理与施硅对水稻根表铁膜及砷镉吸收的影响 陈佳, 赵秀兰 (1535)

四环素类抗生素对土壤-生菜系统的生物效应及其迁移降解特性 王卫中, 迟苏琳, 徐卫红 (1545)

地膜覆盖对菜地垄沟 CH₄ 和 N₂O 排放的影响 熊维霞, 江长胜, 赵仲婧, 曾唯, 胡曼利, 涂婷婷, 陈俊江, 郝庆菊 (1559)

对比研究生物炭和秸秆对麦玉轮作系统 N₂O 排放的影响 唐占明, 刘杏认, 张晴雯, 李贵春 (1569)

流域水生态空间管控下生境监测方法概述 阴琨, 刘海江, 王光, 金小伟 (1581)

《环境科学》征订启事 (1151) 《环境科学》征稿简则 (1342) 信息 (1402, 1415, 1580)

山地型城市冬季大气重污染过程特征及成因分析

刘倬诚, 牛月圆, 吴婧*, 闫雨龙, 胡冬梅, 邱雄辉, 彭林

(华北电力大学环境科学与工程学院, 资源环境系统优化教育部重点实验室, 北京 102206)

摘要: 以阳泉市2018年12月26日~2019年1月20日发生的典型大气重污染过程为例, 研究了山地型城市冬季大气重污染过程特征及成因。结果表明, 重污染发生时段首要污染物为 $PM_{2.5}$, 水溶性离子和碳质组分是 $PM_{2.5}$ 主要组分, 其中二次离子 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 是主要水溶性离子成分(共占离子组分的87.7%), 二次有机碳(SOC)是碳质组分的主要成分(71.6%)。二次离子在重污染发生时的浓度较发生前增加5.3倍, 是导致 $PM_{2.5}$ 快速增长的重要组分。气象条件分析显示, $PM_{2.5}$ 及其主要组分皆与相对湿度呈显著正相关关系而与风速呈显著负相关, 随相对湿度增加以及平均风速降低, 污染程度逐渐加重。山地型城市相对湿度较高、温度变化幅度大等气象特征使二次污染物的生成加快, 是导致 $PM_{2.5}$ 污染程度快速加重的主要原因。另外, 山地型城市相对封闭的地形导致的平均风速降低使得大气污染物扩散条件相对较差是污染物累积的原因之一。PMF模型解析结果为: 二次源(46.0%)对 $PM_{2.5}$ 贡献显著, 其次为燃煤源(32.6%)、机动车源(19.8%)和扬尘源(1.6%)。因此, 山地型城市更应该重视对二次组分, 特别是二次离子形成的前体物的管控。

关键词: 山地型城市; 大气重污染成因; $PM_{2.5}$; 碳质组分; 水溶性离子; 来源解析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)03-1306-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202009138

Characteristics and Cause Analysis of Heavy Air Pollution in a Mountainous City During Winter

LIU Zhuo-cheng, NIU Yue-yuan, WU Jing*, YAN Yu-long, HU Dong-mei, QIU Xiong-hui, PENG Lin

(Key Laboratory of Resources and Environmental System Optimization, Ministry of Education, College of Environmental Science and Engineering, North China Electric Power University, Beijing 102206, China)

Abstract: Taking the typical heavy air pollution process in Yangquan from December 26, 2018 to January 20, 2019 as an example, the characteristics and cause analysis of heavy air pollution in a mountainous city in winter were analyzed in this study. The results showed that fine particle mass ($PM_{2.5}$) was the primary pollutant during the heavy pollution period. The water-soluble ions and carbonaceous components were the main components of $PM_{2.5}$. The secondary ions of SO_4^{2-} , NO_3^- , and NH_4^+ had the larger contribution to water-soluble ions (87.7%), and the secondary organic carbon (SOC) was the main component of the carbonaceous components (71.6%). The concentration of the secondary ions during the heavy pollution period increased by 5.3 times compared to levels before the heavy pollution period, and was an important component resulting in the fast increase of $PM_{2.5}$. An analysis of meteorological conditions showed that $PM_{2.5}$ and its main components had a significantly positive relationship with humidity and a significantly negative relationship with wind speed. And that pollution became stronger with an increase in humidity and a decrease in wind speed. The typical meteorological characteristics of mountainous cities are high relative humidity and large temperature variations, which can accelerate the formation of secondary pollutants and are the main reasons for the rapid aggravation of $PM_{2.5}$. In addition, the lower average wind speed caused by the relatively closed terrain in mountainous cities makes the diffusion conditions of air pollutants relatively poor, which is one of the reasons for the accumulation of pollutants. The source apportionment results showed that the secondary sources (46.0%) were the most important source of $PM_{2.5}$, followed by coal combustion (32.6%), vehicle exhaust (19.8%), and fugitive dust (1.6%). Therefore, mountainous cities should pay more attention to controlling secondary components, especially secondary ions.

Key words: mountainous city; cause of heavy air pollution; $PM_{2.5}$; carbonaceous components; water-soluble ions; source apportionment

近年来, $PM_{2.5}$ 仍是我国秋冬季大气污染防治的重点之一。与平原地区相比, 山地地区起伏较大, 坡度陡峻, 一般多呈脉状分布, 山地型城市一般分布在谷地地区, 地形相对闭塞, 气流容易受阻减速, 导致大气污染物扩散条件较差。因此, 山地型城市比平原城市更容易发生大气污染物的累积, 引发大气重污染过程, 山地型城市改善空气质量面临更大的挑战。我国山地面积约 650 万 km^2 , 约占全国陆地面积的 2/3, 我国约 1/3 的人居住于山

地^[1], 因此急需研究山地型城市重污染过程的大气污染特征及成因, 更有针对性地治理大气污染。

近年来, 国内外学者已经从浓度时空变化^[2-4]、组成成分、形成机制和来源^[5,6] 等方面对

收稿日期: 2020-09-14; 修订日期: 2020-10-26

基金项目: 国家重点研发计划项目(2019YFC0214200); 国家自然科学基金项目(21976053, 41673004); 大气重污染成因与治理攻关项目(DQGG-05-12)

作者简介: 刘倬诚(1995~), 男, 硕士, 主要研究方向为大气污染与控制, E-mail: 13391882696@163.com

* 通信作者, E-mail: wujing@ncepu.edu.cn

PM_{2.5}重污染过程进行了大量研究. Liu 等^[7]对菏泽地区的颗粒物组分进行了研究, 结果显示水溶性离子(SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺和Cl⁻)是该地区PM_{2.5}的主要组分, 在各个季节的占比约为(32.7%~51.7%), PMF来源解析结果显示二次源排放占比最大(26.5%); Song 等^[8]基于重污染过程分析了二次生成特征及其反应机制, 结果显示PM_{2.5}与硫酸化率(SOR)、氮氧化率(NOR)呈显著正相关关系; Ye 等^[9]对常州市重污染特征的分析结果显示, 高湿静稳的不利气象条件是该地区秋冬季重污染频发的重要原因, 二次组分为PM_{2.5}的主要组分, 占比达到52.2%以上. 目前, 大气重污染过程的研究主要集中在平原地区的大城市, 小型山地型城市相关研究则相对匮乏. 山地型城市的显著特征是相对封闭的地形使得大气污染物扩散条件相对较差. 此外, 山地型城市相对湿度较高、温度变化幅度较大等气象特征也对污染物的扩散及转化具有重要影响. 因此, 山地型城市的大气重污染特征及其管控对策可能具有独特性, 有必要对此开展有针对性的研究. 阳泉市位于山西东部山地, 依山建城, 周围有狮脑山和翠枫山等, 是典型的山地型城市(图1), 其产业以煤炭、电力和水泥等行业为主, 污染物排放量较大. 因此, 本研究选取阳泉市作为典型的小型山地型城市, 分析阳泉市2017~2019年以来最长的大气重污染过程(2018年12月31日~2019年1月14日)的污染特征及形成原因, 并针对性地提出管控建议, 以期为研究和制定山地型城市大气重污染管控措施提供科学支撑.

1 材料与方法

1.1 数据来源

污染物及颗粒物组分质量浓度等数据来自京津冀及周边综合立体观测数据共享平台(<http://123.127.175.60:8765/siteui/index>)中阳泉市南庄站点(图1)2018年12月26日~2019年1月20日逐时

自动监测数据, 包括气态污染物(SO₂、NO₂、CO和O₃)质量浓度、颗粒物(PM₁₀和PM_{2.5})质量浓度、空气质量指数(AQI)、PM_{2.5}水溶性离子组分和碳质组分质量浓度. 逐时温度、相对湿度和风速等气象数据来自山西省阳泉生态环境监测中心.

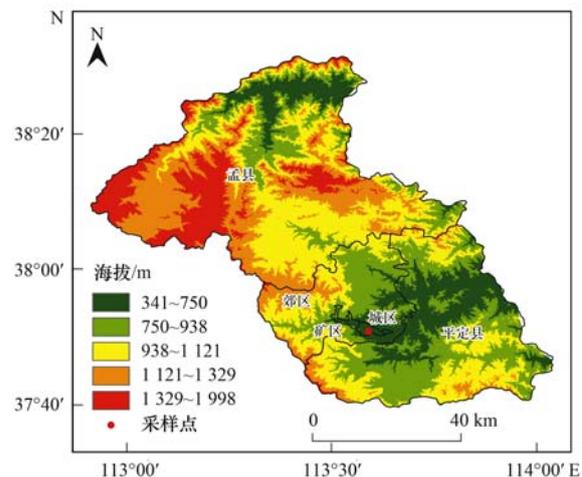


图1 采样点示意

Fig. 1 Location of sampling site

1.2 仪器信息

颗粒物质量浓度测量采用美国 Thermo 公司开发的颗粒物连续监测仪(TEOM1405F系列), NO₂和SO₂数据测量分别采用 Thermo Scientific Model 42i NO_x分析仪和43i SO₂分析仪, 每天仪器自动校准, 每周人工校准1次. PM_{2.5}水溶性离子组分(F⁻、Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺、Na⁺、K⁺、Mg²⁺和Ca²⁺)数据测量采用 Thermo Fisher URG-9000系列离子色谱在线监测系统, 每周对仪器校准1次, 每月用标准溶液进行校准. PM_{2.5}碳质组分(有机碳OC和元素碳EC)数据测量使用中科天融(北京)科技有限公司开发的大气细颗粒物OC/EC在线分析仪TR20N9型, 每周对仪器校准1次, 每周更换1次膜, 每月清洗1次切割器, 并用标准溶液进行校准. PM_{2.5}碳质组分和水溶性离子组分检出限见表1.

表1 碳质组分和水溶性离子组分检出限

Table 1 Detection limits of carbonaceous components and water-soluble ions

组分	OC	EC	Mg ²⁺	Ca ²⁺	K ⁺	Na ⁺	F ⁻	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺
检出限/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	0.069	0.069	0.001	0.003	0.002	0.001	0.001	0.001	0.003	0.001	0.001

1.3 PMF 模型原理

采用正定矩阵因子分析模型(positive matrix factorization, PMF)对阳泉市区冬季颗粒物进行定量的源解析. 其基本原理是将受体矩阵分解为源成分谱矩阵、源贡献矩阵和残差矩阵. PMF计算过程中的基本公式为:

$$E_{ik} = \sum_{j=1}^p A_{ik} B_{jk} + \epsilon_{ik} \quad (i = 1, 2, \dots, n) \quad (1)$$

式中, E_{ik} 为k次观测的污染物i的浓度; j为因子, A_{ik} 和 B_{jk} 分别为源成分谱和源贡献; ϵ_{ik} 为残差. PMF主要是计算目标函数Q的最小值, 目标函数为:

$$Q = \sum_i^m \sum_k^n \left(\frac{\varepsilon_{ik}}{\sigma_{ik}} \right)^2 \quad (2)$$

式中, ε_{ik} 为样品的不确定性偏差. 样品的不确定度 U 计算公式为:

$$U = \begin{cases} \sqrt{(E \cdot c)^2 + M^2} & (c > M), \\ (5/6)M & (c \leq M). \end{cases} \quad (3)$$

式中, E 为误差比例, M 为检测限, c 为污染物的浓度.

1.4 硫氧化率(SOR)和氮氧化率(NOR)

硫氧化率(SOR)和氮氧化率(NOR)可以指示大气中 SO_2 和 NO_2 的转化程度^[10], 计算公式如下:

$$\text{SOR} = n\text{-SO}_4^{2-} / (n\text{-SO}_4^{2-} + n\text{-SO}_2) \quad (4)$$

$$\text{NOR} = n\text{-NO}_3^- / (n\text{-NO}_3^- + n\text{-NO}_2) \quad (5)$$

式中, $n\text{-SO}_4^{2-}$ 、 $n\text{-SO}_2$ 、 $n\text{-NO}_3^-$ 和 $n\text{-NO}_2$ 分别表示 SO_4^{2-} 、 SO_2 、 NO_3^- 和 NO_2 的浓度 ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$).

1.5 总碳、一次有机碳和二次有机碳

基于 EC 和 OC 观测数据, 可计算出总碳(TC)浓度. 根据 Turpin 等^[11] 提出的经验公式可进一步估算出污染源直接排放的一次有机碳(POC)和挥发性有机物在大气中被氧化生成的二次有机碳(SOC)的大气浓度.

$$\text{TC} = \text{OC} + \text{EC} \quad (6)$$

$$\text{POC} = \text{EC} \times (\text{OC}/\text{EC})_{\text{pri}} \quad (7)$$

$$\text{SOC} = \text{OC} - \text{POC} \quad (8)$$

式中, TC 为计算得到的 TC 质量浓度, POC 和 SOC 分别为估算得到的 POC 和 SOC 的质量浓度, $(\text{OC}/\text{EC})_{\text{pri}}$ 为一次源排放的 OC/EC 比值, 本研究中 $(\text{OC}/\text{EC})_{\text{pri}}$ 用研究时段 OC/EC 质量浓度比值的最小值估计.

2 结果与讨论

为研究不同污染条件下的大气污染特征, 本研究选取 2018 年 12 月 26 日~2019 年 1 月 20 日为研究时段, 根据《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 中的空气质量等级, 将优良天视为清洁天, 其他为污染天, 从而将研究时段划分为清洁阶段 I (2018 年 12 月 26~30 日)、污染阶段 (2018 年 12 月 31 日~2019 年 1 月 14 日) 和清洁阶段 II (2019 年 1 月 15~20 日). 污染阶段中, 空气质量在 1 月 8 日明显好转, 达到轻度污染, 随后污染程度又逐渐加重 (图 2), 因此进一步将污染阶段分为污染阶段 I (2018 年 12 月 31 日~2019 年 1 月 8 日) 和污染阶段 II (1 月 9~14 日). 以下将从大气污染特征、地形气象因素影响、 $\text{PM}_{2.5}$ 组分变化特征和成因分析

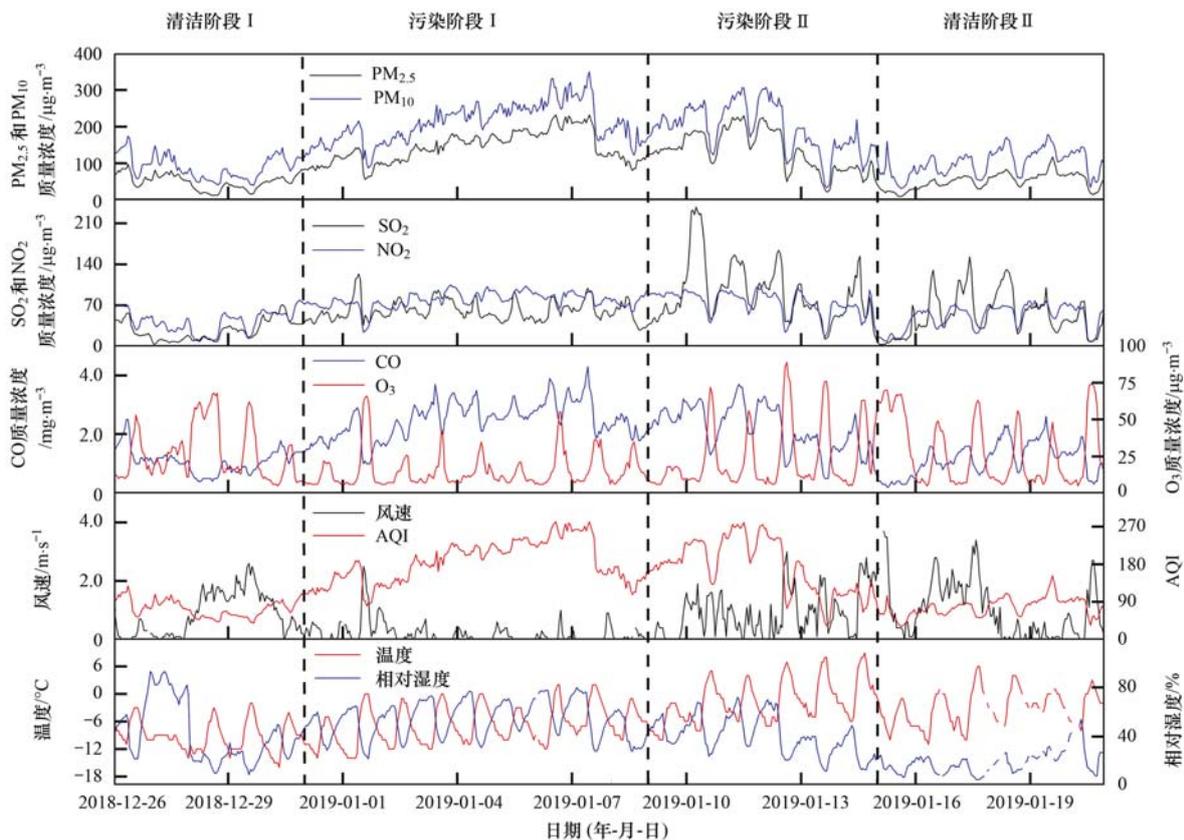


图2 大气主要污染物 ($\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 NO_2 、 SO_2 、CO 和 O_3)、AQI 值和气象因素 (温度、相对湿度和风速) 时间序列

Fig. 2 Time series of main air pollutants ($\text{PM}_{2.5}$, PM_{10} , NO_2 , SO_2 , CO, and O_3), AQI, and meteorological conditions (temperature, relative humidity, and wind speed)

以及来源解析等方面逐一阐述。

2.1 大气污染特征和地形气象要素影响

本研究时段的重污染天数为 6 d, 污染时长达 362 h, 首要污染物均为 $PM_{2.5}$ 。污染阶段中 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 NO_2 、 SO_2 和 CO 的平均质量浓度分别为 $140 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $204 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $77 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $72 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $2.4 mg \cdot m^{-3}$, 清洁阶段 I 和 II 的平均值分别为 $50 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $96 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $47 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $42 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $1.1 mg \cdot m^{-3}$, 可见污染阶段各项污染物浓度皆远高于清洁阶段(图 2)。进一步分析不同 $PM_{2.5}$ 污染程度下的大气主要污染物浓度变化特征发现(见图 3), PM_{10} 、 NO_2 、 SO_2 和 CO 质量浓度在 $PM_{2.5}$ 为 $0 \sim 75 \mu g \cdot m^{-3}$ 时分别为 $91 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $44 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $41 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $1.1 mg \cdot m^{-3}$, 随 $PM_{2.5}$ 污染程度上升而显著增加, 在 $PM_{2.5}$ 为 $151 \sim 250 \mu g \cdot m^{-3}$ 时达到 $260 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $88 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $89 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $2.9 mg \cdot m^{-3}$, 仅 O_3 呈现下降趋势, 表明本次污染期间发生了污染物的持续累积。污染阶段 I 重污染时长(94 h)远超污染阶段 II(54 h), 但两个污染阶段 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 NO_2 和 CO 平均浓度相当。

气象数据分析显示, 污染阶段平均风速(0.5

$m \cdot s^{-1}$) 低于清洁阶段($0.9 m \cdot s^{-1}$), 且相对湿度(49%) 高于清洁阶段(30%)。进一步分析不同 $PM_{2.5}$ 污染程度下的气象因素变化特征发现(见图 3), $PM_{2.5}$ 为 $0 \sim 75 \mu g \cdot m^{-3}$ 时的平均相对湿度仅为 28% 而平均风速为 $1.1 m \cdot s^{-1}$, 在 $PM_{2.5}$ 为 $151 \sim 250 \mu g \cdot m^{-3}$ 时平均相对湿度高达 59% 而平均风速仅为 $0.3 m \cdot s^{-1}$, 随相对湿度增加和平均风速降低, 污染程度加重。可见山地型城市相对封闭的地形使得大气污染物扩散条件相对较差, 且山地型城市相对湿度较高、温度变化幅度较大等气象特征是导致 $PM_{2.5}$ 污染程度加重的主要原因之一。在风速较小时, 污染物的输送以及近地面的湍流活动较弱, 不利于污染物的稀释扩散, 导致污染物累积聚集^[12,13]; 高湿情况下, 气溶胶含水量大, 空气中的 VOCs、 SO_2 和 NO_2 易转化成二次有机气溶胶、硫酸盐和硝酸盐, 加重污染程度^[14,15]。

由于大气污染物的浓度受排放强度、气象条件和二次转化的共同影响, 可以用大气污染物与化学性质相对稳定的 CO 的比值来排除气象条件的影响^[16], 分析不同污染物的排放及二次转化情况。本研究发现, 随着 $PM_{2.5}$ 浓度升高, $PM_{2.5}$ 、 NO_2 、 SO_2 、 O_3 与 CO 比值变化特征存在显著差异(图 4)。其

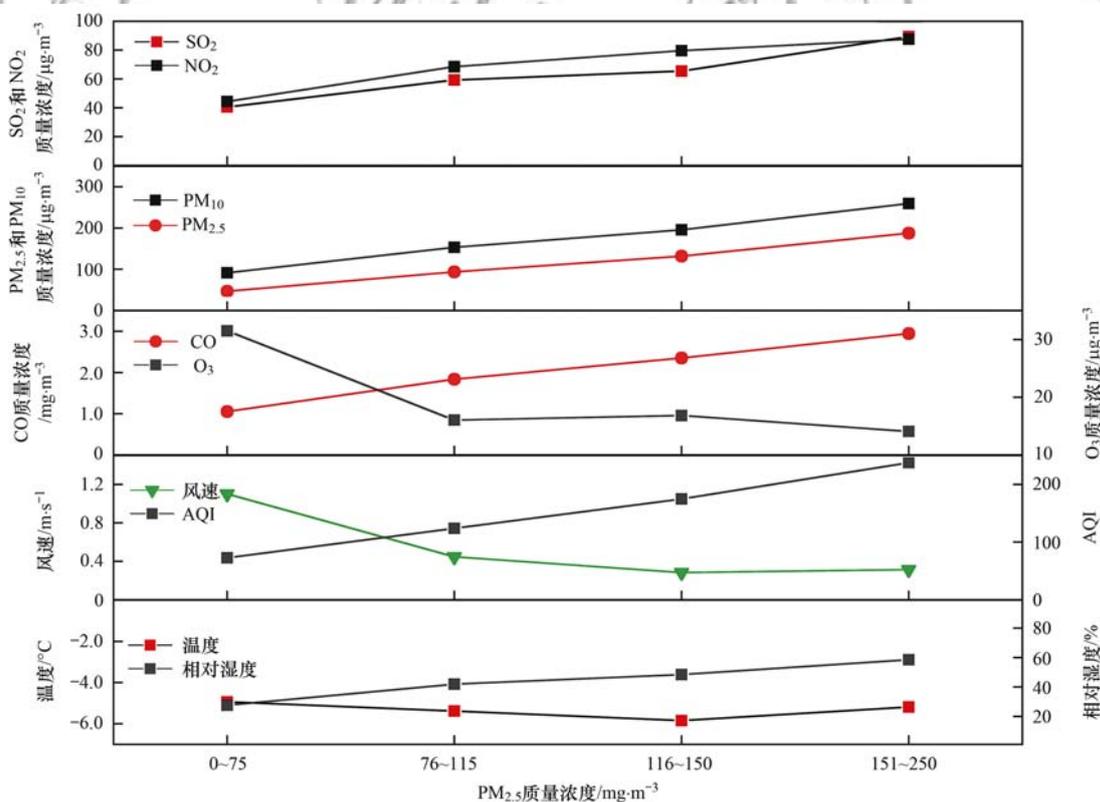


图 3 不同 $PM_{2.5}$ 质量浓度下大气 6 项主要污染物 ($PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 NO_2 、 SO_2 、 CO 和 O_3) 和气象条件(温度、相对湿度和风速)变化特征

Fig. 3 Concentrations of main air pollutants ($PM_{2.5}$, PM_{10} , NO_2 , SO_2 , CO , and O_3), AQI and meteorological conditions(temperature, relative humidity, and wind speed) at different $PM_{2.5}$ mass concentration ranges

中, $PM_{2.5}$ 与 CO 比值呈上升趋势, 说明随着污染程度加重, 排放强度增加或二次生成明显; 而 NO_2 、 SO_2 、 O_3 与 CO 比值整体呈下降趋势, 表明随着污染程度加重, NO_2 、 SO_2 和 O_3 化学转化明显, 推测 NO_2 和 SO_2 可能被 O_3 等氧化剂氧化生成了硝酸盐和硫酸盐^[17]. SO_2 与 CO 比值在重污染时略有上升, 这表明冬季燃煤排放在整个污染过程中均有很重要作用.

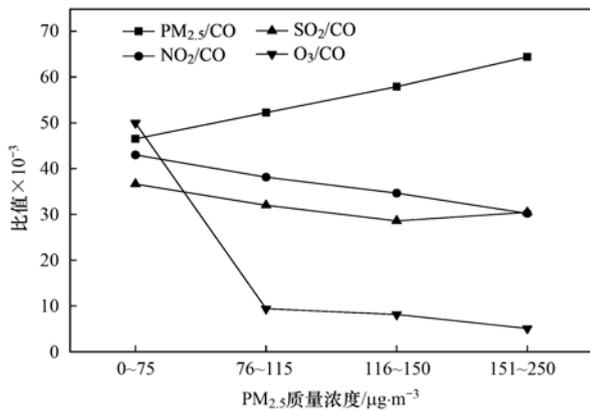


图4 不同 $PM_{2.5}$ 质量浓度下 $PM_{2.5}$ 、 NO_2 、 SO_2 、 O_3 与 CO 质量浓度比值特征分析

Fig. 4 Ratios of $PM_{2.5}$, NO_2 , SO_2 , and O_3 to CO at different $PM_{2.5}$ mass concentration ranges

2.2 $PM_{2.5}$ 组分变化特征及成因分析

2.2.1 水溶性离子组分

在整个观测过程中的平均浓度为 $(77.2 \pm 44.2) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 $PM_{2.5}$ 质量浓度的 71.1%, 说明水溶性离子组分是 $PM_{2.5}$ 的最主要组分. 分析发现, 污染阶段 I 和 II 的水溶性离子组分平均质量浓度为 $105.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 显著高于清洁阶段 I 和 II 的平均值 ($27.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 见图 5). 进一步分析不同 $PM_{2.5}$ 污染程度下的水溶性离子组分质量浓度及占比变化特征发现 (见图 6), 水溶性离子组分质量浓度在 $PM_{2.5}$ 为 $0 \sim 75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时为 $25.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 随 $PM_{2.5}$ 污染程度上升而显著增加, 在 $PM_{2.5}$ 为 $151 \sim 250 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时达到 $146.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 增长了约 4.7 倍. 与此同时, 水溶性离子组分在 $PM_{2.5}$ 中的质量浓度占比也呈显著地上升趋势 (从 55.3% 增长为 78.1%), 这与我国大部分城市中水溶性离子组分的研究结果相一致^[18-20]. 各水溶性离子质量浓度自大到小排序为: $NO_3^- > NH_4^+ > SO_4^{2-} > Cl^- > K^+ > Na^+ > F^- > Ca^{2+} > Mg^{2+}$. 其中, 山地型城市阳泉的二次离子 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 是水溶性离子组分的主要成分 (共占 87.7%), 总占比高于北京 (84.9%)^[3]、聊城 (80.6%)^[21]、唐山 (59%)^[22] 和成都 (36.9%)^[2]

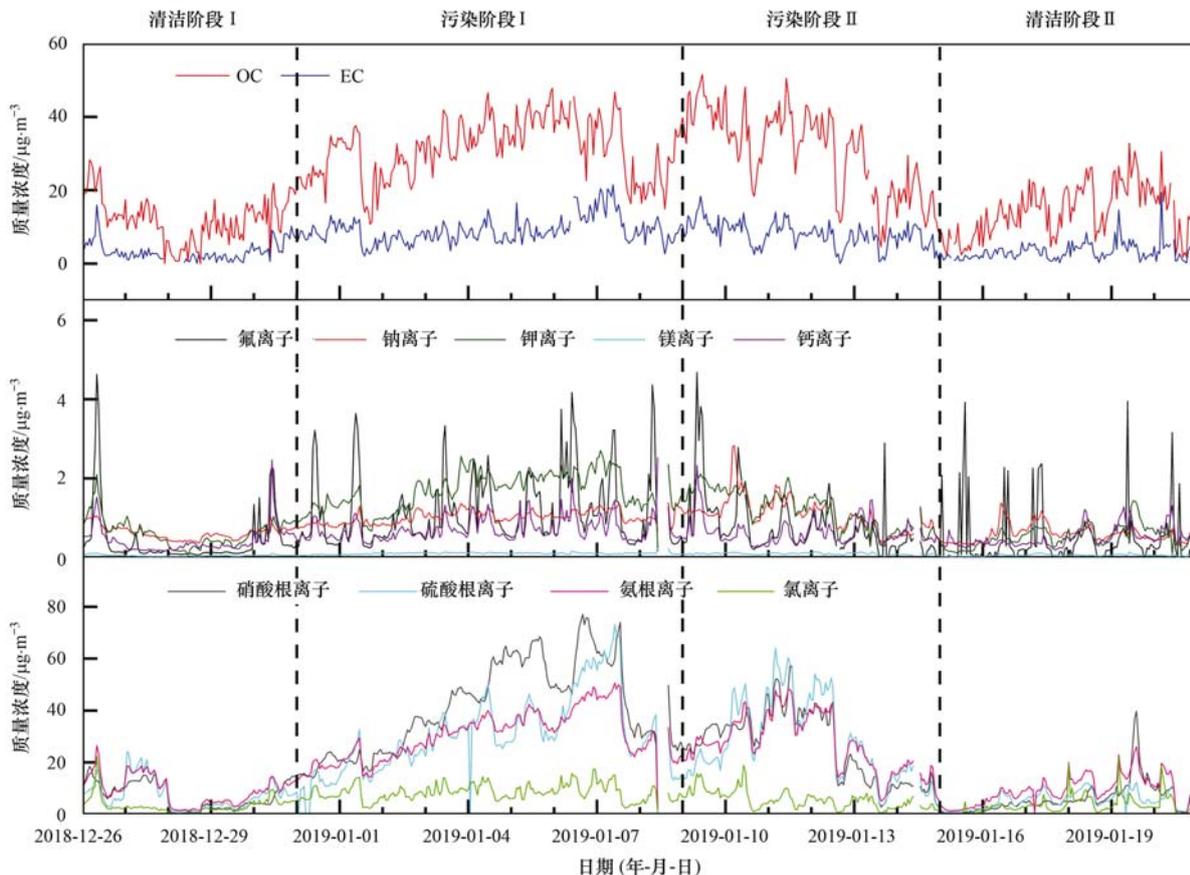


图5 $PM_{2.5}$ 中碳质组分和水溶性离子组分质量浓度时间序列

Fig. 5 Mass concentration time series of carbonaceous components and water-soluble ions in $PM_{2.5}$

等平原城市. 此外, 阳泉市 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 这 3 种离子的质量浓度与 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度均呈现显著正相关关系 ($R=0.927, P<0.01$; $R=0.922, P<0.01$; $R=0.970, P<0.01$), 均随 $\text{PM}_{2.5}$ 污染程度上升而不断升高, 可见山地型城市重污染过程中二次离子生成的重要性. 此外, SO_4^{2-} 和 NO_3^- 占比随污染程度上升而逐渐增大的同时, 其他离子浓度没有显著变化, 说明硫酸盐和硝酸盐的二次生成是 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度快速提升的重要原因. 分析各水溶性离子组分与气象要素的相关性发现, F^- 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 和 Ca^{2+} 皆与风速呈显著负相关关系 (R 为 $-0.543 \sim -0.341, P<0.01$), 而与相对湿度呈显著正相关关系 (R 为 $0.279 \sim 0.634, P<0.01$), 表明高湿静稳的气象条件有利于水溶性离子组分质量浓度的升高.

为进一步研究 $\text{PM}_{2.5}$ 中硫酸盐和硝酸盐的生成特征, 用 SOR 和 NOR 指示大气中 SO_2 和 NO_2 的转化程度. 图 7 显示, SOR 和 NOR 在 $\text{PM}_{2.5}$ 为 $0 \sim 75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时为 0.12 和 0.07, 随 $\text{PM}_{2.5}$ 污染程度加重而不断上升, 在 $\text{PM}_{2.5}$ 为 $151 \sim 250 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时达到 0.27 和 0.25, 增长了约 1.2 倍和 2.4 倍; 相关性分析也发现, SOR、NOR 与 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度皆呈正相关关系 ($R=0.524, P<0.01$; $R=0.831, P<0.01$), 进一步论证硫酸盐和硝酸盐的二次生成是 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度增长的重要原因. 此外, 不同污染程度下, SO_2 转化生成硫酸盐的速率皆高于 NO_2 转化生成硝酸盐的速率, 尤其是污染较轻时, SO_2 转化生成硫酸盐速率显著高于 NO_2 转化生成硝酸盐的速率, 表明污染较轻时硫酸盐的生成对 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度增长贡献更大;

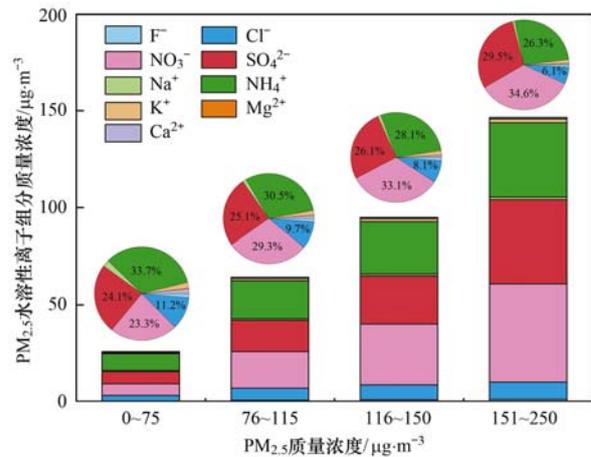


图 6 不同 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度下水溶性离子组分质量浓度及占比变化特征

Fig. 6 Mass concentrations and ratios of water-soluble ions at different $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration ranges

到达中重度污染之后, 两者转化速率相差不大. 此外, SOR 和 NOR 与气象条件的相关性分析表明(图 7 和表 2), 两者与相对湿度均呈现显著正相关关系 ($R=0.729, P<0.01$; $R=0.604, P<0.01$), 与风速呈现显著负相关关系, 表明相对湿度和风速等

表 2 $\text{PM}_{2.5}$ 、SOC、SOR、NOR 与温度、相对湿度、风速间的相关性分析¹⁾

Table 2 Correlations between $\text{PM}_{2.5}$, SOC, SOR, NOR, temperature, relative humidity, and wind speed

	$\text{PM}_{2.5}$	SOC	SOR	NOR
$\text{PM}_{2.5}$	1.000	0.857 **	0.524 **	0.831 **
温度	-0.026	-0.066	-0.175 **	0.085 *
相对湿度	0.626 **	0.498 **	0.729 **	0.604 **
风速	-0.462 **	-0.462 **	-0.423 **	-0.445 **

1) ** 表示在 0.01 水平 (双侧) 上显著相关, * 表示在 0.05 水平 (双侧) 上显著相关

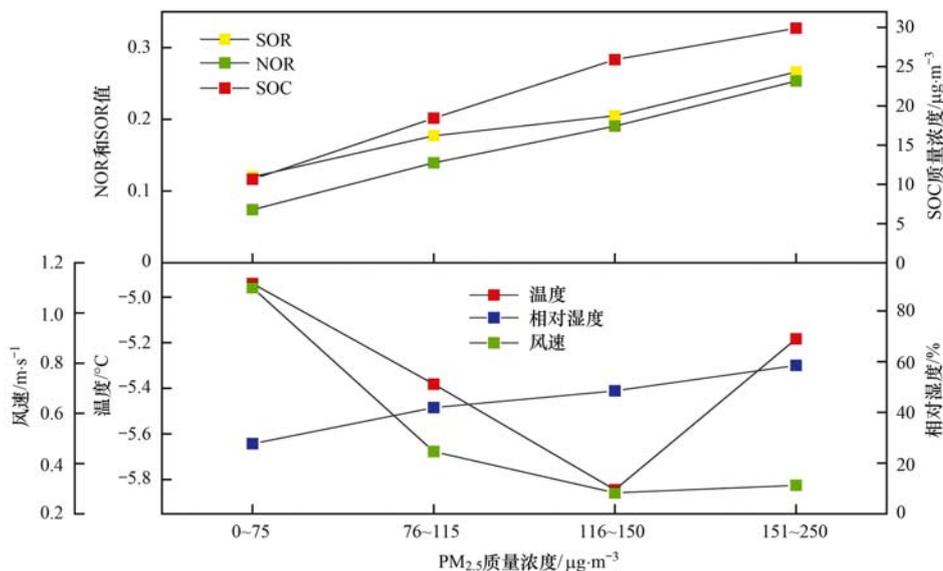


图 7 不同 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度级别 SOR、NOR、SOC 和气象因素变化

Fig. 7 SOR, NOR, SOC, and meteorological conditions at different $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration ranges

气象条件对二次生成有着重要影响,高湿静稳的天气更易于二次生成的发生。

2.2.2 碳质组分

本研究时段碳质组分元素碳(EC)和有机碳(OC)平均浓度分别为 $(6.5 \pm 4.1) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(23.9 \pm 11.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,计算得到总碳(TC)浓度为 $(30.4 \pm 15.4) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,占 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的29.9%,说明碳质组分是 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要组分之一。对比其他平原城市的重污染过程,阳泉市OC占比显著高于聊城(19.6%)^[21]和唐山(25.5%)^[22]等平原城市。其中,EC占TC的比例(21.3%)相对较小,而OC占TC的比例高达78.7%,因此OC是TC最主要的组分。结果显示,SOC平均浓度为 $(21.7 \pm 9.6) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,占到OC的91.0%,表明SOC是OC的主要组成,说明碳质组分的二次生成是此次重污染过程中 $\text{PM}_{2.5}$ 的重要来源。此外,OC/EC比值(为4.8)远大于2,也进一步证明SOC污染严重。同时,利用OC/EC比值可大致判断 $\text{PM}_{2.5}$ 中碳质气溶胶的主要来源,有研究发现机动车尾气、燃煤和生物质燃烧的OC/EC比值分别为1.0~4.2、2.5~10.5和8.1~12.7^[23],因此推测燃煤也是阳泉市冬季颗粒物的重要来源之一。分析EC、POC、SOC与气象要素的相关性发现,EC、POC、SOC皆与风速呈显著负相关关系(R 为 $-0.453 \sim -0.462$, $P < 0.01$),而与相对湿度呈显著正相关关系(R 为 $0.498 \sim 0.508$, $P < 0.01$),表明高湿静稳的气象条件有利于碳质组分质量浓度的升高。

进一步分析不同 $\text{PM}_{2.5}$ 污染程度下的碳质组分EC、POC和SOC质量浓度及占比变化特征发现(见图8),3种碳质组分在 $\text{PM}_{2.5}$ 为 $0 \sim 75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时分别为3.1、2.3和 $10.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,随 $\text{PM}_{2.5}$ 污染程度上升而显著增加,在 $\text{PM}_{2.5}$ 为 $151 \sim 250 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时分

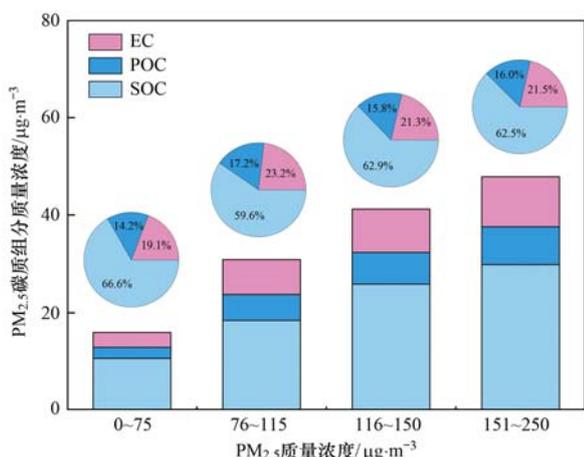


图8 不同 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度下碳质组分质量浓度及占比变化特征

Fig. 8 Mass concentrations and ratios of carbonaceous components at different $\text{PM}_{2.5}$ concentration ranges

别达到10.3、7.6和 $29.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,说明一次排放和二次转化生成的碳质组分均是重污染过程中 $\text{PM}_{2.5}$ 的重要组分。与水溶性离子组分在 $\text{PM}_{2.5}$ 中的质量浓度占比随 $\text{PM}_{2.5}$ 污染程度上升呈显著地上升趋势不同的是,3种碳质组分占比从 $\text{PM}_{2.5}$ 为 $0 \sim 75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时的6.5%、4.9%和22.7%降低至 $\text{PM}_{2.5}$ 为 $151 \sim 250 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时的5.5%、4.1%和15.9%,进一步侧面印证了山地型城市重污染过程中水溶性离子,特别是二次离子生成的重要性。

2.3 $\text{PM}_{2.5}$ 来源解析

本研究使用EPA(美国国家环保署)PMF 5.0模型定量解析不同污染源对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献。经多次程序运行,测试不确定性参数和调整因子数以确保最小目标函数值和残差矩阵值,最终识别得到4类排放因子。运行结果显示,上述解析结果的 Q_{unc} 值和 Q_{robust} 值分别收敛于5142.8和4844.1,两者比较接近。参与拟合的各组分中除 SO_4^{2-} 实测浓度与拟合浓度相关性较差外(斜率为0.69, $r^2 = 0.78$),其他离子组分实测浓度与模拟浓度相关性皆较高(斜率在0.87~1.07范围, r^2 皆大于0.8),且 $Q_{\text{robust}}/Q_{\text{theory}} = 1.18$,说明本次源解析结果合理。DISP分析结果显示, Q 值下降0.732,降幅小于0.1%,输入4个因子时 dQ^{max} 水平下皆未发生因子交换;BS分析结果显示:二次源、燃煤源、机动车源和扬尘源匹配率分别为100%、93%、95%和82%,表明结果可信。BS-DISP分析结果显示:二次源、燃煤源、机动车源和扬尘源交换率分别为10%、43%、43%和19%,其中燃煤源和机动车源谱的相似性导致源交换率较高。综上所述,PMF模型基础运行方案结果不确定性在可接受的范围内,结果可靠。

PMF模型解析出阳泉市4种主要的 $\text{PM}_{2.5}$ 排放源,分别为:二次源、燃煤源、机动车源和扬尘源。各因子的 $\text{PM}_{2.5}$ 源谱如图9所示,其中显示了各源对 $\text{PM}_{2.5}$ 的水溶性离子组分、碳质组分以及示踪污染物(NO_2 和 SO_2)的重要程度^[24,25]。因子1主要以 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 为主,分别占总量的58.2%和31.0%,推测因子1为扬尘源^[26,27];因子2对OC和EC的贡献较大,在相应总量的占比达到38.7%和81.8%。同时 NO_2 占有一定比例而 SO_2 贡献为0,故认为是机动车源^[28];因子3以高贡献的二次无机离子(SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+)为特征, NO_3^- 和 SO_4^{2-} 主要来自 NO_x 和 SO_2 等气体前体物的二次转化,故认为因子3是二次源;因子4在OC和 Mg^{2+} 占比较高,同时 SO_2 和 NO_2 占比都较大,分别为59.2%和53.4%,且也存在一定 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 和EC,符

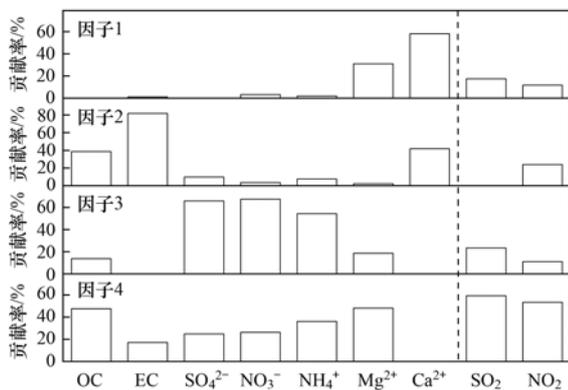


图9 PMF源解析因子

Fig. 9 PMF Source profiles of $PM_{2.5}$

合燃煤源的特征^[28,29].

整个研究时段阳泉市 $PM_{2.5}$ 来源中二次源、燃煤源、机动车源和扬尘源的占比分别为 46.0%、32.6%、19.8% 和 1.6% (图 10). 其中, 二次源占比最大, 且占比随污染程度加深逐渐增大, 尤其是在重污染期间占比高达 57.0%, 与前文分析结果一致, 因此污染期间二次转化严重是导致长时间污染的主要原因. 燃煤源占比也较高, 符合阳泉市燃煤型城市特点, 其贡献随污染程度加深而降低, 这可能与其排放的污染物进行了大量的二次转化有关. 机动车占比相对平稳, 在 20% 左右波动.

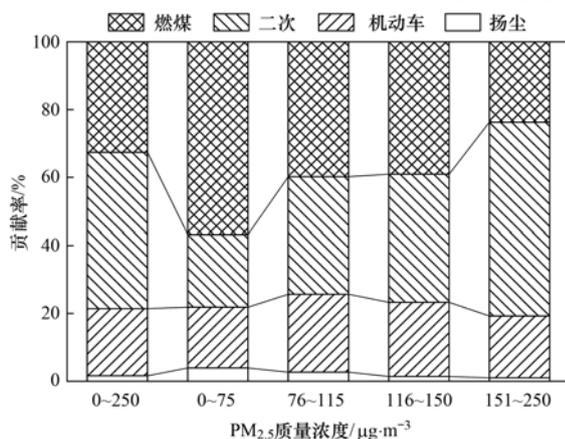
图10 整个研究时段及不同 $PM_{2.5}$ 质量浓度下的 PMF 解析结果

Fig. 10 Source apportionment results of the whole study period and different $PM_{2.5}$ mass concentration ranges obtained from the PMF model

3 结论

(1) 研究时段阳泉市重污染天数为 6 d, 污染时长达 362 h, 首要污染物为 $PM_{2.5}$, $PM_{2.5}$ 中水溶性离子组分和碳质组分质量浓度随 $PM_{2.5}$ 污染程度上升而显著增加, 在 $PM_{2.5}$ 为 151 ~ 250 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时分别达到 146.5 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 47.8 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 较污染发生初期 $PM_{2.5}$ 为 0 ~ 75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时 (25.9 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 15.5

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 增长了约 4.7 倍和 2.1 倍. 同时, 水溶性离子组分在 $PM_{2.5}$ 中的质量浓度占比也呈显著上升趋势 (从 55.3% 增长为 78.1%), 而碳质组分占比逐渐下降 (从 33.1% 下降为 25.5%), 说明重污染过程中水溶性离子浓度升高对 $PM_{2.5}$ 贡献更大.

(2) 污染期间, $PM_{2.5}$ 水溶性离子组分中二次离子 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 是主要成分 (占离子组分的 87.7%), 总占比高于北京 (84.9%)、聊城 (80.6%)、唐山 (59%) 和成都 (36.9%) 等平原城市, 碳质组分中二次有机碳 (SOC) 是主要成分 (71.6%), 这些组分皆与相对湿度呈显著正相关关系而与风速呈显著负相关. 可见山地型城市重污染过程中二次组分, 尤其是二次离子生成是污染的主要原因.

(3) $PM_{2.5}$ 为 0 ~ 75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时的平均相对湿度仅为 28% 而平均风速为 1.1 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, 而 $PM_{2.5}$ 为 151 ~ 250 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时平均相对湿度高达 59% 而平均风速仅为 0.3 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. 随相对湿度增加和平均风速逐渐降低, 污染程度加重, 山地型城市相对湿度较高、温度变化幅度较大等气象特征可能是导致 $PM_{2.5}$ 污染程度加重的主要原因. 另外, 山地型城市相对封闭的地形使得大气污染物扩散条件相对较差也是污染物累积的原因之一.

(4) PMF 模型解析结果为: 二次源 (46.0%) 对 $PM_{2.5}$ 贡献显著, 其次为燃煤源 (32.6%)、机动车源 (19.8%) 和扬尘源 (1.6%). 因此, 山地型城市更应该重视对二次组分, 特别是二次离子形成的前体物的管控.

参考文献:

- [1] 陈玮. 对我国山地城市概念的辨析[J]. 华中建筑, 2001, 1(3): 55-58.
Chen W. Discrimination of the concept of our country's mountainous city[J]. Huazhong Architecture, 2001, 1(3): 55-58.
- [2] 吴明, 吴丹, 夏俊荣, 等. 成都冬季 $PM_{2.5}$ 化学组分污染特征及来源解析[J]. 环境科学, 2019, 40(1): 76-85.
Wu M, Wu D, Xia J R, et al. Analysis of pollution characteristics and sources of $PM_{2.5}$ chemical components in Chengdu in winter[J]. Environmental Science, 2019, 40(1): 76-85.
- [3] 高韩钰, 魏静, 王跃思. 北京南郊区 $PM_{2.5}$ 中水溶性无机盐季节变化及来源分析[J]. 环境科学, 2018, 39(5): 1987-1993.
Gao H Y, Wei J, Wang Y S. Seasonal variation and source analysis of water-soluble inorganic salts in $PM_{2.5}$ in the southern suburbs of Beijing[J]. Environmental Science, 2018, 39(5): 1987-1993.
- [4] 李宏艳, 高雪莹, 李宏宇, 等. 山西省大气 $PM_{2.5}$ 污染时空分布特征[J]. 环境化学, 2018, 37(5): 913-923.
Li H Y, Gao X Y, Li H Y, et al. Spatial-temporal distribution and variation characteristics of $PM_{2.5}$ in Shanxi [J]. Environmental Chemistry, 2018, 37(5): 913-923.
- [5] Xia L, Zhu B, Wang H L, et al. Characterization and source

- apportionment of fine particles during a heavy pollution episode over the Yangtze River Delta, China[J]. *Atmosphere*, 2020, **11** (7), doi: 10.3390/atmos11070720.
- [6] Sun P, Nie W, Wang T Y, *et al.* Impact of air transport and secondary formation on haze pollution in the Yangtze River Delta: in situ online observations in Shanghai and Nanjing [J]. *Atmospheric Environment*, 2020, **225**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117350.
- [7] Liu B S, Wu J H, Zhang J Y, *et al.* Characterization and source apportionment of PM_{2.5} based on error estimation from EPA PMF 5.0 model at a medium city in China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **222**: 10-22.
- [8] Song M D, Liu X G, Tan Q W, *et al.* Characteristics and formation mechanism of persistent extreme haze pollution events in Chengdu, southwestern China[J]. *Environmental Pollution*, 2019, **251**: 1-12.
- [9] Ye S Q, Ma T, Duan F K, *et al.* Characteristics and formation mechanisms of winter haze in Changzhou, a highly polluted industrial city in the Yangtze River Delta, China [J]. *Environmental Pollution*, 2019, **253**: 377-383.
- [10] Yao X H, Chan C K, Fang M, *et al.* The water-soluble ionic composition of PM_{2.5} in Shanghai and Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(26): 4223-4234.
- [11] 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.
- [12] 邓利群, 钱骏, 廖瑞雪, 等. 2009年8~9月成都市颗粒物污染及其与气象条件的关系[J]. *中国环境科学*, 2012, **32** (8): 1433-1438.
Deng L Q, Qian J, Liao R X, *et al.* Pollution characteristics of atmospheric particulates in Chengdu from August to September in 2009 and their relationship with meteorological conditions [J]. *China Environmental Science*, 2012, **32**(8): 1433-1438.
- [13] 赵晨曦, 王云琦, 王玉杰, 等. 北京地区冬春PM_{2.5}和PM₁₀污染水平时空分布及其与气象条件的关系[J]. *环境科学*, 2014, **35**(2): 418-427.
Zhao C X, Wang Y Q, Wang Y J, *et al.* Temporal and spatial distribution of PM_{2.5} and PM₁₀ pollution status and the correlation of particulate matters and meteorological factors during winter and spring in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2014, **35** (2): 418-427.
- [14] 杨龙, 贺克斌, 张强, 等. 北京秋冬季近地层PM_{2.5}质量浓度垂直分布特征[J]. *环境科学研究*, 2005, **18**(2): 23-28.
Yang L, He K B, Zhang Q, *et al.* Vertical distributive characters of PM_{2.5} at the ground layer in autumn and winter in Beijing [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2005, **18**(2): 23-28.
- [15] Truex T J, Pierson W R, McKee D E. Sulfate in diesel exhaust [J]. *Environmental Science & Technology*, 1980, **14** (9): 1118-1121.
- [16] Zhang Q, Quan J N, Tie X X, *et al.* Effects of meteorology and secondary particle formation on visibility during heavy haze events in Beijing, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **502**: 578-584.
- [17] 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.
- [18] 潘湘龙, 潘媛媛, 肖化云, 等. 焦作市冬季PM_{2.5}中水溶性离子组成特征及来源解析[J]. *环境污染与防治*, 2020, **42** (6): 755-759, 766.
Pan X L, Pan Y Y, Xiao H Y, *et al.* Composition characteristics and source analysis of water-soluble ions in PM_{2.5} during winter in Jiaozuo city [J]. *Environmental Pollution & Control*, 2020, **42** (6): 755-759, 766.
- [19] 雷天阳, 藏雨, 高元官, 等. 菏泽市秋冬季PM_{2.5}水溶性离子化学特征分析[J]. *环境科学研究*, 2020, **33**(4): 831-840.
Lei T Y, Zang Y, Gao Y G, *et al.* Chemical characteristics of water-soluble ions of PM_{2.5} in autumn and winter in Heze city [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2020, **33**(4): 831-840.
- [20] 王少博, 王涵, 张敬巧, 等. 邢台市秋季PM_{2.5}及水溶性离子污染特征[J]. *中国环境科学*, 2020, **40**(5): 1877-1884.
Wang S B, Wang H, Zhang J Q, *et al.* Characterization analysis of PM_{2.5} and water-soluble ions during autumn in Xingtai city [J]. *China Environmental Science*, 2020, **40**(5): 1877-1884.
- [21] 张敬巧, 吴亚君, 张萌, 等. 聊城冬季一重污染过程PM_{2.5}污染特征及成因分析[J]. *环境科学*, 2018, **39** (9): 4026-4033.
Zhang J Q, Wu Y J, Zhang M, *et al.* PM_{2.5} pollution characterization and cause analysis of a winter heavy pollution event, Liaocheng city [J]. *Environmental Science*, 2018, **39** (9): 4026-4033.
- [22] 梁晓宇, 单春艳, 孟瑶, 等. 唐山一次冬季重污染过程污染特征及成因分析[J]. *中国环境科学*, 2019, **39**(5): 1804-1812.
Liang X Y, Shan C Y, Meng Y, *et al.* Characteristics and formation mechanism of a heavy winter air pollution event in Tangshan [J]. *China Environmental Science*, 2019, **39** (5): 1804-1812.
- [23] Chow J C, Watson J G, Lu Z Q, *et al.* Descriptive analysis of PM_{2.5} and PM₁₀ at regionally representative locations during SIVAQS/AUSPEX [J]. *Atmospheric Environment*, 1996, **30** (12): 2079-2112.
- [24] Tan J H, Duan J C, Chai F H, *et al.* Source apportionment of size segregated fine/ultrafine particle by PMF in Beijing [J]. *Atmospheric Research*, 2014, **139**: 90-100.
- [25] Liu B S, Yang J M, Yuan J, *et al.* Source apportionment of atmospheric pollutants based on the online data by using PMF and ME2 models at a megacity, China [J]. *Atmospheric Research*, 2017, **185**: 22-31.
- [26] 王琴, 张大伟, 刘保献, 等. 基于PMF模型的北京市PM_{2.5}来源的时空分布特征[J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(10): 2917-2924.
Wang Q, Zhang D W, Liu C X, *et al.* Spatial and temporal variations of ambient PM_{2.5} source contributions using positive matrix factorization [J]. *China Environmental Science*, 2015, **35** (10): 2917-2924.
- [27] 王成, 闫雨龙, 谢凯, 等. 阳泉市秋冬季PM_{2.5}化学组分及来源分析[J]. *环境科学*, 2020, **41**(3): 1036-1044.
Wang C, Yan Y L, Xie K, *et al.* Analysis of chemical components and sources of PM_{2.5} during autumn and winter in Yangquan city [J]. *Environmental Science*, 2020, **41** (3): 1036-1044.
- [28] Lee S, Liu W, Wang Y H, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5}: comparing PMF and CMB results for four ambient monitoring sites in the southeastern United States [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(18): 4126-4137.
- [29] 田莎莎, 张显, 卞思思, 等. 沈阳市PM_{2.5}污染组分特征及其来源解析[J]. *中国环境科学*, 2019, **39**(2): 487-496.
Tian S S, Zhang X, Bian S S, *et al.* Characteristics of PM_{2.5} pollution components and their sources in Shenyang [J]. *China Environmental Science*, 2019, **39**(2): 487-496.

CONTENTS

Industrial Emission Characteristics and Control Countermeasures of VOCs in Chinese Rapid Economic Development Areas	MENG Bo-wen, LI Yong-bo, MENG Jing, <i>et al.</i>	(1023)
VOCs Emission Inventory and Variation Characteristics of Artificial Sources in Hubei Province in the Yangtze River Economic Belt	DAI Ling-wen, MENG Jing, LI Qian-qian, <i>et al.</i>	(1039)
Sources and Distribution Characteristics of HCBd in Rapid Economic Development Areas	TAO Yu-ming, MENG Jing, LI Qian-qian, <i>et al.</i>	(1053)
Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Soil of China (2000-2020): Temporal and Spatial Distribution, Influencing Factors	MA Yan, CHENG Lu, RUAN Zi-yuan, <i>et al.</i>	(1065)
Relationships Between Microplastic and Surrounding Soil in an E-Waste Zone of China	CHAI Bing-wen, YIN Hua, WEI Qiang, <i>et al.</i>	(1073)
Analysis of the Spatial Distribution of Heavy Metals in Soil from a Coking Plant and Its Driving Factors	GU Gao-quan, WAN Xiao-ming, ZENG Wei-bin, <i>et al.</i>	(1081)
Source Apportionment and Spatial Distribution Simulation of Heavy Metals in a Typical Petrochemical Industrial City	SUN Xue-fei, ZHANG Li-xia, DONG Yu-long, <i>et al.</i>	(1093)
Heavy Metal Contents of Soil and Surface Dust and Its Ecological Risk Analysis in a Multifunctional Industrial Park	ZENG Wei-bin, GU Gao-quan, WAN Xiao-ming, <i>et al.</i>	(1105)
Geochemical Patterns and Source Analysis of Soil Heavy Metals in an Iron and Manganese Ore Area of Longyan City	WANG Rui, CHEN Nan, ZHANG Er-xi, <i>et al.</i>	(1114)
Application Case of Accurate Site Investigation with Life-Cycle Conceptual Site Model Development	LI Pei-zhong, WU Nai-jin, WANG Hai-jian, <i>et al.</i>	(1123)
Levels and Risk Assessment of Short and Medium-Chain Chlorinated Paraffins in Soil from Paper Mill Area	ZHANG Pei-xuan, GAO Li-rong, SONG Shi-jie, <i>et al.</i>	(1131)
Characterization and Health Risks of PCDD/Fs, PCBs, and PCNs in the Soil Around a Typical Secondary Copper Smelter	HU Ji-cheng, WU Jing, XU Chen-yang, <i>et al.</i>	(1141)
Effect of Citric Acid and Phosphorus Coexistence on Cadmium Adsorption by Soil	SONG Zi-teng, ZUO Ji-chao, HU Hong-qing, <i>et al.</i>	(1152)
Uptake and Accumulation of Cadmium and Zinc by Two Energy Grasses; A Field Experiment	ZHENG Rui-lun, SHI Dong, LIU Wen-ju, <i>et al.</i>	(1158)
Bioaccumulation and Translocation Characteristics of Heavy Metals in a Soil-Maize System in Reclaimed Land and Surrounding Areas of Typical Vanadium-Titanium Magnetite Tailings	SUN Hou-yun, WEI Xiao-feng, SUN Xiao-ming, <i>et al.</i>	(1166)
Cd Accumulation Characteristics in Different Populations of <i>Hytololephium spectabile</i> Under Salt Stress	GUO Jun-mei, YANG Jun-xing, YANG Jun, <i>et al.</i>	(1177)
Effect of Water Regimes on Pb and Cd Immobilization by Biochar in Contaminated Paddy Soil	TANG Jia-qing, ZHANG Xu, HUANG Guo-yong, <i>et al.</i>	(1185)
Effects of Chitosan-modified Biochar on Formation of Methylmercury in Paddy Soils and Its Accumulation in Rice	YANG Xue-ling, WANG Ming-xing, XU Guo-min, <i>et al.</i>	(1191)
Effects of Chromium Pollution on Soil Bacterial Community Structure and Assembly Processes	YU Hao, AN Yi-jun, JIN De-cai, <i>et al.</i>	(1197)
Analysis of Changes and Factors Influencing Air Pollutants in the Beijing-Tianjin-Hebei Region During the COVID-19 Pandemic	ZHAO Xue, SHEN Nan-chi, LI Ling-jun, <i>et al.</i>	(1205)
Impact of Pollutant Emission Reduction on Air Quality During the COVID-19 Pandemic Control in Early 2020 Based on RAMS-CMAQ	LIU Hou-feng, XU Wei, WEI Min, <i>et al.</i>	(1215)
Light-absorbing Properties and Sources of PM _{2.5} Organic Components at a Suburban Site in Northern Nanjing	SHANG Yue, YU Huan, MAO Yu-hao, <i>et al.</i>	(1228)
Pollution Characteristics and Chromophore Types of Brown Carbon in Xi'an	CHEN Qian, CHEN Qing-cai, <i>et al.</i>	(1236)
Source and Health Risk Assessment of PM _{2.5} -Bound Metallic Elements in Road Dust in Zibo City	GUO Qing-yuan, BAI Wen-yu, ZHAO Xue-yan, <i>et al.</i>	(1245)
Health Benefit Assessment of PM _{2.5} Pollution Control in Beijing	DU Pei, WANG Jian-zhou, <i>et al.</i>	(1255)
Seasonal Characteristics of Air Pollutant Sources and Transport Pathways in Xining City	LIU Na, YU Ye, MA Xue-qian, <i>et al.</i>	(1268)
Concentrations and Patterns of Atmospheric Particulate Nitrogen and Phosphorus During Different Weather Conditions in Qingdao Coastal Region	YUAN Gang, QI Jian-hua, DING Xue, <i>et al.</i>	(1280)
Characterization of Volatile Organic Compounds (VOCs) Using Mobile Monitoring Around the Industrial Parks in the Yangtze River Delta Region of China	WANG Hong-li, GAO Ya-qin, JING Sheng-ao, <i>et al.</i>	(1298)
Characteristics and Cause Analysis of Heavy Air Pollution in a Mountainous City During Winter	LIU Zhuo-cheng, NIU Yue-yuan, WU Jing, <i>et al.</i>	(1306)
Gridded Emission Inventories of Major Criteria Air Pollutants and Source Contributions in Lan-Bai Metropolitan Area, Northwest China	WANG Wen-peng, WANG Zhan-xiang, LI Ji-xiang, <i>et al.</i>	(1315)
VOCs Removal and Emission Monitoring of Beijing Bulk Gasoline Terminals in 2012-2019	HUA Lan-ying, CUI Tong, LI Jin-xiang, <i>et al.</i>	(1328)
Emission Inventory of Air pollutants for the Harmless Treatment of Municipal Solid Waste	MA Zhan-yun, JIANG Yu-cong, REN Jia-xue, <i>et al.</i>	(1333)
Response of Bacteriophagepolys to Hypoxic Conditions in the Surface Sediments of the Yangtze Estuary and Its Adjacent Areas	YIN Mei-ling, DUAN Li-qin, SONG Jin-ming, <i>et al.</i>	(1343)
Human Health Risk Assessment of Phenol in Poyang Lake Basin	XU Qian-yun, AI Shun-hao, GAO Xiang-yun, <i>et al.</i>	(1354)
Spatial-Temporal Variation of Water Environment Quality and Pollution Source Analysis in Hengshui Lake	LIU Wei-wei, GUO Zi-liang, WANG Da-an, <i>et al.</i>	(1361)
Composition and Distribution Characteristics of Microplastics in Danjiangkou Reservoir and Its Tributaries	PAN Xiong, LIN Li, ZHANG Sheng, <i>et al.</i>	(1372)
Temporal and Spatial Evolution of Storm Runoff and Water Quality Assessment in Jinpen Reservoir	HUANG Cheng, HUANG Ting-lin, LI Yang, <i>et al.</i>	(1380)
Influence of Storm Runoff on the Spectral Characteristics of Dissolved Organic Matter (DOM) in a Drinking Water Reservoir During the Flood Season	LI Cheng-yao, HUANG Ting-lin, WEN Cheng-cheng, <i>et al.</i>	(1391)
Distribution Characteristics of Carbon, Nitrogen, and Phosphorus Bearing Pollutants in the Ancient Town Rivers of Suzhou	BAI Dong-rui, ZHANG Tao, CHEN Tan, <i>et al.</i>	(1403)
Chemical Characteristics and Causes of Groups Water in Niangziguan Spring	TANG Chun-lei, ZHAO Chun-hong, SHEN Hao-yong, <i>et al.</i>	(1416)
Adsorption Behavior of Phosphate by CaO ₂ Remolded Sediment	XU Chu-tian, LI Da-peng, WANG Zi-liang, <i>et al.</i>	(1424)
Nitrogen and Phosphorus Removal in Surface Flow Constructed Wetland Planted with <i>Myriophyllum elatinooides</i> Treating Swine Wastewater in Subtropical Central China	WANG Li-sha, LI Xi, LI Yu-yuan, <i>et al.</i>	(1433)
Accelerated Degradation of Aqueous Recalcitrant Iodinated Contrasting Media Using a UV/SO ₃ ²⁻ Advanced Reduction Process	LIU Zi-qi, QIU Fu-guo, LAI Man-ting, <i>et al.</i>	(1443)
Degradation of Dye Rhodamine B by Solar Thermally Activated Persulfate	MA Meng, XU Lu, JIN Xin, <i>et al.</i>	(1451)
One-step Preparation of Lanthanum-Magnesium Ferrite and Its Phosphate Adsorption Capacity in Aqueous Solutions	BAI Run-ying, SONG Bo-wen, ZHANG Yu, <i>et al.</i>	(1461)
Pollutant Removal Efficiency of Different Units Along a Mature Landfill Leachate Treatment Process in a Membrane Biological Reactor-Nanofiltration Combined Facility	SHAO Li-ming, DENG Ying-tao, QIU Jun-jie, <i>et al.</i>	(1469)
Biological Conversion Mechanism of Sulfate Reduction Ammonium Oxidation in ANAMMOX Consortia	BI Zhen, DONG Shi-yu, HUANG Yong, <i>et al.</i>	(1477)
Microbial Community Structure of Waste Water Treatment Plants in Different Seasons	HE Yun, LI Kui-xiao, WANG Jia-wei, <i>et al.</i>	(1488)
Organ-Specific Accumulation and Toxicokinetics of Ephedrine in Adult Zebrafish (<i>Danio rerio</i>)	YIN Xing-xing, GUO Chang-sheng, DENG Yang-hui, <i>et al.</i>	(1496)
Characteristics and Evaluation of Soil Rare Earth Element Pollution in the Bayan Obo Mining Region of Inner Mongolia	WANG Zhe, ZHAO Ying-chen, LUO Yi-fei, <i>et al.</i>	(1503)
Factors Affecting the Translocation and Accumulation of Cadmium in a Soil-Crop System in a Typical Karst Area of Guangxi Province, China	MA Hong-hong, PENG Min, GUO Fei, <i>et al.</i>	(1514)
Effects of Superparamagnetic Nanomaterials on Soil Microorganisms and Enzymes in Cadmium-Contaminated Paddy Fields	FANG Dan-dan, ZHANG Li-zhi, WANG Qiang, <i>et al.</i>	(1523)
Effects of Water Management and Silicon Application on Iron Plaque Formation and Uptake of Arsenic and Cadmium by Rice	CHEN Jia, ZHAO Xiu-lan, <i>et al.</i>	(1535)
Biological Effect of Tetracycline Antibiotics on a Soil-Lettuce System and Its Migration Degradation Characteristics	WANG Wei-zhong, CHI Sun-lin, XU Wei-hong, <i>et al.</i>	(1545)
Effect of Plastic Film Mulching on Methane and Nitrous Oxide Emissions from the Ridges and Furrows of a Vegetable Field	XIONG Wei-xia, JIANG Chang-sheng, ZHAO Zhong-jing, <i>et al.</i>	(1559)
Effects of Biochar and Straw on Soil N ₂ O Emission from a Wheat Maize Rotation System	TANG Zhan-ming, LIU Xing-ren, ZHANG Qing-wen, <i>et al.</i>	(1569)
Overview on Habitat Monitoring Methods Under Watershed Ecological Space Management	YIN Kun, LIU Hai-jiang, WANG Guang, <i>et al.</i>	(1581)