

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

PM_{2.5}污染对我国健康负担和经济损失的影响

李勇, 廖琴, 赵秀阁, 白云, 陶燕

PM_{2.5}

• 中风

PM_{2.5}控制目标
健康经济效益

• 冠心病

• 呼吸系统疾病

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年4月

第42卷 第4期
Vol.42 No.4

目次

京津冀及周边地区秋冬季大气污染物排放变化因素解析	唐倩, 郑博, 薛文博, 张强, 雷宇, 贺克斌 (1591)
珠江三角洲大气光化学氧化剂(O_3)与 $PM_{2.5}$ 复合超标污染特征及气象影响因素	颜丰华, 陈伟华, 常鸣, 王伟文, 刘永林, 钟部卿, 毛敬英, 杨士士, 王雪梅, 刘焯芳 (1600)
广州市臭氧污染溯源:基于拉格朗日光化学轨迹模型的案例分析	裴成磊, 牟江山, 张英南, 申恒青, 陈玉茹, 黄杰生, 丁浩然, 李成柳 (1615)
运城秋冬季大气细粒子化学组成特征及来源解析	赵清, 李杏茹, 王国选, 张兰, 杨阳, 刘永桥, 孙宁宁, 黄禹, 雷文凯, 刘新罡 (1626)
降雪后24 h内大气中多环芳烃的变化规律	范慧泽, 祝富杰, 胡鹏持, 马万里 (1636)
道路扬尘中 $PM_{2.5}$ 粒度乘数的测定方法及特征	李冬, 陈建华, 张月帆, 高忠阳, 高健, 张凯, 竹双 (1642)
铸造行业挥发性有机物排放成分谱及影响	高爽, 李时蓓, 伯鑫, 李厚宇, 舒木水, 谈默, 屈加豹, 雷团团 (1649)
燃煤电厂和垃圾焚烧电厂燃烧产物中卤代多环芳烃的赋存特征和毒性风险	倪秀峰, 王儒威, 蔡飞旋, 蔡家伟 (1660)
兰州市春季微生物气溶胶浓度、粒径及细菌群落结构分布特性	赵炜, 李杰, 谢慧娜, 张莉红, 王亚娥 (1668)
大气污染排放格局优化方法及案例	李敏辉, 廖程浩, 常树诚, 张永波, 杨柳林, 曾武涛 (1679)
$PM_{2.5}$ 污染对我国健康负担和经济损失的影响	李勇, 廖琴, 赵秀阁, 白云, 陶燕 (1688)
基于多同位素的不同土地利用区域水体硝酸盐源解析	金赞芳, 胡晶, 吴爱静, 李光耀, 张文辽, 李非里 (1696)
新疆叶尔羌河流域地表水水化学特征及控制因素	张杰, 周金龙, 曾妍妍, 涂治, 纪媛媛, 孙英, 雷米 (1706)
漓江流域水体中重金属污染特征及健康风险评价	黄宏伟, 肖河, 王敦球, 席北斗, 孙晓杰, 李洁月, 李向奎 (1714)
近20年来鄱阳湖流域泛滥平原沉积物微量元素含量与污染变化	李括, 杨柯, 彭敏, 刘飞, 杨峥, 赵传冬, 成杭新 (1724)
汾河流域浅层地下水水化学和氢氧稳定同位素特征及其指示意义	刘鑫, 向伟, 司炳成 (1739)
会仙岩溶湿地地下水主要离子特征及成因分析	李军, 邹胜章, 赵一, 赵瑞科, 党志文, 潘民强, 朱丹尼, 周长松 (1750)
贵州威宁草海流域地下水水化学特征及无机碳通量估算	曹星星, 吴攀, 杨诗笛, 刘闪, 廖家豪 (1761)
辽宁典型海域表层海水中在用化学农药浓度水平与潜在生态风险	杜静, 胡超魁, 解怀君, 田甲申, 李爱, 谢晴, 吴金浩, 宋伦 (1772)
辽河流域土壤中微(中)塑料的丰度、特征及潜在来源	韩丽花, 徐笠, 李巧玲, 陆安祥, 殷敬伟, 田佳宇 (1781)
津冀辽地区典型湖库沉积物PAHs污染特征及来源解析	吴鹏, 鲁逸人, 李慧, 郑天娇子, 程云轩, 焦立新 (1791)
环太湖河流及湖体中有机磷酸酯的污染特征和风险评价	张文萍, 张振飞, 郭昌胜, 吕佳佩, 邓洋慧, 张恒, 徐建 (1801)
太湖表层水体典型抗生素时空分布和生态风险评价	丁剑楠, 刘舒娇, 邹杰明, 石溪哲, 邹华, 史红星 (1811)
淮河流域南四湖可挥发性有机物污染特征及风险评价	程云轩, 高秋生, 李捷, 李慧, 吴鹏, 焦立新 (1820)
三亚河沉积物PAHs和PCBs的分布、来源及风险评价	詹咏, 韦婷婷, 叶汇彬, 董滨, 张领军, 黄远东 (1830)
三峡库区非点源污染氮磷负荷时空变化及其来源解析	李明龙, 贾梦丹, 孙天成, 褚琳, 李朝霞 (1839)
反硝化细菌、硝酸钙和锆改性沸石联用对底泥中氮磷迁移转化的影响及硝态氮释放风险评估	辛慧敏, 李建伟, 詹艳慧 (1847)
锁磷剂联合好氧反硝化菌修复富营养化水体	李炳堂, 周志勤, Ravi Naidu, 胡智泉, 郭大滨, 陈嘉鑫 (1861)
太湖蓝藻胞内有机质的微生物降解	张巧颖, 孙伟, 杜瑛珣, 巩小丽 (1870)
青藏高原拉萨河流域附石藻类群落结构特征及其驱动因子分析	魏俊伟, 李鸿然, 汪兴中, 齐文华, 汪洋, 赵彬洁, 谭香, 张全发 (1879)
基于EEMs与UV-vis分析苏州汛期景观河道中DOM光谱特性与来源	何杰, 朱学惠, 魏彬, 李学艳, 汤如涛, 林欣, 周飞, 司壮壮 (1889)
老化前后轮胎磨损微粒与聚氯乙烯微粒对抗生素的吸附-解吸行为	范秀磊, 邹峰峰, 刘加强, 李莹, 刘强, 侯俊 (1901)
磁性铁基改性生物炭去除水中氨氮	王芳君, 桑倩倩, 邓颖, 赵元添, 杨娅, 陈永志, 马娟 (1913)
城市污水处理厂进水氨氧化菌对活性污泥系统的季节性影响	于莉芳, 汪宇, 滑思思, 李韧, 张兴秀, 惠晓飞 (1923)
基于粒径分化的厌氧氨氧化污泥性能与微生物多样性分析	王晓瞳, 杨宏 (1930)
ClO_2 消毒工艺对污水处理厂出水超级耐药基因的影响	程春燕, 李海北, 梁永兵, 师丹阳, 陈郑珊, 杨栋, 焦巧瑞, 邵一帆, 李君文, 金敏 (1939)
微塑料PES与2,4-DCP复合污染对厌氧污泥胞外聚合物与微生物群落的影响	林旭萌, 宿程远, 吴淑敏, 黄嫒, 邓雪, 林香凤, 黄尊, 魏佳林 (1946)
城镇污水处理厂污泥泥质监测及资源化风险评价	李娟, 李金香, 杨妍妍 (1956)
气候变暖对冻结期黑土碳氮循环关键过程及指标的影响	王子龙, 刘传兴, 姜秋香, 李世强, 柴迅 (1967)
沼液秸秆联用对滨海围垦田土壤重金属迁移及形态变化的影响	王伟, 周珺楠, 汤逸帆, 申建华, 韩建刚 (1979)
地块尺度城市土地质量地球化学调查方法:以雄安新区起步区为例	周亚龙, 郭志娟, 刘飞, 韩伟, 孔牧, 赵传冬, 刘爱涛, 彭敏, 王乔林, 王成文 (1989)
雄安新区农田土壤-农作物系统重金属潜在生态风险评估及其源解析	周亚龙, 杨志斌, 王乔林, 王成文, 刘飞, 宋云涛, 郭志娟 (2003)
地质背景农田土壤下不同水稻品种对Cd的累积特征及影响因素	代子雯, 方成, 孙斌, 魏志敏, 胡锋, 李辉信, 徐莉 (2016)
不同外源硒对镉污染土壤中小白菜生长及镉吸收的影响	刘杨, 齐明星, 王敏, 刘娜娜, Pornpimol Kleawsampanjai, 周菲, 翟辉, 王梦柯, 任蕊, 梁东丽 (2024)
影响不同农作物镉富集系数的土壤因素	陈洁, 王娟, 王怡雯, 姚启星, 苏德纯 (2031)
Cd胁迫下不同外源植物激素对水稻幼苗抗氧化系统及Cd吸收积累的影响	张盛楠, 黄益宗, 李颜, 保琼莉, 黄永春 (2040)
不同有机物料对水稻根表铁膜及砷镉吸收转运的影响	李开叶, 赵婷婷, 陈佳, 赵秀兰 (2047)
铜尾矿坝及其周边土壤真菌群落结构与功能多样性	陈建文, 张红, 李君剑, 刘勇 (2056)
微生物群落驱动AM真菌、生物炭及联合改良沙化土壤作用潜力	张哲超, 杨久扬, 郝百惠, 郝利君, 罗俊清, 李雪, 刁风伟, 张璟霞, 郭伟 (2066)
动物粪便施肥措施促进耐药基因在粪便-土壤-蔬菜之间的散播	张红娜, 董梦洁, 周玉法, 孙佳欣, 常美洁, 翟真真 (2080)
区域水生态文明建设绩效评价及障碍诊断模型的建立与应用	万炳彤, 鲍学英, 赵建昌, 李爱春 (2089)
《环境科学》征订启事(1738) 《环境科学》征稿简则(1790) 信息(1860, 1878, 1900)	

运城秋冬季大气细粒子化学组成特征及来源解析

赵清¹, 李杏茹^{2*}, 王国选³, 张兰², 杨阳², 刘水桥¹, 孙宁宁², 黄禹¹, 雷文凯¹, 刘新罡^{4*}

(1. 首都师范大学资源环境与旅游学院, 北京 100048; 2. 首都师范大学化学系, 北京 100048; 3. 山西省运城生态环境监测中心, 运城 044000; 4. 北京师范大学环境学院, 北京 100875)

摘要: 为研究运城市秋冬季细颗粒物($PM_{2.5}$)的化学组成特征和污染来源贡献, 于2018年10月15日至2019年3月15日利用四通道小流量颗粒物采样器在运城市对大气 $PM_{2.5}$ 样品进行了连续采集. 主要对水溶性离子、元素碳、有机碳和金属元素等化学成分进行了分析, 并结合颗粒物化学质量重构法和正定矩阵因子分解模型(PMF)深入探讨. 结果表明, 采样期间 $PM_{2.5}$ 质量浓度范围为 $29.37 \sim 370.11 \mu g \cdot m^{-3}$, 期间有101 d高于我国《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)中的二级标准, 超标率为70.63%, 说明秋冬季运城市大气污染较为严重. 按照空气质量指数(air quality index, AQI)将采集样品分类为清洁、轻-中度污染和重度-严重污染, 水溶性离子、有机碳、元素碳和金属元素分别占总 $PM_{2.5}$ 浓度的40%、19%、5%、7% (清洁天), 46%、18%、4%、5% (轻-中度污染)和46%、21%、4%、4% (重度-严重污染). 二次离子 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 是水溶性离子主要成分, 分别占总离子浓度的81% (清洁天)、87% (轻-中度污染)和87% (重度-严重污染). 采样期间OC/EC的值分别为3.78 (清洁天)、4.02 (轻度-中度污染)和5.37 (重度-严重污染). 随着污染程度的加剧, 大气中二次有机气溶胶的污染情况也越发严重. 此外, 随着大气污染程度的加深, Fe和Cr元素浓度逐渐下降, 而其余金属元素的浓度总体呈上升趋势. 化学质量重构结果表明在运城市的 $PM_{2.5}$ 中, 二次无机盐、海盐、重金属、矿物尘、建筑尘、有机物和元素碳的质量分数分别为40%、1%、1%、5%、1%、32%和5%, 且随着污染的加剧, 二次无机盐的占比有所升高, 矿物尘的占比降低. PMF分析结果表明, 二次相关源、燃煤源、交通源与生物质燃烧及二次有机物是运城市灰霾暴发的主要原因.

关键词: 细粒子; 质量浓度; 化学成分; 质量重构; 正定矩阵因子分解模型(PMF)

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)04-1626-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.202008304

Chemical Composition and Source Analysis of $PM_{2.5}$ in Yuncheng, Shanxi Province in Autumn and Winter

ZHAO Qing¹, LI Xing-ru^{2*}, WANG Guo-xuan³, ZHANG Lan², YANG Yang², LIU Shui-qiao¹, SUN Ning-ning², HUANG Yu¹, LEI Wen-kai¹, LIU Xin-gang^{4*}

(1. College of Resource Environment and Tourism, Capital Normal University, Beijing 100048, China; 2. Department of Chemistry, Capital Normal University, Beijing 100048, China; 3. Yuncheng Ecological Environment Monitoring Center, Shanxi Province, Yuncheng 044000, China; 4. School of Environment, Beijing Normal University, Beijing 100875, China)

Abstract: In order to reveal the chemical composition characteristics and pollution sources of fine particulate matter ($PM_{2.5}$) in autumn and winter in Yuncheng, $PM_{2.5}$ samples were continuously collected using a four-channel small-flow particulate sampler from October 15, 2018 to March 15, 2019. The study predominantly analyzed the chemical components of water-soluble ions, elemental carbon, organic carbon, and metal elements. Additionally, the chemical mass reconstruction method of particulate matter and the positive matrix factorization model (PMF) were combined for an in-depth discussion. During the sample period, the $PM_{2.5}$ mass concentrations range was $29.37 \sim 370.11 \mu g \cdot m^{-3}$, and 101 days during the sampling period exhibited concentrations that were higher than the secondary standard in China's Ambient Air Quality Standards (GB 3095-2012), with an exceeding rate of 70.63%. These results indicate that the air pollution in Yuncheng in autumn and winter is serious. According to the air quality index (AQI), the collected samples are classified as clean, light-moderate pollution, and heavy-severe pollution. Water-soluble ions, OC, EC and metal elements account for 40%, 19%, 5%, and 7% on clean days, 46%, 18%, 4%, and 5% on days with light-moderate pollution, and 46%, 21%, 4%, and 4% on days with heavy-severe pollution, respectively. Secondary ions NO_3^- , SO_4^{2-} , and NH_4^+ are the primary components of water-soluble ions, accounting for 81% (clean days), 87% (light-moderate pollution), and 87% (heavy-severe pollution) of the total ion concentration, respectively. The OC/EC ratios during the sampling period were 3.78 (clean days), 4.02 (light-moderate pollution), and 5.37 (heavy-severe pollution). With the intensification of pollution, the pollution of secondary organic aerosols in the atmosphere becomes increasingly serious. In addition, as the air pollution increased, the concentration of Fe and Cr elements gradually decreased, while the concentration of other metal elements showed an overall upward trend. The results of the chemical mass reconstruction demonstrate that among the different pollution levels of atmospheric $PM_{2.5}$ in Yuncheng, the mass percentages of secondary inorganic salt, sea salt, heavy metals, mineral dust, construction dust, organic matter, and elemental carbon were 36%, 2%, 2%, 8%, 1%, 33%, and 5% (clean days), 41%, 1%, 1%, 5%, 0.01%, 31%, and 5% (light-moderate pollution), and 41%

收稿日期: 2020-08-31; 修订日期: 2020-09-24

基金项目: 大气重污染成因与治理攻关项目(DQGG-05-32)

作者简介: 赵清(1996~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气化学, E-mail: 384287651@qq.com

* 通信作者, E-mail: lixr@cnu.edu.cn; lxgstar@126.com

, 1%, 1%, 4%, 0.004%, 34%, and 4% (heavy-severe pollution). The proportion of secondary inorganic ions increased and mineral dust decreased with the deterioration of air quality. The PMF analysis results suggest that secondary related sources, coal combustion sources, vehicle exhaust sources, biomass burning, and secondary organic matter are the predominant sources of $\text{PM}_{2.5}$ during serious air pollution in Yuncheng.

Key words: fine particle; mass concentration; chemical composition; chemical mass reconstruction; positive matrix factorization model (PMF)

随着我国经济的高速发展和城市化进程的加快,大量的人为污染物排入大气,导致城市大气环境质量急剧恶化.为了改善我国环境空气质量,降低污染程度,国家启动大气重污染成因与治理攻关项目,并陆续出台了一系列政策法规^[1~3],其中汾渭平原 11 城市是继“2+26”城市之后,进行联防联控的重点区域,以期改善其整体空气质量.因此本研究聚焦于晋南和晋、陕、豫“黄河金三角”地区重要的中心城市——运城市,对其秋冬季大气 $\text{PM}_{2.5}$ 的化学组成及其来源进行深入分析,以期当地政府制定灵活、高效和科学地应对重污染的措施提供科学依据,也为汾渭平原开展大气污染联防联控提供参考.

在国家的大力支持下,近几年来开展了大量关于 $\text{PM}_{2.5}$ 的研究,内容包括其化学组成^[4~7]、来源解析^[8~10]及污染成因^[11,12]等方面. $\text{PM}_{2.5}$ 的化学成分较为复杂,其中水溶性无机离子 (water-soluble inorganic ions, WSIs)、元素碳 (elemental carbon, EC)、有机碳 (organic carbon, OC) 和金属元素是其最为重要的组成部分. WSIs 通常可以占到 $\text{PM}_{2.5}$ 质量的 30%~80%^[13],且由于其自身较强的吸湿性和溶解性,通常被认为是引发灰霾的主要化学成分.许多研究发现,二次无机离子 (SNA, 即 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+) 在 WSIs 中占据重要地位. Zhao 等^[14] 的研究发现嘉兴地区 WSIs 占 $\text{PM}_{2.5}$ 质量的 34.3%~49.6%,其中 SNA 占总质量的 32.4%~47.0%. Huang 等^[15] 对武汉市的研究发现 WSIs 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中的占比为 $(61.9 \pm 13.4)\%$, SNA 在 WSIs 中的占比高达 $(79.7 \pm 11.1)\%$. 此外,碳质组分对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献也较为突出,其主要包括 OC 和 EC. EC 主要是由化石和生物燃料在不完全燃烧过程中直接排放的^[16],有较强的稳定性、吸附性和吸光能力,被广泛认为是一次污染的示踪物.而 OC 除初级来源外还具有二次来源,它主要由成千上万种有机物构成,其中包含大量致癌、致畸和致突变等对人体有害的物质^[17]. 金属元素在 $\text{PM}_{2.5}$ 中含量虽小,但其毒性强、极易吸附于颗粒物表面,可通过呼吸作用随着颗粒物进入体内并大量富集,从而严重影响人体健康,所以人们仍需对其环境效益进行密切关注^[18~20]. 王跃思等^[21] 的研究发现,近年来我国环境空气颗粒物年平均浓度整体呈明显下降趋势,但汾渭平原地区大

气 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度负荷依然较高,秋冬季重霾污染频发.曹云擎等^[8] 对“2+26”城市一次污染过程 $\text{PM}_{2.5}$ 化学组分和来源解析的研究表明, $\text{PM}_{2.5}$ 本地排放贡献为 10%~47%,外地贡献为 15%~68%，“2+26”城市以外区域的贡献为 14%~53%；本地源中以民用源和工业源为主.李雁宇等^[22] 对汾渭平原及其周边地区大气颗粒物的传输特征的研究发现,秋冬季汾渭平原及其周边地区存在偏西和偏东北两条主要的传输路径.然而在关于汾渭平原的研究中,大量集中在西安^[23,24] 等大城市,对其他城市的还不多见.

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究采样点位于运城市地区技校工学院教学楼顶,距离地面约 20 m,位于国控点附近 ($35^\circ 02' 11''$ N, $110^\circ 58' 48''$ E, 图 1). 运城市北依吕梁山与临汾市接壤,西、南与陕西省渭南市、河南省三门峡市隔黄河相望,地形主要属盆地地形,东峙中条山,北依稷王山,中部地势开阔平坦.

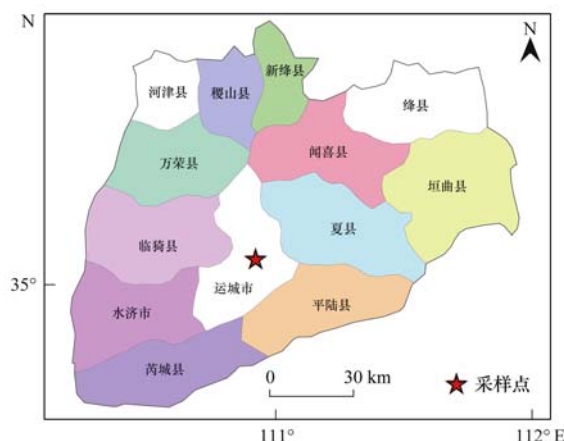


图 1 采样点位置示意

Fig. 1 Schematic of sampling point location

样品的采集利用四通道大气颗粒物采样仪 (武汉天虹, TH-16A), 采样流量为 $16.67 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$. 采样周期为 2018 年 10 月 15 日至 2019 年 3 月 15 日, 采集时间为每日 10:00 至次日 09:00, 分别采用聚四氟乙烯 (PALL) 和石英纤维滤膜 (PALL). 在采样前, 石英纤维滤膜用铝箔包裹, 在 500°C 马弗炉中灼烧 4 h 以去除有机物. 在采样前后将两种滤膜放入恒温恒湿箱 (SPX-250C), 在湿度为 50%、温度为 25°C 的情况下平

衡 24 h,用十万分之一的电子天平进行称重.两种滤膜在采样结束后放入冰箱保存,以便后续分析.

1.2 样品分析

水溶性无机离子:取 1/2 聚四氟乙烯滤膜,使用 40 mL 去离子水(电阻率 18.2 MΩ·cm)超声浸提颗粒物中水溶性成分,利用离子色谱仪(Dionex ICS-1100)测量浸提液中 NH_4^+ 、 Ca^{2+} 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 F^- 、 Cl^- 、 NO_2^- 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 共 10 种离子的浓度.其中,取 1/2 面积的空白膜也用相同的超声和分析方法进行处理,以其 3 倍空白膜的标准偏差作为检出限,上述 10 种离子的检测限分别为 0.003、0.005、0.001、0.001、0.001、0.001、0.041、0.001、0.001、0.027 和 0.013 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,并且标准曲线的 R^2 均达到 0.99 以上,线性良好.采用基质加标法分析实验回收率,结果显示各水溶性离子回收率均达到 94% 以上.最后将离子的溶液浓度通过水重、采样流速和持续时间换算成大气浓度^[25].

无机元素分析:取 1/2 聚四氟乙烯滤膜放入消解罐中,依次加入 4.5 mL HNO_3 (Merk)、1.5 mL HCl (Merk) 和 0.25 mL HF (Merk),采用逐步升温的方法进行微波消解(CEM-MARS);将消解完全的样品定容至 100 mL 后使用 ICP-MS (Agilent 8800) 进行元素含量的分析从而获得 Cu、Pb、Zn、Cd、As、K、Na、Ca、Mg、Al、Mn、Fe、Co、Ni、Cr、V、Mo 和 Ba 共 18 种元素的浓度.除个别元素(例如,As 的检

测限在 0.1 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$) 外,其它元素检出限均可达到 0.01 $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$. 仪器标准曲线的 R 值均达到 0.999 以上.另外,实验过程中每个样品重复测 3 次,根据内标元素的相对标准偏差(RSD)控制仪器的稳定性.将内标管放进 1 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 的内标溶液(Part #5183-4680, Agilent),每次数据采集结束后,检查内标元素(^{45}Sc 、 ^{73}Ge 、 ^{115}In 和 ^{209}Bi)的 RSD 值,各个 RSD 值小于 3%,否则重新采集数据.各个元素的回收率在 86%~112% 范围内.

元素碳与有机碳:本次研究中的 EC 与 OC 是利用热学光学有机碳/元素碳气溶胶分析仪(DRI Model 2001A)测定的,详细的测定方法见文献[26,27].

1.3 颗粒物质量重构方法

$\text{PM}_{2.5}$ 是含有不同成分的混合物,为了检验 $\text{PM}_{2.5}$ 中各种成分是否完全解析,故而对本研究所检测的化学成分进行质量重构,然后与 $\text{PM}_{2.5}$ 的质量浓度进行比较,从而得到结果.本研究将 $\text{PM}_{2.5}$ 分为二次无机盐(secondary inorganic salt, SIA)、海盐(sea salt, SS)、重金属(heavy metal, HM)、矿物尘(mineral dust, MIN)、建筑尘(construction dust, CD)、有机物(organic matter, OM)、EC 和未解析物质(UM)^[25,28].在以上 8 种物质中,HM 是用 Cu、Zn、Cr、V、Cd、Pb、Co、Ni、As 和 Ba 这 10 种金属元素的质量浓度加和所得,EC 是使用直接测量的结果,其它几种物质计算方法如表 1.

表 1 颗粒物质量平衡构建方法

Table 1 Construction method of mass balance of particulate matter

种类	计算公式	文献
二次无机盐(SIA)	$\text{SIA} = [\text{NSS}-\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-] + [\text{NH}_4^+] = [\text{SO}_4^{2-}] - 0.252[\text{Na}^+] + [\text{NO}_3^-] + [\text{NH}_4^+]$	[29]
海盐(SS)	$\text{SS} = [\text{Na}^+] + [\text{SS}-\text{Cl}^-] + [\text{SS}-\text{Mg}^{2+}] + [\text{SS}-\text{Ca}^{2+}] + [\text{SS}-\text{K}^+] + [\text{SS}-\text{SO}_4^{2-}] = 3.246[\text{Na}^+]$	[30]
矿物尘(MIN)	$\text{MIN} = \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{MgO} + \text{K}_2\text{O} + \text{CaO} + \text{Na}_2\text{O} + \text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{SiO}_2$ $= 1.89[\text{Al}] + 1.66[\text{Mg}]_n + 1.21[\text{K}] + 1.40[\text{Ca}]_n + 1.43[\text{Fe}]_n + 1.35[\text{Na}-\text{SS}-\text{Na}^+]$	[29]
建筑尘(CD)	$\text{CD} = 1.4[\text{Ca}-\text{SS}-\text{Ca}^{2+}-\text{Ca}_n] + 1.66[\text{Mg}-\text{SS}-\text{Mg}^{2+}-\text{Mg}_n]$	[31]
有机物(OM)	$\text{OM} = 1.6 \times \text{OC}$	[32]
未解析物质(UM)	$\text{UM} = \text{PM}_{2.5} - \text{SIA} - \text{SS} - \text{MIN} - \text{CD} - \text{OM} - \text{EC} - \text{TE}$	[29]

2 结果与讨论

2.1 细颗粒物质量浓度水平与化学组成

图 2 为运城市采样期间 $\text{PM}_{2.5}$ 的质量浓度,采样期间 $\text{PM}_{2.5}$ 的日平均浓度为 $(110.62 \pm 57.86) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,最大值出现在 1 月 13 日,浓度为 $370.11 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,为国家二级标准的 4.93 倍.按照环境空气质量标准(GB 3095-2012)规定的二类区细颗粒物 24 h 平均浓度限值计算,在采样期间运城市区的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度超过 24 h 平均浓度限值的百分比为 70.63%,表明运城市秋冬季大气污染比较严重.

根据环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)

(HJ 633-2012)将观测期间运城市大气污染状况进行分类(图 2),可以看出运城市秋冬季大气以良好和轻度污染为主,分别占 33% 和 27%,重度污染($200 < \text{AQI} < 300$)和严重污染($\text{AQI} > 300$)分别有 18 d 和 4 d,占总采样天数的 12% 和 3%.

在本研究中,主要分析 $\text{PM}_{2.5}$ 中的 WSIs、EC、OM 和金属元素,各类成分随时间变化见图 3.从中可知,运城市秋冬季大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中主要化学成分为 WSIs 和 OM,二者之和占 $\text{PM}_{2.5}$ 总浓度的 78%,因此应重点控制这两类物质及其前体物的排放.

在 10 种水溶性离子中, NO_3^- 、 NH_4^+ 和 SO_4^{2-} 是最主要的成分,占 WSIs 的 82%,占 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度

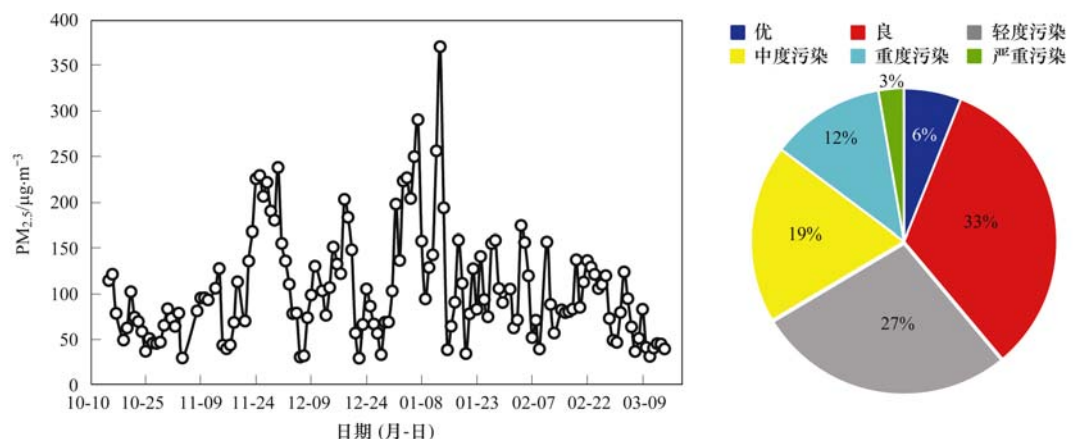


图 2 采样期间 $\text{PM}_{2.5}$ 日均质量浓度及不同污染程度占比

Fig. 2 Average daily $\text{PM}_{2.5}$ mass concentrations and the proportion of different pollution levels during the sampling period

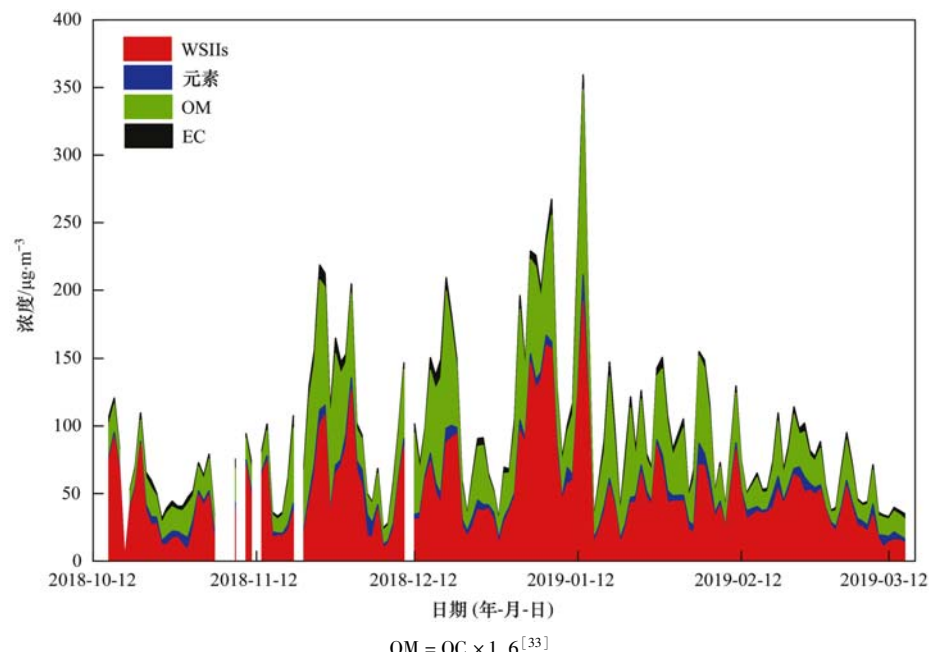


图 3 运城市各部分组成所占比例

Fig. 3 Proportion of various components for Yuncheng

的 31%. 有研究利用大气中 NO_3^- 与 SO_4^{2-} 的浓度比值来评价固定源和移动源对大气中 NO_x 和 SO_2 贡献量的大小^[34]. 计算结果表明,在采样期间运城市区两种离子比值均值为 2.18, 远远高于北京 (1.05)^[35]、杭州市 (0.63)^[36] 和沈阳市 (0.98)^[37] 等其他城市. 这一情况说明相比于固定源,交通源对大气污染的贡献更加突出. 当然这也可能与采样点的设置有一定关系,本研究采样站点周边道路交杂,千米之外还有国道存在,因此机动车尾气排放污染较为严重. K^+ 通常作为生物质燃烧源的指示离子^[38],而大气中的 Cl^- 主要来源于生物质燃烧,化石燃料燃烧,可能还有部分来自于海盐^[39],因运城属于内陆城市,受海盐影响较小,因此海盐对 K^+ 的贡献可以忽略. 相关性分析发现, Cl^- 与 K^+ 具有较高的相关性 [$r=0.82$, 见图 4(b)], 而样品的采样时间正值

秋冬季节,因此运城市区大气中的 Cl^- 与 K^+ 可能来源于生物质燃烧. 此外冬季供暖期间会大量燃煤,推测部分 Cl^- 受到燃煤烟气排放的贡献.

$\text{PM}_{2.5}$ 中的 EC 主要来源于一次排放,在大气中相对稳定^[40]; 而 OC 不仅仅来源于污染源直接排放的一次气溶胶中,还可能来源于大气中挥发性有机物经光化学反应而产生的二次有机气溶胶^[41]. 根据之前的报道,OC 与 EC 的比值为 1.0 ~ 4.2 时表明有机机动车的尾气排放^[42]; 比值为 2.5 ~ 10.5 表明存在燃煤排放^[43]; 比值为 3.8 ~ 13.2 表明存在生物质燃烧排放^[25,44~46]. 也有研究认为,当 OC/EC 大于 2.0 时,则认为大气中存在二次污染,且该比值越大,表示二次有机碳 (secondary organic carbon, SOC) 浓度越高^[28]. 本研究中清洁天的 OC 与 EC 的

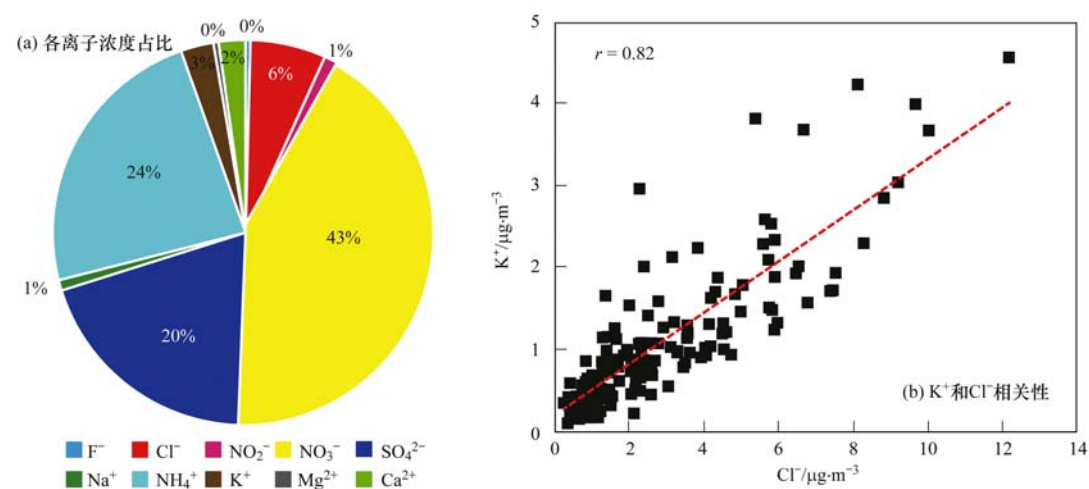


图4 运城市PM_{2.5}中水溶性离子浓度占比及K⁺和Cl⁻相关性

Fig. 4 Water-soluble ion pollution characteristics in PM_{2.5} in Yuncheng during the sampling period

平均质量浓度分别为 $13.63\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $3.61\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, OC/EC 值为 3.78; 轻度-中度污染天的 OC 与 EC 的平均质量浓度为 $19.89\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $4.95\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, OC/EC 值为 4.02; 重度-严重污染的情况下 OC 与 EC 的平均质量浓度分别为 $43.45\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $8.09\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, OC/EC 值为 5.37. 说明运城市燃煤排放和生物质燃烧排放对有机气溶胶的贡献较大, 并且存在着严重的二次污染现象. 随着污染程度的加剧, 大气中 SOC 的浓度逐渐升高.

Turpin 等^[40]的研究认为, 可以通过式(1)计算 SOC 的浓度:

$$\text{SOC} = \text{OC} - \text{EC} \times (\text{OC}/\text{EC})_{\min} \quad (1)$$

式中, SOC 为二次有机碳浓度 ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), ($\text{OC}/$

EC)_{min} 为 OC/EC 最小值, 本研究中, (OC/EC)_{min} 由最小二乘法求得. 经计算本研究所得 SOC 的平均质量浓度值为 $(12.11 \pm 10.22)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均质量浓度值范围为 $1.28 \sim 44.91\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 OC 平均质量浓度的 56.91%, 占 PM_{2.5} 平均质量浓度的 10.95%. SOC 占 OC 的比例要高于同季节的其他区域如重庆 (38.1%)^[46] 和 厦 门 (城 区 34.96%, 郊 区 39.03%)^[47], 与广州 $[(59.44 \pm 10.28)\%]$ ^[48] 和 石 家 庄 (57.04%)^[49] 地区相近, 表明运城地区秋冬季二次有机污染较为严重.

运城市金属元素浓度对比见图 5. 运城市大气中的重金属元素含量从大到小排列为: $\text{K} > \text{Fe} > \text{Na} > \text{Al} > \text{Ca} > \text{Mg} > \text{Pb} > \text{Zn} > \text{Ba} > \text{Mn} > \text{Cu} > \text{Cr} > \text{As} >$

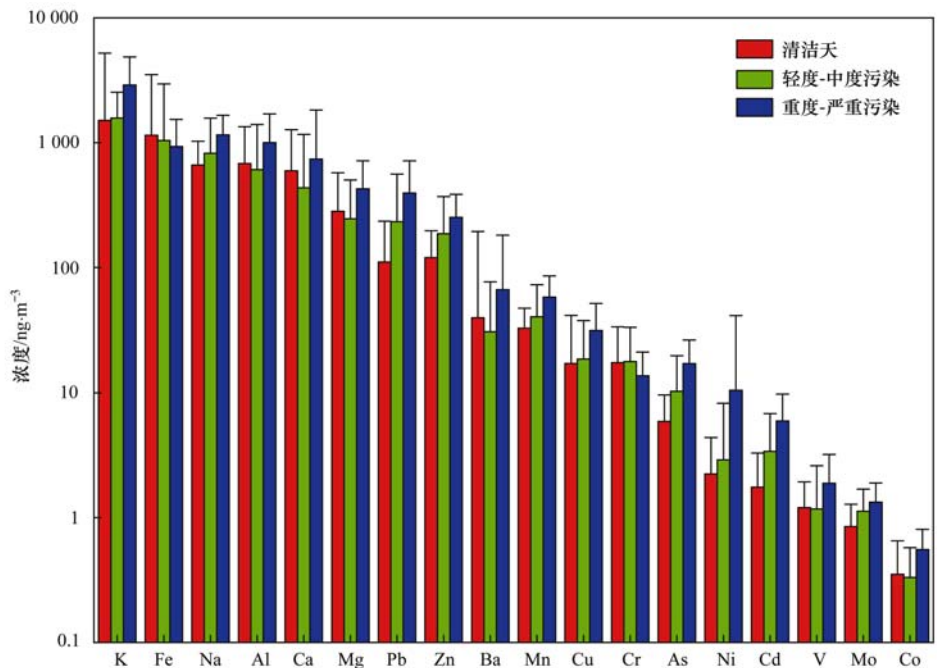


图5 运城市金属元素的平均质量浓度

Fig. 5 Average mass concentrations of each metal element in Yuncheng

Ni > Cd > V > Mo > Co. 其中含量最高的是 K、Na、Fe、Al、Ca 和 Mg 等地壳元素. Fe 和 Cr 元素随着大气污染程度的加深, 浓度呈下降趋势; 在轻度-中度污染天气中, Al、Ca、Mg、Ba、V 和 Co 元素浓度略低于清洁天气中的大气浓度, 但在重度-严重污染等级中上述 6 种金属元素的大气浓度远远高于另外两个污染等级; 其余金属元素浓度与污染程度成正比关系, 即大气污染越严重, 金属元素浓度越高.

2.2 不同污染等级下化学组分污染特征

化学质量重构方法可以了解 $PM_{2.5}$ 的主要构成、各组分对 $PM_{2.5}$ 的贡献以及未鉴别部分的浓度, 是目前常用的分析方法之一^[50]. 本研究将 $PM_{2.5}$ 分为 SIA、SS、HM、MIN、CD、OM、EC 和 UM. 根据采样期间的 AQI 值, 将样品分为清洁天 (AQI < 100)、轻度-中度污染 (100 < AQI < 200) 和重度及以上 (AQI > 200) 这 3 个等级, 图 6 为不同污染等级质量重构后的各组分占比 (质量分数).

由图 6 可以看出, 不同污染等级下的 SIA 所占总质量的百分比均为最大. 与清洁天相比, 污染天中的 SIA 的占比上升幅度最大, 为 5%. SIA 主要是由

其前体物 SO_2 、 NO_x 和 NH_3 二次转化而来. SO_2 主要来自于化石燃料燃烧, NO_x 主要来自于机动车尾气排放和燃煤排放. 运城市冬季大量燃煤供暖排放较多的气态污染物, 此外冬季大气层结构稳定, 污染物在低温、高湿和小风等气象条件下逐渐聚集, 进而发生二次转化. 说明运城市大气有较为严重的二次污染现象, 且本地燃煤对大气污染的影响较大. 在 3 个污染等级下的 OM 占比仅次于 SIA, 分别为 33% (清洁天)、31% (轻度-中度污染) 和 34% (重度-严重污染), 没有明显的变化趋势. 随着大气污染程度的不断加深, 矿物尘的浓度逐渐升高, 但在细粒子中的占比由 8% (清洁天) 下降为 5% (轻度-中度污染) 和 4% (重度-严重污染), 说明随着污染程度的加深大气中扬尘的贡献率逐渐降低. EC、重金属、海盐和建筑尘所占比例较小, 且在各个污染程度中占比变化不大, 分别为 5%、2%、2%、1% (清洁天), 5%、1%、1%、0.01% (轻度-中度污染) 和 5%、1%、1%、0.004% (重度-严重污染). 综上所述, 运城市颗粒物的组成以 SIA 和 OM 为主, 是引起运城市大气污染的主要成分.

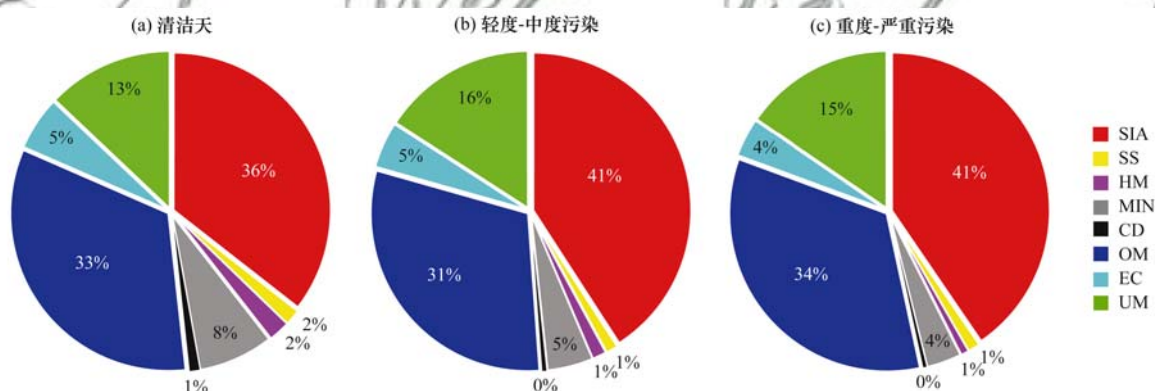


图 6 采样期间不同污染程度细粒子化学质量重构结果

Fig. 6 Reconstruction results of chemical mass of fine particles with different pollution levels during sampling

2.3 PMF 来源解析

为了进一步量化运城市技校站点污染源对污染物的贡献, 本研究将实验中得到的 $PM_{2.5}$ 数据都纳入到 PMF5.0 模型中, 得到更为精细的源解析结果. 通过 PMF 模型分析结果来看, 运城市区大气污染来源有 7 种, 分别为工业源、燃煤源、生物质燃烧及二次有机物、扬尘源、二次相关源、金属加工以及交通源 (图 7). 因子 1 与因子 7 中 Mn、Fe、Cu 和 Zn 都占有一定比例, 不同的是因子 7 中 Na、Al、Fe 与 V 的占比较大, 而因子 1 金属元素占比分布平均. 因此可以将因子 1 和因子 7 都归为工业源, 但因子 7 主要侧重于金属加工工业. 其中 Fe、Mn 是一些黑色金属冶炼的特殊元素, Cu 和 Zn 则代表着有色金属冶炼^[51]. 高温金属加工和工业冶金等过程都会向大气

中排放大量重金属. 因子 2 中 Zn、As、Cd 和 Pb 载荷较高, Zn、As 和 Pb 主要来源于燃煤排放^[52], 因此因子 2 代表燃煤源. 因子 3 可被认为是生物质燃烧源与二次有机物, 这一来源中占比较高的元素是 Cl^- 、 K^+ 、 Na^+ 和 SOC, 大气中的 Cl^- 主要来源于生物质燃烧和化石燃烧, K^+ 被广泛用作生物质燃烧的标志物, SOC 来源于二次转化. 因子 4 中 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、Al 和 Fe 的载荷较高, Al 和 Fe 主要是土壤或岩石风化的尘刮入大气中造成的^[53], 且之前研究表明 Mg^{2+} 和 Ca^{2+} 是扬尘的示踪物^[54], 因此因子 4 可认为是扬尘源. 因子 5 主要是由 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 3 种离子组成, 可将因子 5 认为是二次相关源^[55]. 因子 6 被定性为交通源, 其中相对占比较高的 Mn、Fe、Cu 和 Zn 可能来源于汽油燃烧、刹车片

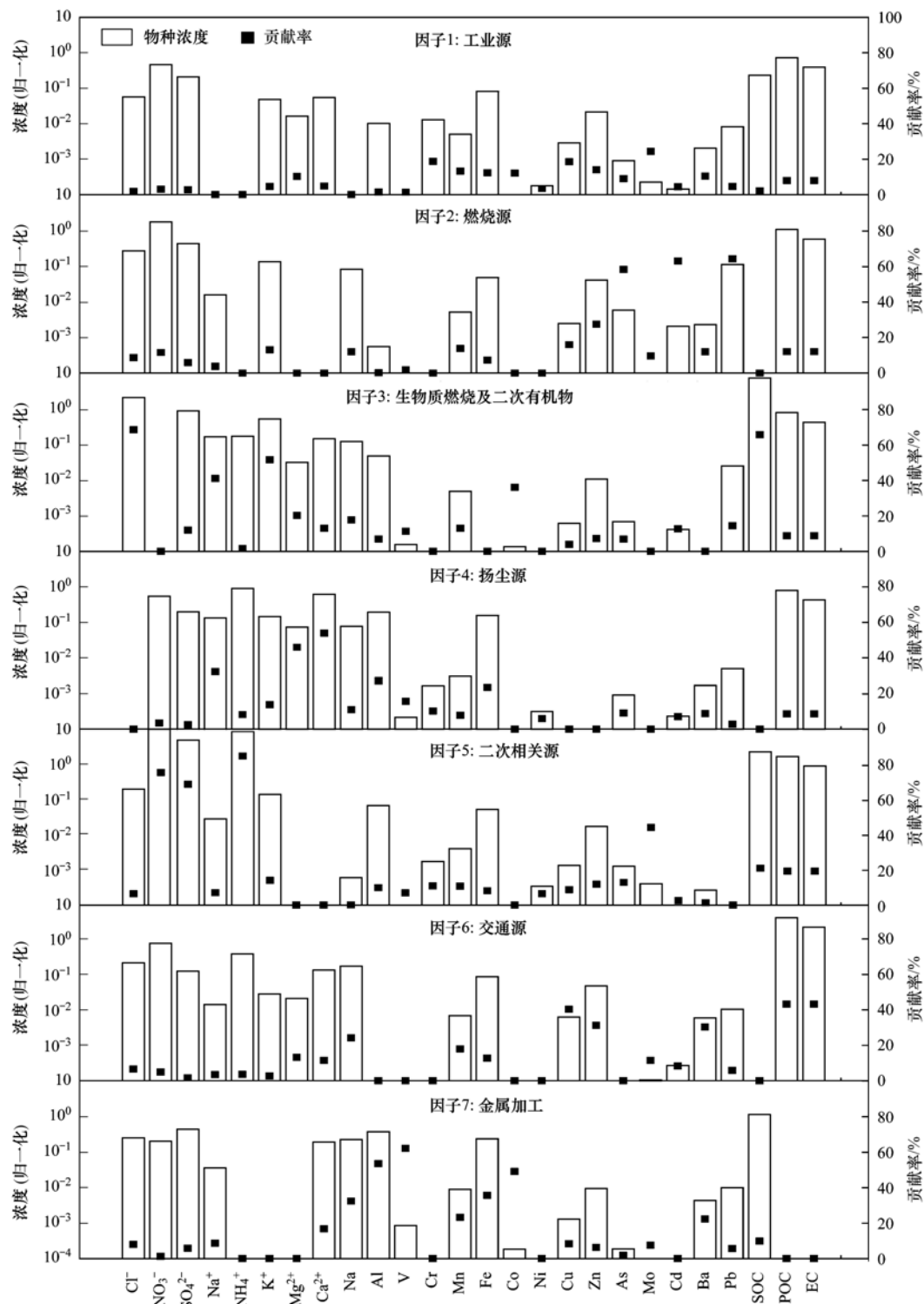


图7 运城秋冬季大气细粒子PMF来源解析

Fig. 7 Source analysis of atmospheric fine particle PMF in autumn and winter in Yuncheng

磨损和轮胎等^[56]. 在后续分析各因子对 $\text{PM}_{2.5}$ 贡献时, 将金属加工合并到工业源中.

如图8所示, 清洁天中工业源占比明显, 为总来源的38%; 交通源和扬尘也是清洁天的主要贡献者, 占比分别为23%和18%; 二次相关源、生物质燃烧及二次有机物和燃煤源的占比较小, 分别为8%、8%和5%. 轻度污染和中度污染天气中, 占比最大的仍是工业源, 所占比例为25%, 其次是交通源

22%; 其他来源占比相差不大, 二次相关源(13%)、扬尘(12%)、燃煤排放(15%)、生物质燃烧及二次有机物(13%). 重度污染和严重污染时期, 交通源占总来源的比例上升为30%, 位列首位; 生物质燃烧及二次有机物、二次相关源和燃煤源占比均为16%; 工业源和扬尘源占比分别为14%和8%. 不同污染等级各来源占比差异显著, 随着污染加剧, 工业源和扬尘比例逐渐减小, 与之相反的是, 其余4种

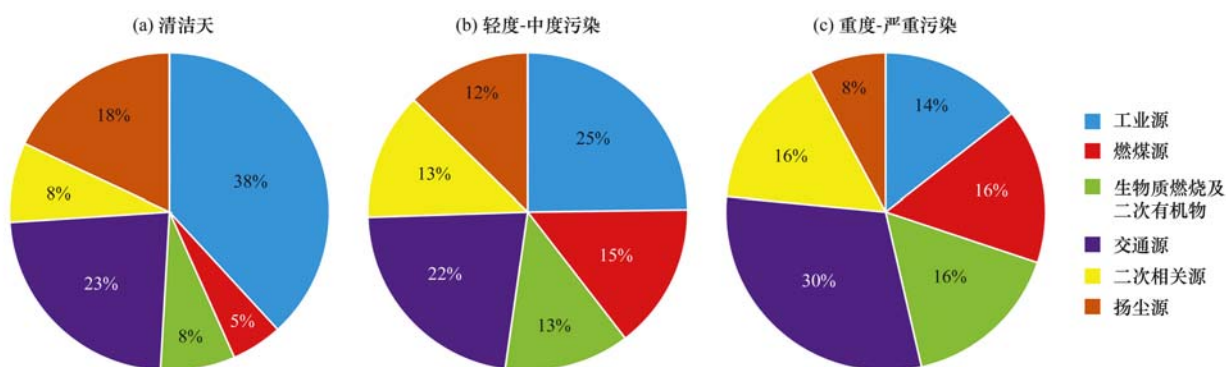
图 8 运城秋冬季不同污染等级各来源对 PM_{2.5} 的贡献占比

Fig. 8 Proportion of sources of different pollution levels in autumn and winter in Yuncheng

污染来源的比例明显提升. 其中上升幅度最高的为燃煤源, 上升了 11%, 这可能与冬季需大量燃烧煤炭供暖有关, 这一结论与质量重构分析结果一致. 上升幅度最小的是交通源, 上升 7%.

3 结论

(1) 采样期间 PM_{2.5} 的日平均浓度为 $(110.62 \pm 57.86) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, PM_{2.5} 浓度最大值为 $370.11 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 污染天数占采样总天数的 70.63%, 说明运城地区大气污染情况比较严重.

(2) 运城市秋冬季大气 PM_{2.5} 中主要化学成分为水溶性离子和有机物, 二者之和占 PM_{2.5} 总浓度的 78%. 二次无机离子是水溶性离子中最主要的成分, 占总水溶性离子的 82%; 不同污染等级下 OC/EC 值分别为 3.78 (清洁天)、4.02 (轻度-中度污染) 和 5.37 (重度-严重污染), 表明随着污染的加剧, 有更多的二次有机物产生; 随着污染程度的加深, 金属元素的浓度总体呈上升趋势.

(3) 化学质量重构结果表明运城市大气有较为严重的二次污染现象, 且本地燃煤对大气污染的影响较大. PMF 分析结果表明燃煤源对运城市大气 PM_{2.5} 的贡献最大.

参考文献:

- [1] 国务院. 国务院关于印发打赢蓝天保卫战三年行动计划的通知[EB/OL]. http://www.gov.cn/zhengce/content/2018-07/03/content_5303158.htm, 2018-06-27.
- [2] 工业和信息化部. 关于印发坚决打好工业和通信业污染防治攻坚战三年行动计划的通知[EB/OL]. <http://www.miit.gov.cn/n1146285/n1146352/n3054355/n3057542/n3057545/c6273874/content.html>, 2018-27-25.
- [3] 国务院. 大气污染防治行动计划[EB/OL]. http://www.gov.cn/jrzq/2013-09/12/content_2486918.htm, 2013-09-12.
- [4] Li X R, Wang Y S, Guo X Q, *et al.* Seasonal variation and source apportionment of organic and inorganic compounds in PM_{2.5} and PM₁₀ particulates in Beijing, China[J]. Journal of Environmental Sciences, 2013, 25(4): 741-750.
- [5] 丁新航, 梁越, 肖化云, 等. 太原市采暖季清洁天与灰霾天

PM_{2.5} 中水溶性无机离子组成及来源分析[J]. 环境化学, 2019, 38(6): 1356-1366.

Ding X H, Liang Y, Xiao H Y, *et al.* Composition and source analysis of water-soluble inorganic ions of PM_{2.5} in clean and haze days during heating season in Taiyuan City[J]. Environmental Chemistry, 2019, 38(6): 1356-1366.

- [6] 肖浩, 肖化云, 吴攀, 等. 贵阳秋季 PM_{2.5} 水溶性离子组成特征及来源解析[J]. 环境化学, 2019, 38(3): 548-555.

Xiao H, Xiao H Y, Wu P, *et al.* Composition and source analysis of water-soluble ions in PM_{2.5} during autumn in Guiyang[J]. Environmental Chemistry, 2019, 38(3): 548-555.

- [7] 张海潇, 郭照冰, 陈善莉, 等. 南京北郊秋冬季大气 PM_{2.5} 中碳质组分浓度及同位素组成研究[J]. 环境科学学报, 2018, 38(9): 3424-3429.

Zhang H X, Guo Z B, Chen S L, *et al.* Concentration and isotopic composition of carbonaceous components in PM_{2.5} during winter and summer in the northern suburb of Nanjing[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018, 38(9): 3424-3429.

- [8] 曹云擎, 王体健, 韩军彩, 等. “2+26”城市一次污染过程 PM_{2.5} 化学组分和来源解析研究[J]. 环境科学学报, 2020, 40(2): 361-372.

Cao Y Q, Wang T J, Han J C, *et al.* Study on chemical composition and source apportionment of PM_{2.5} during a pollution episode in “2+26” cities[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2020, 40(2): 361-372.

- [9] 邱晨晨, 于兴娜, 丁铖, 等. 南京江北新区冬季 PM_{2.5} 中化学组分的昼夜变化特征及其来源解析[J]. 环境科学, 2020, 41(2): 529-536.

Qiu C C, Yu X N, Ding C, *et al.* Diurnal variations and source apportionment of water-soluble ions in PM_{2.5} during winter in Nanjing Jiangbei new area[J]. Environmental Science, 2020, 41(2): 529-536.

- [10] 王德羿, 王体健, 韩军彩, 等. “2+26”城市大气重污染下 PM_{2.5} 来源解析[J]. 中国环境科学, 2020, 40(1): 92-99.

Wang D Y, Wang T J, Han J C, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} under heavy air pollution conditions in “2+26” cities[J]. China Environmental Science, 2020, 40(1): 92-99.

- [11] 刘可, 张红, 刘桂建. 合肥市 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中元素组成特征及重污染成因分析[J]. 环境科学, 2019, 40(8): 3415-3420.

Liu K K, Zhang H, Liu G J. Elemental composition characteristics of PM_{2.5} and PM₁₀, and heavy pollution analysis in Hefei[J]. Environmental Science, 2019, 40(8): 3415-3420.

- [12] 王琼真, 于燕, 孟伟江, 等. 一次长三角大气重污染期间浙

- 江典型城市大气 PM_{2.5} 污染成因分析[J]. 环境污染与防治, 2019, **41**(9): 1076-1081.
- Wang Q Z, Yu Y, Meng W J, *et al.* The causes of PM_{2.5} pollution in typical cities of Zhejiang during a severe pollution event of Yangtze River Delta[J]. *Environmental Pollution & Control*, 2019, **41**(9): 1076-1081.
- [13] Wang H L, Zhu B, Shen L J, *et al.* Water-soluble ions in atmospheric aerosols measured in five sites in the Yangtze River Delta, China: size-fractionated, seasonal variations and sources[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **123**: 370-379.
- [14] Zhao Z P, Lv S, Zhang Y H, *et al.* Characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in Jiaying, China[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, **26**(8): 7497-7511.
- [15] Huang F, Zhou J B, Chen N, *et al.* Chemical characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in Wuhan, China[J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2019, **76**(3): 245-262.
- [16] 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.
- [17] 张婷婷, 马文林, 元学奎, 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.
- [18] 杨震, 王海波, 王小蓉, 等. 青海省某工业园区大气 PM_{2.5} 重金属的污染特征及来源解析[J]. 广州化工, 2018, **46**(3): 125-128.
- Yang Z, Wang H B, Wang X R, *et al.* Pollution characteristics and source apportionment of heavy metals in atmospheric PM_{2.5} of an industrial park in Qinghai[J]. *Guangzhou Chemical Industry*, 2018, **46**(3): 125-128.
- [19] Chen P F, Bi X H, Zhang J Q, *et al.* Assessment of heavy metal pollution characteristics and human health risk of exposure to ambient PM_{2.5} in Tianjin, China[J]. *Particuology*, 2015, **20**: 104-109.
- [20] 王永晓, 曹红英, 邓雅佳, 等. 大气颗粒物及降尘中重金属的分布特征与人体健康风险评价[J]. 环境科学, 2017, **38**(9): 3575-3584.
- Wang Y X, Cao H Y, Deng Y J, *et al.* Distribution and health risk assessment of heavy metals in atmospheric particulate matter and dust[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(9): 3575-3584.
- [21] 王跃思, 李文杰, 高文康, 等. 2013~2017 年中国重点区域颗粒物质量浓度和化学成分变化趋势[J]. 中国科学: 地球科学, 2020, **50**(4): 453-468.
- Wang Y S, Li W J, Gao Y K, *et al.* Trends in particulate matter and its chemical compositions in China from 2013-2017[J]. *Science China (Earth Sciences)*, 2019, **62**(12): 1857-1871.
- [22] 李雁宇, 李杰, 杨文夷, 等. 2018 年汾渭平原及其周边地区大气颗粒物的传输特征[J]. 环境科学学报, 2020, **40**(3): 779-791.
- Li Y Y, Li J, Yang W Y, *et al.* Transport characteristics of atmospheric particulates in Fenwei Plain and its surrounding regions in 2018[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2020, **40**(3): 779-791.
- [23] Xu H M, Cao J J, Chow J C, *et al.* Inter-annual variability of wintertime PM_{2.5} chemical composition in Xi'an, China: evidences of changing source emissions[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **545-546**: 546-555.
- [24] 曹宁, 黄学敏, 祝颖, 等. 西安冬季重污染过程 PM_{2.5} 理化特征及来源解析[J]. 中国环境科学, 2019, **39**(1): 32-39.
- Cao N, Huang X M, Zhu Y, *et al.* Pollution characteristics and source apportionment of fine particles during a heavy pollution in winter in Xi'an City[J]. *China Environmental Science*, 2019, **39**(1): 32-39.
- [25] 刘雨思, 李杏茹, 张怡萌, 等. 济南市秋冬季大气细粒子污染特征及来源[J]. 环境化学, 2017, **36**(4): 787-798.
- Liu Y S, Li X R, Zhang Y M, *et al.* Characteristics and sources of airborne fine particles during the fall and winter in Ji'nan[J]. *Environmental Chemistry*, 2017, **36**(4): 787-798.
- [26] Li X R, Jiang L, Bai Y, *et al.* Wintertime aerosol chemistry in Beijing during haze period: significant contribution from secondary formation and biomass burning emission[J]. *Atmospheric Research*, 2019, **218**: 25-33.
- [27] Li X R, Wang L L, Wang Y S, *et al.* Chemical composition and size distribution of airborne particulate matters in Beijing during the 2008 Olympics[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **50**: 278-286.
- [28] 霍静, 李彭辉, 韩斌, 等. 天津秋冬季 PM_{2.5} 碳组分化学特征与来源分析[J]. 中国环境科学, 2011, **31**(12): 1937-1942.
- Huo J, Li P H, Han B, *et al.* Character and source analysis of carbonaceous aerosol in PM_{2.5} during autumn-winter period, Tianjin[J]. *China Environmental Science*, 2011, **31**(12): 1937-1942.
- [29] Tian S L, Pan Y P, Liu Z R, *et al.* Size-resolved aerosol chemical analysis of extreme haze pollution events during early 2013 in urban Beijing, China[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2014, **279**: 452-460.
- [30] Terzi E, Argyropoulos G, Bougiatioti A, *et al.* Chemical composition and mass closure of ambient PM₁₀ at urban sites[J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(18): 2231-2239.
- [31] 孙颖, 潘月鹏, 李杏茹, 等. 京津冀典型城市大气颗粒物化学成分同步观测研究[J]. 环境科学, 2011, **32**(9): 2732-2740.
- Sun Y, Pan Y P, Li X R, *et al.* Chemical composition and mass closure of particulate matter in Beijing, Tianjin and Hebei megacities, northern China[J]. *Environmental Science*, 2011, **32**(9): 2732-2740.
- [32] Vecchi R, Chiari M, Alessandro A D, *et al.* A mass closure and PMF source apportionment study on the sub-micron sized aerosol fraction at urban sites in Italy[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(9): 2240-2253.
- [33] Li X R, Liu Y S, Li D, *et al.* Molecular composition of organic aerosol over an agricultural site in North China Plain: Contribution of biogenic sources to PM_{2.5}[J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **164**: 448-457.
- [34] 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.
- [35] 刘保献, 张大伟, 陈添, 等. 北京市 PM_{2.5} 主要化学组分浓度水平研究与特征分析[J]. 环境科学学报, 2015, **35**(12): 4053-4060.
- Liu B X, Zhang D W, Chen T, *et al.* Characteristics and major chemical compositions of PM_{2.5} in Beijing[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, **35**(12): 4053-4060.
- [36] 吴丹, 蔺少龙, 杨焕强, 等. 杭州市 PM_{2.5} 中水溶性离子的污染特征及其消光贡献[J]. 环境科学, 2017, **38**(7): 2656-2666.

- Wu D, Lin S L, Yang H Q, *et al.* Pollution characteristics and light extinction contribution of water-soluble ions of PM_{2.5} in Hangzhou[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(7): 2656-2666.
- [37] 张显, 田莎莎, 刘盈盈, 等. 沈阳市采暖期与非采暖期空气 PM_{2.5} 污染特征及来源分析[J]. *环境科学*, 2019, **40**(3): 1062-1070.
- Zhang X, Tian S S, Liu Y Y, *et al.* Pollution characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in heating and non-heating periods in Shenyang[J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(3): 1062-1070.
- [38] Andreae M O. Soot carbon and excess fine potassium: long-range transport of combustion-derived aerosols[J]. *Science*, 1983, **220**(4602): 1148-1151.
- [39] 魏玉香, 杨卫芬, 银燕, 等. 霾天气南京市大气 PM_{2.5} 中水溶性离子污染特征[J]. *环境科学与技术*, 2009, **32**(11): 66-71.
- Wei Y X, Yang W F, Yin Y, *et al.* Pollution characteristics of Nanjing water-soluble ions in air fine particles under haze days[J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **32**(11): 66-71.
- [40] 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.
- [41] 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.
- [42] 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 and Technology*, 2002, **36**(6): 1169-1180.
- [43] 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), doi: 10.1029/2006GL026966.
- [44] 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.
- [45] 李杏茹, 王英锋, 郭雪清, 等. 2008 年奥运期间北京不同粒径大气颗粒物中元素碳和有机碳的变化特征[J]. *环境科学*, 2011, **32**(2): 313-318.
- Li X R, Wang Y F, Guo X Q, *et al.* Size distribution and characterization of EC and OC in aerosols during the Olympics of Beijing, China[J]. *Environmental Science*, 2011, **32**(2): 313-318.
- [46] 彭小乐, 郝庆菊, 温天雪, 等. 重庆市北碚城区气溶胶中有机碳和元素碳的污染特征[J]. *环境科学*, 2018, **39**(8): 3502-3510.
- Peng X L, Hao Q J, Wen T X, *et al.* Pollution characteristics of organic carbon and elemental carbon in atmospheric aerosols in Beibei district, Chongqing[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(8): 3502-3510.
- [47] 胡起超, 胡恭任, 于瑞莲, 等. 厦门市冬季大气 PM_{2.5} 中有机碳和元素碳的污染特征[J]. *地球与环境*, 2016, **44**(3): 336-341.
- Hu Q C, Hu G R, Yu R L, *et al.* Characteristics of Organic Carbon (OC) and Elemental Carbon (EC) in PM_{2.5} in winter in Xiamen City, China[J]. *Earth and Environment*, 2016, **44**(3): 336-341.
- [48] 刘晶晶, 胡献舟, 黄凤莲, 等. 广州 PM_{2.5} 中有机碳和元素碳的污染特征[J]. *湖南科技大学学报(自然科学版)*, 2019, **34**(4): 111-117.
- Liu J J, Hu X Z, Huang F L, *et al.* Characteristics of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in PM_{2.5} in Guangzhou, China[J]. *Journal of Hunan University of Science and Technology(Natural Science Edition)*, 2019, **34**(4): 111-117.
- [49] 姜建彪, 常青, 冯媛, 等. 石家庄市大气颗粒物中有机碳和元素碳的季节变化特征[J]. *环境监控与预警*, 2017, **9**(2): 41-45.
- Jiang J B, Chang Q, Feng Y, *et al.* Seasonal variation of organic carbon and elemental carbon in atmospheric particles in Shijiazhuang[J]. *Environmental Monitoring and Forewarning*, 2017, **9**(2): 41-45.
- [50] 杨复沫, 贺克斌, 马永亮, 等. 北京 PM_{2.5} 化学物种的质量平衡特征[J]. *环境化学*, 2004, **23**(3): 326-333.
- Yang F M, He K B, Ma Y L, *et al.* Characterization of mass balance of PM_{2.5} chemical speciation in Beijing[J]. *Environmental Chemistry*, 2004, **23**(3): 326-333.
- [51] Han J S, Moon K J, Lee S J, *et al.* Size-resolved source apportionment of ambient particles by positive matrix factorization at Gosan background site in East Asia[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2006, **6**(1): 211-223.
- [52] 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.
- [53] Ramadan Z, Eickhout B, Song X H, *et al.* Comparison of positive matrix factorization and multilinear engine for the source apportionment of particulate pollutants[J]. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 2003, **66**(1): 15-28.
- [54] Lestari P, Mauliadi Y D. Source apportionment of particulate matter at urban mixed site in Indonesia using PMF[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(10): 1760-1770.
- [55] Yin J, Allen A G, Harrison R M, *et al.* Major component composition of urban PM₁₀ and PM_{2.5} in Ireland[J]. *Atmospheric Research*, 2005, **78**(3-4): 149-165.
- [56] Fang G C, Wu Y S, Wen C C, *et al.* Ambient air particulate concentrations and metallic elements principal component analysis at Taichung Harbor (TH) and WuChi Traffic (WT) near Taiwan Strait during 2004-2005[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2006, **137**(1): 314-323.

CONTENTS

Contributors to Air Pollutant Emission Changes in Autumn and Winter in Beijing-Tianjin-Hebei and Surrounding Areas	TANG Qian, ZHENG Bo, XUE Wen-bo, <i>et al.</i> (1591)
Characteristics and Meteorological Factors of Complex Nonattainment Pollution of Atmospheric Photochemical Oxidant (O_x) and $PM_{2.5}$ in the Pearl River Delta Region, China	YAN Feng-hua, CHEN Wei-hua, CHANG Ming, <i>et al.</i> (1600)
Source Apportionment of Ozone Pollution in Guangzhou; Case Study with the Application of Lagrangian Photochemical Trajectory Model	PEI Cheng-lei, MU Jiang-shan, ZHANG Ying-nan, <i>et al.</i> (1615)
Chemical Composition and Source Analysis of $PM_{2.5}$ in Yuncheng, Shanxi Province in Autumn and Winter	ZHAO Qing, LI Xing-ru, WANG Guo-xuan, <i>et al.</i> (1626)
Temporal Trend of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmosphere Within 24 Hours After Snowfall	FAN Hui-ze, ZHU Fu-jie, HU Peng-tuan, <i>et al.</i> (1636)
Determination Method and Characteristics of Particle Size Multiplier of $PM_{2.5}$ in Road Dust	LI Dong, CHEN Jian-hua, ZHANG Yue-fan, <i>et al.</i> (1642)
Source Profiles and Impact of VOCs Based on Production Processes in Foundry Industries	GAO Shuang, LI Shi-bei, BO Xin, <i>et al.</i> (1649)
Emission Characteristics and Toxicity Effects of Halogenated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from Coal-Fired and Waste Incineration Power Plants	NI Xiu-feng, WANG Ru-wei, CAI Fei-xuan, <i>et al.</i> (1660)
Concentration and Particle Size Distribution Characteristics of Microbial Aerosol and Bacterial Community Structure During Spring in Lanzhou City, China	ZHAO Wei, LI Jie, XIE Hui-na, <i>et al.</i> (1668)
Optimization Method and Case Study of Air Pollution Emission Spatial Pattern	LI Min-hui, LIAO Cheng-hao, CHANG Shu-cheng, <i>et al.</i> (1679)
Influence of $PM_{2.5}$ Pollution on Health Burden and Economic Loss in China	LI Yong, LIAO Qin, ZHAO Xiu-ge, <i>et al.</i> (1688)
Identify the Nitrate Sources in Different Land Use Areas Based on Multiple Isotopes	JIN Zan-fang, HU Jing, WU Ai-jing, <i>et al.</i> (1696)
Hydrochemical Characteristic and Their Controlling Factors in the Yarkant River Basin of Xinjiang	ZHANG Jie, ZHOU Jin-long, ZENG Yan-yan, <i>et al.</i> (1706)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in the Water of Lijiang River Basin	HUANG Hong-wei, XIAO He, WANG Dun-qiu, <i>et al.</i> (1714)
Changes in Concentrations and Pollution Levels of Trace Elements of Floodplain Sediments of Poyang Lake Basin in Recent Twenty Years	LI Kuo, YANG Ke, PENG Min, <i>et al.</i> (1724)
Hydrochemical and Isotopic Characteristics in the Shallow Groundwater of the Fenhe River Basin and Indicative Significance	LIU Xin, XIANG Wei, SI Bing-cheng (1739)
Major Ionic Characteristics and Factors of Karst Groundwater at Huixian Karst Wetland, China	LI Jun, ZOU Sheng-zhang, ZHAO Yi, <i>et al.</i> (1750)
Hydrochemistry Characteristics and Estimation of the Dissolved Inorganic Carbon Flux in the Caohai Lake Wetland Catchment of Guizhou Province	CAO Xing-xing, WU Pan, YANG Shi-di, <i>et al.</i> (1761)
Concentration Levels and Potential Ecological Risks of Current Use Pesticides in the Surface Seawater of Typical Liaoning Sea Areas	DU Jing, HU Chao-kui, XIE Hua-jun, <i>et al.</i> (1772)
Levels, Characteristics, and Potential Source of Micro(meso)plastic Pollution of Soil in Liaohe River Basin	HAN Li-hua, XU Li, LI Qiao-ling, <i>et al.</i> (1781)
PAHs Pollution Characteristics and Source Analysis of Typical Lake and Reservoir Sediments in Jin-Ji-Liao Area	WU Peng, LU Yi-ren, LI Hui, <i>et al.</i> (1791)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Organophosphate Esters in Rivers and Water Body Around Taihu Lake	ZHANG Wen-ping, ZHANG Zhen-fei, GUO Chang-sheng, <i>et al.</i> (1801)
Spatiotemporal Distributions and Ecological Risk Assessments of Typical Antibiotics in Surface Water of Taihu Lake	DING Jian-nan, LIU Shu-jiao, ZOU Jie-ming, <i>et al.</i> (1811)
Characteristics of Volatile Organic Compounds Pollution and Risk Assessment of Nansi Lake in Huaihe River Basin	CHENG Yun-xuan, GAO Qiu-sheng, LI Jie, <i>et al.</i> (1820)
Distribution, Source, and Ecological Risk Evaluation of the PAHs and PCBs in the Sediments from Sanya River	ZHAN Yong, WEI Ting-ting, YE Hui-bin, <i>et al.</i> (1830)
Spatiotemporal Change and Source Apportionment of Non-point Source Nitrogen and Phosphorus Pollution Loads in the Three Gorges Reservoir Area	LI Ming-long, JIA Meng-dan, SUN Tian-cheng, <i>et al.</i> (1839)
Effect of the Combined Use of Denitrifying Bacteria, Calcium Nitrate, and Zirconium-Modified Zeolite on the Mobilization of Nitrogen and Phosphorus in Sediments and Evaluation of Its Nitrate-Nitrogen Releasing Risk	XIN Hui-min, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui (1847)
Combined Remediation of Eutrophic Water by Phoslock® and Aerobic Denitrifying Bacteria	LI Bing-tang, ZHOU Zhi-qin, Ravi Naidu, <i>et al.</i> (1861)
Biodegradation of Algae-derived Organic Matter (I-DOM) from Lake Taihu	ZHANG Qiao-ying, SUN Wei, DU Ying-xun, <i>et al.</i> (1870)
Structure Characteristics and Driving Variables of Epilithic Algae Community in Lhasa River Basin of Qinghai-Tibet Plateau	WEI Jun-wei, LI Hong-ran, WANG Xing-zhong, <i>et al.</i> (1879)
Spectral Characteristics and Sources of Dissolved Organic Matter from Landscape River During Flood Season in Suzhou Based on EEMs and UV-vis	HE Jie, ZHU Xue-hui, WEI Bin, <i>et al.</i> (1889)
Adsorption and Desorption Behaviors of Antibiotics on TWP and PVC Particles Before and After Aging	FAN Xiu-lei, ZOU Ye-feng, LIU Jia-qiang, <i>et al.</i> (1901)
Synthesis of Magnetic Iron Modifying Biochar for Ammonia Nitrogen Removal from Water	WANG Fang-jun, SANG Qian-qian, DENG Ying, <i>et al.</i> (1913)
Seasonal Effects of Influent Ammonia Oxidizing Bacteria of Municipal Wastewater Treatment Plants on Activated Sludge System	YU Li-fang, WANG Yu, HUA Si-si, <i>et al.</i> (1923)
Analysis of Performance and Microbial Diversity of ANAMMOX Sludge Based on Particle Size Differentiation	WANG Xiao-tong, YANG Hong (1930)
Effects of Chlorine Dioxide Disinfection on the Profile of the Super Antibiotic Resistance Genes in a Wastewater Treatment Plant	CHENG Chun-yan, LI Hai-bei, LIANG Yong-bing, <i>et al.</i> (1939)
Effects of PES and 2,4-DCP on the Extracellular Polymeric Substances and Microbial Community of Anaerobic Granular Sludge	LIN Xu-meng, SU Cheng-yuan, WU Shu-min, <i>et al.</i> (1946)
Characteristics of Sludge and Associated Risk Assessment of Urban Sewage Treatment Plants	LI Juan, LI Jin-xiang, YANG Yan-yan (1956)
Effects of Climate Warming on the Key Process and Index of Black Soil Carbon and Nitrogen Cycle During Freezing Period	WANG Zi-long, LIU Chuan-xing, JIANG Qiu-xiang, <i>et al.</i> (1967)
Effects of Combined Application of Biogas Slurry and Straw on the Migration and Fractions of Soil Heavy Metals in Rice-wheat Rotation System in Coastal Reclamation Areas	WANG Wei, ZHOU Jun-nan, TANG Yi-fan, <i>et al.</i> (1979)
Geochemical Survey Method of Land Quality in Land Parcel Scale City: A Case Study of the Initial Area of the Xiong'an New District	ZHOU Ya-long, GUO Zhi-juan, LIU Fei, <i>et al.</i> (1989)
Potential Ecological Risk Assessment and Source Analysis of Heavy Metals in Soil-crop System in Xiong'an New District	ZHOU Ya-long, YANG Zhi-bin, WANG Qiao-lin, <i>et al.</i> (2003)
Cadmium Accumulation Characteristics and Impacting Factors of Different Rice Varieties Under Paddy Soils with High Geological Backgrounds	DAI Zi-wen, FANG Cheng, SUN Bin, <i>et al.</i> (2016)
Effects of Different Exogenous Selenium Species Application on Growth and Cadmium Uptake of Pak Choi in Cadmium Contaminated Soil	LIU Yang, QI Ming-xing, WANG Min, <i>et al.</i> (2024)
Influencing Factors of Cadmium Bioaccumulation Factor in Crops	CHEN Jie, WANG Juan, WANG Yi-wen, <i>et al.</i> (2031)
Effects of Different Exogenous Plant Hormones on the Antioxidant System and Cd Absorption and Accumulation of Rice Seedlings Under Cd Stress	ZHANG Sheng-nan, HUANG Yi-zong, LI Yan, <i>et al.</i> (2040)
Effects of Different Organic Materials on Absorption and Translocation of Arsenic and Cadmium in Rice	LI Kai-ye, ZHAO Ting-ting, CHEN Jia, <i>et al.</i> (2047)
Soil Fungal Community Structure and Functional Diversity in a Copper Tailing Dam and Its Surrounding Areas	CHEN Jian-wen, ZHANG Hong, LI Jun-jian, <i>et al.</i> (2056)
Potential of Arbuscular Mycorrhizal Fungi, Biochar, and Combined Amendment on Sandy Soil Improvement Driven by Microbial Community	ZHANG Zhe-chao, YANG Jiu-yang, HAO Bai-hui, <i>et al.</i> (2066)
Animal Manure Fertilization Promotes Antibiotic Resistance Gene Dissemination Among Manure, Soil, and Vegetables	ZHANG Hong-na, DONG Meng-jie, ZHOU Yu-fa, <i>et al.</i> (2080)
Establishment and Application of Performance Evaluation and Obstacle Diagnosis Model for Regional Water Ecological Civilization Construction	WAN Bing-tong, BAO Xue-ying, ZHAO Jian-chang, <i>et al.</i> (2089)