

方知库  
Eco-Environmental  
Knowledge Web

# 环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征

陈其永, 郜允兵, 倪润祥, 潘瑜春, 阎跃观, 杨晶, 刘孝阳, 顾晓鹤



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年9月

第43卷 第9期

Vol.43 No.9

目次

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征 ..... 陈其永, 郇允兵, 倪润祥, 潘瑜春, 阎跃观, 杨晶, 刘孝阳, 顾晓鹤(4413)

面向二/三维城市形态指标的PM<sub>2.5</sub>浓度调控模拟 ..... 李莎, 邹滨, 刘宁, 冯徽徽, 陈军, 张鸿辉(4425)

减排背景下成都大气PM<sub>2.5</sub>碳质组分特征 ..... 陈璐瑶, 于阳春, 黄小娟, 董贵明, 张军科(4438)

青岛秋冬季PM<sub>1</sub>中金属元素污染特征及健康风险评估 ..... 刘子杨, 张宜升, 张厚勇, 马子轸, 陶文鑫, 王娇, 薛莲, 彭倩倩, 杜金花, 赵娇娇, 彭亮, 孙英杰(4448)

港口地区大气PM<sub>2.5</sub>中多环芳烃污染特征及来源分析 ..... 王鹏程, 杨凌霄, 别淑君, 黄琦, 齐安安, 虞雄, 王滢铭, 徐鹏, 张天琪, 王文兴(4458)

天津市冬季道路颗粒物粒径分布及来源解析 ..... 张国涛, 殷宝辉, 白雯宇, 郭丽瑶, 王智宇, 张楠, 郑镇森, 张利文, 杨文, 韩斌, 白志鹏(4467)

北京市生物源一次气溶胶浓度变化特征及影响因素 ..... 梁林林, 刘畅, 刘旭艳, 徐婉筠, 张根, 程红兵, 刘雨思(4475)

北京市城区夏季VOCs变化特征分析与来源解析 ..... 孟祥来, 孙扬, 廖婷婷, 张琛, 张成影(4484)

东莞工业集中区夏季臭氧污染与非污染期间VOCs组分特征及其来源 ..... 周振, 肖林海, 费蕾蕾, 余纬, 林满, 黄筠钧, 张智胜, 陶俊(4497)

生活垃圾填埋场恶臭污染的时空变化与膜阻隔效果 ..... 何晶晶, 李健晨, 吕凡, 章骅, 邵立明(4506)

不同年份太湖水域全氟化合物健康风险源解析对比 ..... 武婷, 孙善伟, 樊境朴, 鲁富蕾, 郭昌胜, 徐建(4513)

沱江流域典型及新兴全氟/多氟化合物的污染特征及来源解析 ..... 宋娇娇, 汪艺梅, 孙静, 方淑红(4522)

白洋淀不同类型水体表层沉积物重金属的赋存形态及风险 ..... 许梦雅, 张超, 单保庆, 刘操(4532)

喹诺酮类抗生素在城市典型水环境中的分配系数及其主要环境影响因子 ..... 剧泽佳, 付雨, 赵鑫宇, 陈慧, 宋圆梦, 赵波, 张纪媛, 卢梦洪, 崔建升, 张璐璐(4543)

石家庄地下水中喹诺酮类抗生素生态风险及其与环境因子的相关性 ..... 陈慧, 剧泽佳, 赵鑫宇, 付雨, 崔建升, 张璐璐(4556)

不同淹水环境下湖泊沉积物DOM的特征与来源 ..... 陈佳, 李忠武, 金昌盛, 文佳骏, 聂小东, 王磊(4566)

晋城市沁河流域秋季浮游植物群落结构特征及其与环境因子的关系 ..... 高梦蝶, 李艳粉, 李艳利, 孙昂, 田爽, 张春晖, 耿亚平, 李林霞(4576)

不同配置绿色屋顶径流水质特征及综合评价 ..... 章孙逊, 张守红, 闫婧, 王任重远, 杨航(4587)

紫外活化过硫酸盐降解磷酸氯喹 ..... 李阳, 许玻琀, 邓琳, 罗伟(4597)

微气泡臭氧氧化预处理实际制药废水去除SS和有机性能 ..... 刘春, 陈蕊, 张静, 杨旭, 陈晓轩, 郭延凯, 武明泽, 庞勃(4608)

废水排放对近海环境中抗生素抗性基因和微生物群落的影响 ..... 陈嘉瑜, 苏志国, 姚鹏城, 黄备, 张永明, 温东辉(4616)

生物炭和秸秆还田对微咸水滴灌棉田土壤真菌群落结构多样性的影响 ..... 郭晓雯, 陈静, 鲁晓宇, 李远, 陶一凡, 闵伟(4625)

有机物料投入对喀斯特地区土壤磷素赋存形态与含 $phoD$ 基因细菌群落的影响 ..... 夏鑫, 乔航, 孙琪, 刘坤平, 陈香碧, 何寻阳, 胡亚军, 苏以荣(4636)

煤矿矿区复垦植被类型对土壤微生物功能基因和酶活的影响 ..... 宁岳伟, 刘勇, 张红, 李君剑(4647)

生物炭施用对黄壤土壤养分及酶活性的影响 ..... 袁访, 李开钰, 杨慧, 邓承佳, 梁红, 宋理洪(4655)

黄河源区斑块化退化高寒草甸土壤细菌群落多样性变化 ..... 孙华方, 李希来, 金立群, 赵玉蓉, 李成一, 张静, 宋梓涵, 苏晓雪, 刘凯(4662)

模拟氮沉降对三江平原小叶章湿地土壤微生物碳源利用能力的影响 ..... 翁晓虹, 隋心, 李梦莎, 刘赢男, 张荣涛, 杨立宾(4674)

石家庄市土壤中喹诺酮类抗生素空间分布特征及其与微生物群落相关性 ..... 赵鑫宇, 剧泽佳, 陈慧, 付雨, 宋圆梦, 赵波, 张纪媛, 卢梦洪, 崔建升, 张璐璐(4684)

典型氧化还原环境中微塑料表面的微生物群落组成特征与构建机制 ..... 龚志伟, 马杰, 苏趋, 林亚楠, 董鑫磊, 周立昌, 王宗平, 郭刚(4697)

作物秸秆材料处理养殖废水中氮的周年去除效果及其对氮循环微生物丰度的影响 ..... 刘铭羽, 夏梦华, 蒋磊, 彭健, 陈坤, 赵聪芳, 李希, 孟岑, 曾睿, 王栋, 李裕元, 吴金水(4706)

不同外碳源对尾水极限脱氮性能及微生物群落结构的影响 ..... 王伟, 赵中原, 张鑫, 由志鹏, 黄子晋, 彭永臻(4717)

总氮提标改造工程的微生物群落结构分析 ..... 李海松, 王柯丹, 陈晓蕾, 阎登科, 许子聪, 胡培杰(4727)

IFAS工艺处理南方低碳源污水的泥膜微生物互作规律分析 ..... 赫俊国, 江伟勋, 何卓义, 刘新平, 吴世华, 储昭瑞, 冯杰(4736)

黄土高原土地利用方式对微塑料丰度和形态分布的影响 ..... 郝永丽, 胡亚鲜, 白晓雄, 郭胜利(4748)

南方丘陵区土壤重金属含量、来源及潜在生态风险评价 ..... 王玉, 辛存林, 于爽, 薛红蕾, 曾鹏, 孙平安, 刘凡(4756)

兰州市耕地“五毒”重金属的风险评价与归因分析 ..... 张利瑞, 彭鑫波, 马延龙, 康乐, 张妍娥, 王泉灵, 张松林(4767)

石家庄市栾城区农田土壤重金属分布特征及作物风险评价 ..... 孟晓飞, 郭俊梅, 杨俊兴, 郑国砥, 陈同斌, 刘杰(4779)

典型城市土壤中重金属锑(Sb)的含量分布特征及风险评价 ..... 沈城, 叶文娟, 钱诗颖, 吴健, 朱旭东, 王敏(4791)

有色金属矿业城市典型村镇土壤重金属污染评价及来源解析 ..... 汪峰, 黄言欢, 李如忠, 吴鸿飞(4800)

柠檬酸及刈割强化象草修复镉污染土壤的效应 ..... 唐棋, 伍港繁, 辜娇峰, 周航, 曾鹏, 廖柏寒(4810)

稻田落干过程甲基化效率变化与关键影响因素分析 ..... 张玥, 李令仪, 文炯, 曾希柏, 苏世鸣(4820)

外源茉莉酸对水稻幼苗根系伸积及抗逆应答效应 ..... 李颜, 黄益宗, 保琼莉, 黄永春, 张盛楠(4831)

秸秆还田配施化肥对土壤养分及冬小麦产量的影响 ..... 宋佳杰, 徐郗阳, 白金泽, 于琦, 程伯豪, 冯永忠, 任广鑫(4839)

冬季绿肥对黄土高原旱作春玉米农田土壤温室气体排放的影响 ..... 张少宏, 王俊, 方震文, 付鑫(4848)

庞泉沟自然保护区土壤呼吸空间分异性影响因素探测 ..... 李晓敏, 严俊霞, 杜自强, 王琰(4858)

小型养殖塘水体中CH<sub>4</sub>、CO<sub>2</sub>和N<sub>2</sub>O浓度的时空变化特征及影响因素 ..... 石婕, 张弥, 邱吉丽, 万梓文, 赵若男, 谢燕红, 陈明健, 赵佳玉, 肖薇, 刘寿东(4867)

丁基黄药对选矿区土壤吸附铅镉的影响 ..... 胡志浩, 郭朝晖, 冉洪珍, 肖细元, 彭驰, 李钰滢(4878)

秸秆生物炭吸附对乙酰氨基酚的机制及其位能分布特征 ..... 商岑尧, 顾若婷, 张强, 谢慧芳, 王冰玉(4888)

黄土高原地区生态脆弱性时空变化及其驱动因子分析 ..... 张良侠, 樊江文, 张海燕, 周德成(4902)

植物促生菌在重金属生物修复中的作用机制及应用 ..... 马莹, 王玥, 石孝均, 陈新平, 李振轮(4911)

《环境科学》征订启事(4512) 《环境科学》征稿简则(4735) 信息(4696, 4790, 4887)

# 天津市冬季道路颗粒物粒径分布及来源解析

张国涛<sup>1</sup>, 殷宝辉<sup>1</sup>, 白雯宇<sup>1</sup>, 郭丽瑶<sup>1</sup>, 王智宇<sup>2</sup>, 张楠<sup>1\*</sup>, 郑镇森<sup>1</sup>, 张利文<sup>2</sup>, 杨文<sup>1</sup>, 韩斌<sup>1</sup>, 白志鹏<sup>1</sup>

(1. 中国环境科学研究院环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012; 2. 天津医科大学公共卫生学院, 天津 300070)

**摘要:** 使用便携式气溶胶粒径谱仪对天津市南开区道路环境颗粒物数浓度进行观测, 观测时间为2018年11月9日至2019年1月6日早高峰时段(07:30~09:20); 结合温度和相对湿度, 探究冬季道路环境颗粒物的粒径分布特征及来源. 结果表明, 天津市冬季道路环境颗粒物总数浓度平均值为 $502 \text{ cm}^{-3}$ , 主要集中在 $0.25 \sim 0.50 \mu\text{m}$  粒径段, 呈现单峰分布, 峰值在 $0.28 \sim 0.30 \mu\text{m}$  粒径段. 不同时间尺度下颗粒物数浓度谱分布趋势相同, 但相同粒径段数浓度存在差异. 机动车活动水平是不同工作日道路颗粒物数浓度主要影响因素, 合理的机动车尾号组合有利于降低道路颗粒物总数浓度高值出现的概率. 颗粒物数浓度与温度和相对湿度呈现正相关关系, 颗粒物总数浓度和峰值粒径数浓度随着温度和相对湿度的升高整体呈上升趋势. 高相对湿度条件下, 由于吸湿增长, 数浓度峰值粒径会有所增大. 使用正定矩阵因子分解模型(PMF)对道路环境颗粒物数浓度进行来源解析, 得到道路尘、刹车与轮胎磨损和机动车尾气排放老化这3个主要来源. 道路尘来源对颗粒物数浓度的贡献率为8.6%, 主要分布在 $5.00 \mu\text{m}$  以上粒径段; 刹车与轮胎磨损来源对颗粒物数浓度的贡献率为2.8%, 粒径集中在 $0.80 \sim 4.00 \mu\text{m}$ ; 机动车尾气排放老化来源对颗粒物数浓度的贡献率为88.5%, 贡献率占比最大, 粒径集中在 $0.25 \sim 0.65 \mu\text{m}$ . 道路旁颗粒物主要与机动车活动有关, 同时温湿度也会对颗粒物数浓度粒径分布产生影响.

**关键词:** 道路环境; 颗粒物; 数浓度; 粒径分布; 源解析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)09-4467-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.202112109

## Size Distribution and Source Appointment of Road Particles During Winter in Tianjin

ZHANG Guo-tao<sup>1</sup>, YIN Bao-hui<sup>1</sup>, BAI Wen-yu<sup>1</sup>, GUO Li-yao<sup>1</sup>, WANG Zhi-yu<sup>2</sup>, ZHANG Nan<sup>1\*</sup>, ZHENG Zhen-sen<sup>1</sup>, ZHANG Li-wen<sup>2</sup>, YANG Wen<sup>1</sup>, HAN Bin<sup>1</sup>, BAI Zhi-peng<sup>1</sup>

(1. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China; 2. School of Public Health, Tianjin Medical University, Tianjin 300070, China)

**Abstract:** The significant role of traffic emissions mixed from various sources in urban air pollution has been widely recognized. However, the corresponding contributions to the roadside particle distribution are poorly understood due to the mixed impacts of various sources. Particle number concentrations of different sizes at the roadside in Nankai District of Tianjin were continuously monitored using a portable aerosol particle spectrometer during the morning rush hour (07:30-09:20) from Nov. 9, 2018 to Jan. 6, 2019. Characteristic and influencing factors of particle size distributions were discussed combined with temperature and relative humidity data, while potential sources of particles at the roadside were identified based on size distribution analysis. The results showed that the average total particle number concentrations were  $502 \text{ cm}^{-3}$ , and the concentrations of the accumulation mode and coarse mode were  $500 \text{ cm}^{-3}$  and  $2 \text{ cm}^{-3}$ , respectively. The distribution of number concentrations at the roadside was unimodal and primarily concentrated at  $0.25\text{-}0.50 \mu\text{m}$ , with peak sizes at  $0.28\text{-}0.30 \mu\text{m}$ . The same distribution trend of particle number concentration and difference in the concentration in the same segment size were observed at different periods. Vehicle activity level was the main influencing factor of road particulate matter concentration on different weekdays; the probability of the high value of road particulate matter concentration was reduced by a reasonable combination of the vehicle tail numbers. Temperature and relative humidity were both found to be positively correlated with the number concentration of particles. With the increase in temperature and relative humidity, the total and peak particle number concentration showed an overall upward trend. In addition, the peak particle size increased from  $0.28\text{-}0.30 \mu\text{m}$  to  $0.35\text{-}0.40 \mu\text{m}$  when relative humidity was higher than 80%. Three sources, including road dust, brake and tire wear, and the aging particles from vehicle exhaust, were identified using positive matrix factorization in this study. Road dust contributed 8.6% of the total number concentration, which mainly consisted of particles with sizes above  $5.00 \mu\text{m}$ . Brake and tire wear contributed 2.8% of the total number concentration of particles with a size range of  $0.80\text{-}4.00 \mu\text{m}$ . The aging particles from vehicle exhaust contributed the most (88.5%), with a peak at  $0.25\text{-}0.65 \mu\text{m}$ . The sources of roadside particles were mainly related to vehicle activity, whereas temperature and relative humidity also affected the particle number size distribution.

**Key words:** roadside environment; particulate matter; number concentration; size distribution; source appointment

颗粒物是评价空气质量的重要指标之一. 空气中颗粒物的增多会影响人体健康, 降低区域空气质量和改变全球气候效应<sup>[1,2]</sup>. 颗粒物来源可以分为自然源和人为源两大类<sup>[3,4]</sup>. 由于来源广泛且发生复杂的物理化学过程, 环境空气颗粒物粒径(空气动力学直径, 下同)在 $100.00 \mu\text{m}$  以下均有分布. 为

了区分不同粒径段颗粒物特性, Whitey 将颗粒物划

收稿日期: 2021-12-10; 修订日期: 2022-01-30

基金项目: 北京市科技计划项目(Z191100009119011); 中央级公益性科研院所基本科研业务专项(2019YSKY-011)

作者简介: 张国涛(1993~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为大气颗粒物颗粒特征及来源解析, E-mail: zhangguotao20@mails.ucas.ac.cn

\* 通信作者, E-mail: zhangnan01@caes.org.cn

分为 3 种模态<sup>[5]</sup>, 即 Aitken 核模态(粒径小于 0.05  $\mu\text{m}$ )、积聚模态(粒径为 0.05 ~ 2.00  $\mu\text{m}$ )和粗模态(粒径大于 2.00  $\mu\text{m}$ )。

交通排放是城市空气颗粒物污染的主要来源之一<sup>[6]</sup>。交通过程产生的颗粒物主要包含尾气管排放和非尾气管排放两种来源。尾气管排放源主要是燃料燃烧过程产生的一次颗粒物和燃烧产物形成的二次颗粒物, 数浓度主要集中在粒径小于 0.10  $\mu\text{m}$  部分, 峰值一般出现在 0.10  $\mu\text{m}$  以下, 是道路细颗粒物数浓度主要来源<sup>[7~9]</sup>。非尾气管排放源主要包含制动器磨损、离合器磨损、轮胎磨损、路面磨损和道路再悬浮扬尘, 颗粒物数浓度分布较为复杂<sup>[10~13]</sup>。对于制动过程产生的颗粒物, Iijima 等<sup>[14,15]</sup>利用气溶胶粒径分析仪(aerosol particle size spectrometer, APS)发现不同材质的刹车片在制动过程中产生的颗粒物数浓度都在 0.50 ~ 2.00  $\mu\text{m}$  粒径区间出现峰值; Kukutschová 等<sup>[16]</sup>利用扫描电迁移率颗粒物粒径谱仪和 APS 发现制动过程中产生的颗粒物数浓度主要集中在 0.10  $\mu\text{m}$  左右。对于轮胎与路面磨损产生的颗粒物, Aatmeeyata 等<sup>[17]</sup>利用模拟实验发现轮胎与路面磨损产生的  $\text{PM}_{10}$  颗粒物数浓度呈双峰分布, 分别在 0.30  $\mu\text{m}$  和 4.50  $\mu\text{m}$  处产生峰值。本研究根据颗粒物数浓度的粒径分布特征解析道路环境颗粒物的主要来源, 能够进一步细化交通排放颗粒物的来源, 提出有针对性的减排建议。

受体模型法正定矩阵因子分解模型(positive matrix factorization, PMF)是颗粒物源解析工作中应用较多的方法之一。PMF 对来源的非负性限制, 能较好地对自然来源进行分解。PMF 可以通过颗粒物化学组成(水溶性离子、有机组分、碳组分和金属元素)解析来源<sup>[18,19]</sup>, 也可以利用颗粒物数浓度粒径分布进行源解析<sup>[20~22]</sup>。段菁春等<sup>[23]</sup>利用 PMF 对北京市道路颗粒物数浓度和气态污染物数据进行来源解析, 得到 2 个机动车排放源和 1 个燃煤污染源。Ogulei 等<sup>[21]</sup>对颗粒物粒径分布、化学组成和环境气态污染物进行解析, 得到 12 种颗粒物来源, 主要包括二次硝酸盐、二次硫酸盐、本地汽油车交通排放和燃煤电厂排放等来源。Rivas 等<sup>[24]</sup>利用道路颗粒物数谱数据解析得到交通来源、二次气溶胶来源和生物气溶胶来源等 6 种颗粒物来源。对不同粒径颗粒物进行来源解析, 明确不同粒径范围颗粒物的主要来源, 能够对公众减少颗粒物暴露提供引导性建议。

天津市位于京津冀地区, 随着经济的不断发展, 城市机动车保有量不断上升, 2017 ~ 2019 年期间, 汽车总量每年增加 10 万辆以上<sup>[25]</sup>, 交通活动产生

的颗粒物危害愈加受到重视<sup>[26,27]</sup>。本研究利用气溶胶粒径谱仪在天津市南开区主干道对道路环境颗粒物进行观测, 分析颗粒物数浓度粒径分布特征, 解析不同粒径颗粒物的主要来源, 探讨温度和相对湿度对道路环境颗粒物的影响, 以期制定合理的交通减排政策及行人出行方案提供科学依据。

## 1 材料与方法

### 1.1 观测时间与地点

本研究选择天津市南开区交通道路环境进行采样。南开区属于天津市中心城区, 在 6 个市内行政区中人口数量最多(约 90 万人), 是天津市著名的文化教育区。采样点位于卫津路 and 同安道交口(39°6' N, 117°11' E), 西毗南开大学八里台校区, 东临天津医科大学, 南接八里台立交桥, 道路车流量较大。采样时间选择在 2018 年冬季(2018 年 11 月 19 日至 2019 年 1 月 6 日)开展, 于工作日早高峰(07:30 ~ 09:20)期间对道路环境颗粒物进行采样, 并同时记录温度和相对湿度。

### 1.2 采样仪器及数据分析

使用便携式气溶胶粒径谱仪(Grimm Aerosol 11-A, 德国)对颗粒物粒径分布进行观测。该仪器利用激光散射原理对颗粒物进行测量计数, 可提供 0.25 ~ 32.00  $\mu\text{m}$  粒径区间不同粒径通道的颗粒物数浓度。仪器采样流量为 1.2  $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ , 时间分辨率为 1 min, 仪器精度为 1  $\text{L}^{-1}$ 。每次采样前仪器会进行系统自检和零校准检查, 将仪器架设在采样推车上, 能够测量接近人体呼吸带高度的颗粒物数浓度粒径数据。采样期间的温度和相对湿度由 Q-Trak 7575 (TSI, 美国)观测得到, 时间分辨率为 1 min, 仪器分辨率分别为 0.1  $^{\circ}\text{C}$  (温度)和 0.1% (相对湿度)。采样期间无降水。

### 1.3 PMF 源解析方法

Paatero 等<sup>[28]</sup>1993 年提出的正定矩阵因子分解模型(PMF), 已广泛应用于颗粒物来源解析研究。PMF 模型首先计算输入数据中不同因子的误差, 再通过最小二乘法找到最优的源矩阵及贡献矩阵(两个矩阵都为非负矩阵)。PMF 模型假设输入的数据矩阵  $X$  可定义为:

$$X = S \times F + E \quad (1)$$

式中,  $S$  为源矩阵,  $F$  为贡献矩阵,  $E$  为误差矩阵。运用美国环保署(EPA)开发的 PMF 5.0 软件进行 PMF 源解析, 需要输入数浓度和不确定度数据。数浓度即环境颗粒物采样数据, 不确定度计算公式如下:

$$\delta_{ij} = \alpha \cdot (x_{ij} + \bar{x}) \quad (2)$$

$$s_{ij} = \delta_{ij} + C \times \bar{x} \quad (3)$$

式中,  $\delta_{ij}$  为测量误差;  $\alpha$  为常数;  $x_{ij}$  为第  $i$  个样品第  $j$  个观测值 (颗粒物数浓度);  $\bar{x}$  为第  $i$  个样品观测值的算术均值;  $s_{ij}$  为不确定度;  $C$  为常数.

$\alpha$  和  $C$  的选择需要使计算结果满足一定的条

件: 比例残差 (scaled residuals) 在  $\pm 2$  (或者  $\pm 3$ ) 之间; 已有研究中参数的选择见表 1. 通过调整  $\alpha$  和  $C$  对计算得到的信噪比 (S/N) 和比例残差进行比较, 最终确定  $\alpha = 0.01$ ,  $C = 0.20$  为本研究计算不确定度的参数值.

表 1 已有研究的参数选择及残差检验

Table 1 Parameter selection and residual test in existing studies in the literature

文献	$\alpha$	$C$	比例残差 ( $\pm$ )	文献	$\alpha$	$C$	比例残差 ( $\pm$ )
[20]	0.01	0.40	2	[24]	0.02	0.18	3
[21]	0.05	0.50	2		0.01	0.40	2
[22]	0.05	0.10	4		0.05	0.10	4
本研究	0.01	0.20	3				

## 2 结果与讨论

### 2.1 总体特征

如表 2 所示, 冬季早高峰期间, 颗粒物的数浓度平均值为  $(502 \pm 493) \text{ cm}^{-3}$ , 其中积聚态颗粒物数浓

度为  $500 \text{ cm}^{-3}$ , 粗模态数浓度约为  $2 \text{ cm}^{-3}$ . 不同月份颗粒物数浓度大小为: 2018 年 11 月 > 2019 年 1 月 > 2018 年 12 月; 观测期间温度平均值为  $0^\circ\text{C}$ , 相对湿度平均值为 40%.

图 1 (a) 为早高峰期间环境温度和相对湿度的

表 2 观测期间变量特征统计

Table 2 Statistical characteristics of variables during observation period

采样时间 (年-月)	总浓度/ $\text{cm}^{-3}$	积聚态/ $\text{cm}^{-3}$	粗模态/ $\text{cm}^{-3}$	温度/ $^\circ\text{C}$	相对湿度/%
2018-11	$776 \pm 669$	$774 \pm 669$	$2 \pm 2$	$6 \pm 2$	$59 \pm 23$
2018-12	$377 \pm 346$	$376 \pm 346$	$1 \pm 2$	$-2 \pm 4$	$33 \pm 15$
2019-01	$572 \pm 428$	$571 \pm 427$	$1 \pm 0$	$-3 \pm 1$	$36 \pm 8$
冬季	$502 \pm 493$	$500 \pm 492$	$2 \pm 2$	$0 \pm 5$	$40 \pm 20$

均值变化特征. 温度变化范围为  $0.6 \sim 1.4^\circ\text{C}$ , 随时间变化呈缓慢上升趋势; 相对湿度变化范围为 34% ~ 44%, 随时间变化呈缓慢下降趋势. 由于不同粒径段数浓度差异较大, 将颗粒物分为  $0.25 \sim 0.30$ 、 $0.30 \sim 0.50$ 、 $0.50 \sim 1.00$ 、 $1.00 \sim 2.00$  和  $> 2.00 \mu\text{m}$  这 5 个粒径段, 同时对比总数浓度平均值分析时间变化趋势. 如图 1 (b) 所示, 颗粒物总数浓度变化范围为  $472 \sim 542 \text{ cm}^{-3}$ , 在 08:14 前缓慢上升, 随后呈下降趋势. 颗粒物数浓度主要集中在  $1.00 \mu\text{m}$

以下粒径段, 数浓度占比在 99.0% 以上. 随着粒径的增大, 数浓度急剧下降; 当粒径大于  $1.00 \mu\text{m}$  时, 数浓度在  $6 \text{ cm}^{-3}$  以下. 该现象与其他相似研究较为相近, 如彭爽等<sup>[29]</sup> 的研究发现成都市大气中粒径在  $0.25 \sim 0.50 \mu\text{m}$  的颗粒物数浓度占比达到 98.0% (采样粒径区间:  $0.25 \sim 32.00 \mu\text{m}$ ); 刘永明等<sup>[30]</sup> 的研究发现重庆冬季气溶胶以细粒子为主, 占总数浓度的 98.0% 左右 (采样粒径区间:  $0.30 \sim 12.00 \mu\text{m}$ ).  $0.25 \sim 0.30$  和  $0.30 \sim 0.50 \mu\text{m}$  粒径段数浓度

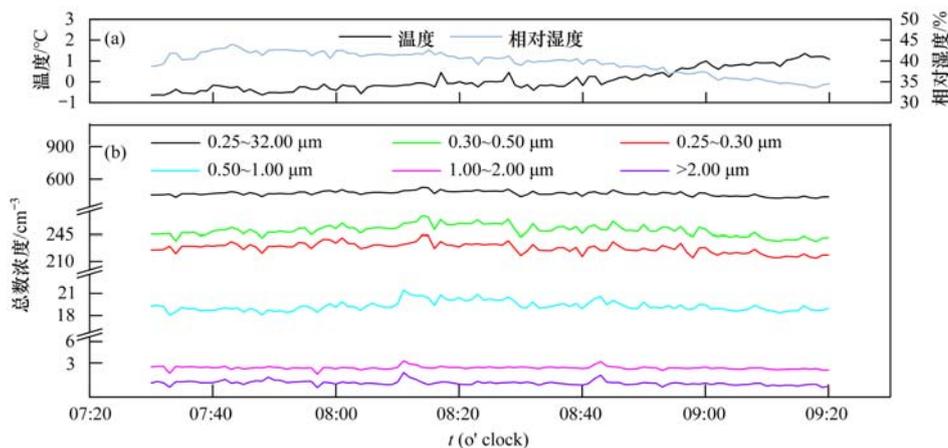


图 1 冬季早高峰温度和不同粒径段颗粒物数浓度变化特征

Fig. 1 Variation characteristics of the temperature, relative humidity, and number concentration of particulate matter of different sizes in the winter

的时间变化趋势与总数浓度平均值变化趋势一致,呈现先上升后下降趋势,这可能与早高峰期间车流量变化有关.此外,随着太阳辐射的增强,大气边界层抬升,有利于颗粒物的扩散,也是总数浓度下降的可能原因<sup>[31]</sup>.

## 2.2 谱分布特征

采样期间,交通道路环境颗粒物数浓度谱分布特征如图2(a)和2(b)所示.不同时间尺度下颗粒物数浓度变化趋势较为一致,均呈现单峰分布,峰值在0.28~0.30 μm 粒径段.吴丹等<sup>[32]</sup>发现南京北郊冬季颗粒物同样在0.58~0.63 μm 存在峰值(观测粒径段为0.50~20.00 μm).彭爽等<sup>[29]</sup>则在成都发现冬季颗粒物数浓度在大于0.25 μm 粒径段随着粒径的增加呈下降趋势,峰值小于0.25 μm.采样点位于交通道路旁,机动车尾气从排放到被观测经历了冷凝、凝结增长和二次反应等物理化学过程<sup>[33,34]</sup>.此外,积聚态气溶胶相比于Aitken模态和粗模态气溶胶,在空气中停留时间最长,颗粒物粒径会不断增长,最终可能导致颗粒物数浓度在积聚态粒径段出现峰值<sup>[35]</sup>,而实际观测条件的差异则可能造成数浓度峰值产生偏移.

同一时间尺度下,相同粒径段颗粒物数浓度分布存在差异.由图2(a)和2(b)可发现,不同月份和不同工作日在小于0.70 μm 粒径段颗粒物数浓度都存在较大差异.随着粒径的增大,数浓度则愈加接近,当粒径大于0.70 μm,数浓度差异不明显.冬季不同月份数浓度差异可能是温湿度差异导致的,而工作日差异则可能与机动车限行有关.

图2(c)给出了不同工作日总数浓度与机动车限行占比分布情况.周一和周四总数浓度较高,颗粒物污染较为严重;周二、周三和周五则较低,污染较轻.采样期间天津市机动车尾号占比及限行政策在不同工作日分别为:周一17.9%(尾号限行为2和7)、周二21.6%(尾号限行为3和8)、周三15.2%(尾号限行为4和9)、周四21.1%(尾号限行为5、0和字母)和周五24.2%(尾号限行为1和6).除周三以外,其余工作日颗粒物数浓度整体上表现出机动车限行占比高,总数浓度水平低的特点.结合图2(b)可知,不同工作日颗粒物数浓度主要粒径段(0.70 μm 以下)变化趋势与总数浓度一致,表明限行机动车的占比直接影响了机动车颗粒物的排放,首先影响较小粒径段颗粒物数浓度,进而影响颗粒物总数浓度<sup>[9]</sup>.周三处于一周的中间点,机动车限行占比低且数浓度低,可能与机动车的活动水平变化有关.整体而言,机动车限行占比小的工作日,机动车直接产生的颗粒物增多,更容易造成道路颗

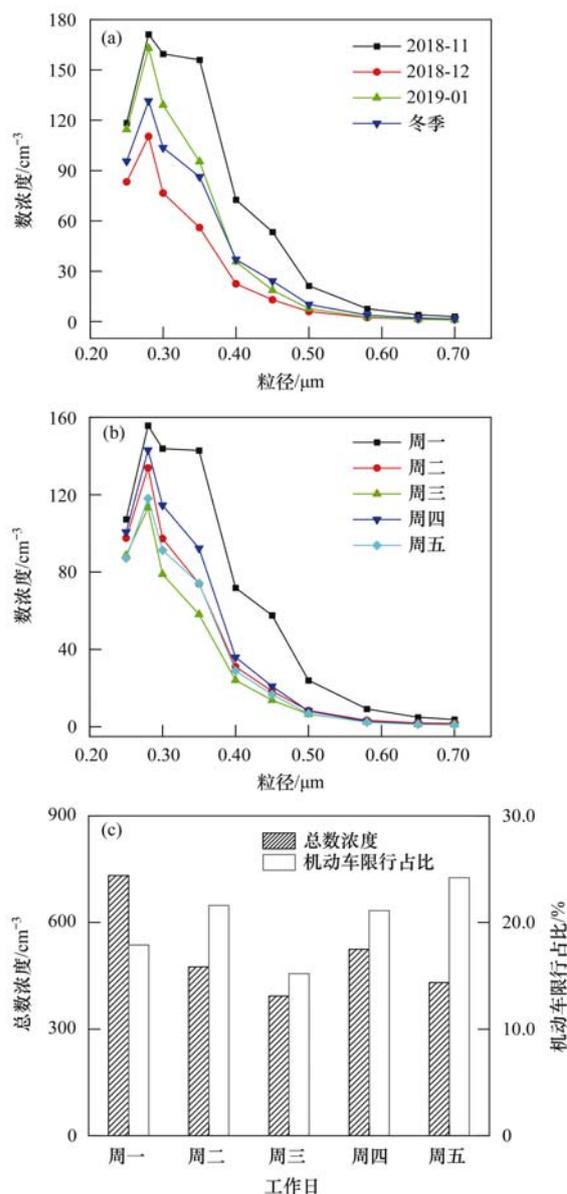


图2 冬季不同月份和不同工作日颗粒物谱分布特征及机动车限行占比

Fig. 2 Distribution characteristics of particle size spectrum on different weekdays and months in winter and proportion of vehicles restricted on weekdays

颗粒物总数浓度的增加,影响城市空气质量.天津市现在实行的机动车尾号限行规则是将尾号固定组合,三个月进行一次轮换,并未考虑不同尾号机动车的实际占比,使得不同工作日机动车限行占比不均衡.依据机动车尾号占比进行合理组合,使得工作日机动车限行占比相近,能在一定程度上减少道路颗粒物数浓度高值出现的频率,降低对城市空气质量的影响.

## 2.3 温度和湿度对颗粒物的影响

通过 Pearson 相关性分析(下同)发现颗粒物总数浓度与温度呈正相关关系( $r = 0.48$ ,  $P < 0.01$ ).为探究不同温度下颗粒物数浓度分布特征,将温度

以 5℃ 为间隔进行分级,即 < -10、-10 ~ -5、-5 ~ 0、0 ~ 5 和 5 ~ 10℃ 共 5 级. 不同采样温度下颗粒物数浓度分布如图 3(a) 和 3(b) 所示. 随着温度的上升,总数浓度呈现上升趋势; 粒径分布为单峰分布,峰值在 0.28 ~ 0.30 μm 粒径段且不随温度变化. 有研究表明粒径在 0.10 μm 以下的城市颗粒物总数浓度随温度升高而下降<sup>[36,37]</sup>. 积聚态颗粒物在大气中停留时间最长,且随着温度的升高,超细粒子有利于碰撞生长形成细粒子,导致观测粒径段颗粒物总数浓度上升<sup>[35]</sup>.

相关性分析表明颗粒物总数浓度与相对湿度呈正相关关系( $r = 0.62$ ,  $P < 0.01$ ). 将观测时段内的相对湿度按大小划分为 10% ~ 40%、40% ~ 60%、60% ~ 80% 和 80% ~ 90% 共 4 级. 不同相对湿度条件下颗粒物数浓度分布如图 3(c) 和 3(d) 所示. 颗粒物峰值数浓度整体随着相对湿度的升高而增加,

但在 40% ~ 80% 范围内变化不明显. 相对湿度低于 80% 时,颗粒物数浓度峰值在 0.28 ~ 0.30 μm 粒径段; 相对湿度大于 80% 时,数浓度峰值粒径段由 0.28 ~ 0.30 μm 偏移至 0.35 ~ 0.40 μm. Jamriska 等<sup>[38]</sup>的研究发现相对湿度与交通活动产生的颗粒物数浓度呈正相关关系,且对 0.15 ~ 0.88 μm 粒径范围内颗粒物数浓度存在显著影响,该现象可能与粒径生长、交通排放和来自非交通来源的颗粒物吸湿特性的变化有关. Köhler<sup>[39]</sup>的研究表明对于粒径在 1.00 μm 以下的颗粒物,相对湿度的增加有利于颗粒物的凝结增长,且影响较大区域出现在 0.30 ~ 0.50 μm 左右; 对大于 1.00 μm 的颗粒物则影响较小. 相对湿度的升高有利于颗粒物的凝结增长,在高湿度条件下道路环境颗粒物易于累积与吸湿增长,使得颗粒物数浓度出现峰值,且高湿条件下峰值粒径发生变化.

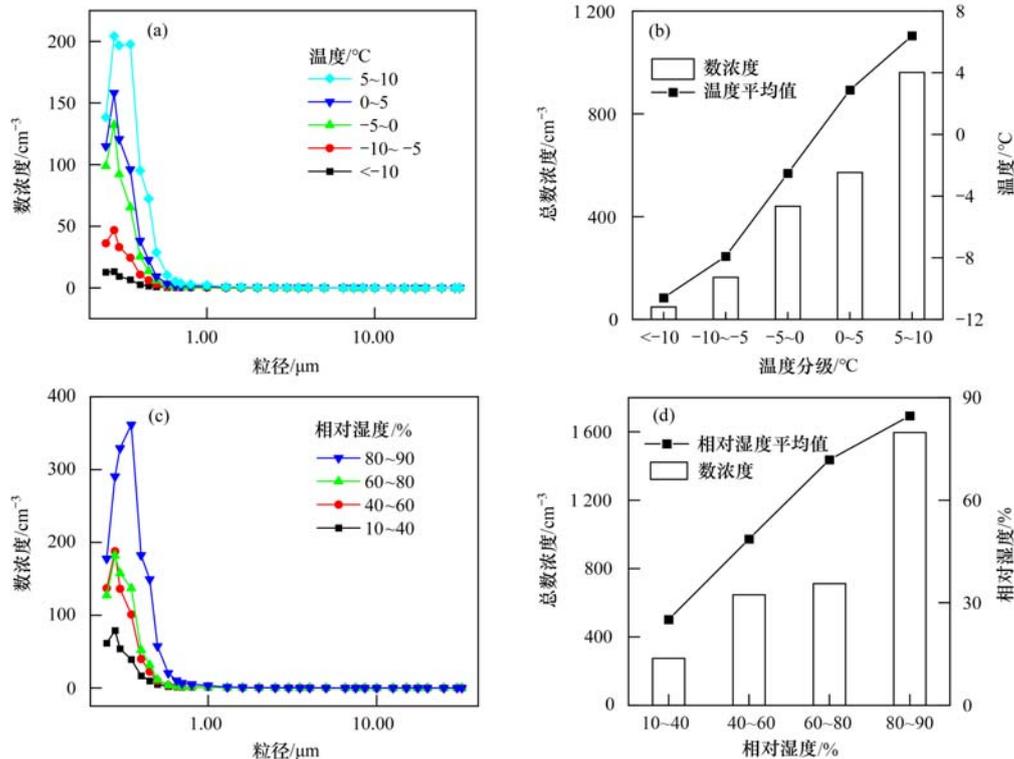


图 3 冬季温度和相对湿度分级与颗粒物关系

Fig. 3 Relationship between temperature and relative humidity classification and particulate matter in the winter

## 2.4 PMF 源解析

使用 EPA PMF 5.0 对采样期间道路环境不同粒径颗粒物进行来源解析. 通过数据有效率选择输入模型的粒径段. 以仪器检出限为依据, 高于检出限的数据即为有效数据<sup>[40]</sup>, 因此, 0.25 ~ 10.00 μm 粒径段的颗粒物数浓度数据参与源解析计算. 依据文献确定参数  $\alpha$  和  $C$ , 还需要确定排放源因子数. 通过对运行结果分析得到: 当因子数为 3 时,  $Q_{\text{min}}$  值和  $Q_{\text{robust}}$  值较为接近, 数浓度拟合值与实际值拟合效果

较好 ( $R^2 > 0.85$ , 斜率介于 0.82 ~ 1.10 之间), 表明该解析结果较为合理. 经多次程序运行, 测试不确定性参数和调整因子数最终识别出 3 类颗粒物来源.

因子 1 对总数浓度的贡献率为 8.6%, 图 4(a) 可发现粒径大于 5.00 μm 的颗粒物主要集中在该因子中, 本研究认为该因子为道路尘. 此类排放源是道路积尘在一定的动力条件 (风力、机动车碾压和人群活动等) 的作用下进入环境空气中形成的扬尘<sup>[13]</sup>. 有研究表明道路尘粒径主要分布在 1.00 ~

2.00 mm 之间<sup>[41~44]</sup>. 有研究则进一步表明道路环境颗粒物数浓度主要集中在 10.00 ~ 50.00  $\mu\text{m}$  之间<sup>[45,46]</sup>. 相比道路环境的其它颗粒物来源,道路尘粒径分布主要集中在较大粒径段<sup>[14,19]</sup>,结合因子 1 的特征粒径,故将其归结为道路尘.

因子 2 对总数浓度的贡献率为 2.8%,图 4(b)表明该因子主要集中了粒径范围在 0.80 ~ 4.00  $\mu\text{m}$  之间的颗粒物. 本研究认为该因子为刹车与轮胎磨损. 刹车过程中产生的颗粒物主要来源于高温造成的刹车片和轮胎化学组分的挥发冷凝<sup>[47]</sup>和机械制动<sup>[17,48]</sup>. Sanders 等<sup>[47]</sup>的研究认为不同材质刹车片制动过程中颗粒物数浓度在 1.00  $\mu\text{m}$  及以下存在峰值. 同时有研究发现轮胎与路面磨损产生的粒径小于 10.00  $\mu\text{m}$  的颗粒物数浓度在 0.30  $\mu\text{m}$  和 4.00 ~ 5.00  $\mu\text{m}$  处存在峰值<sup>[17]</sup>. 结合因子 2 数浓度谱分布特征,故将其归结为刹车与轮胎磨损共同作用来源.

因子 3 对总数浓度的贡献率为 88.5%,由图 4(c)可知 0.65  $\mu\text{m}$  以下粒径段的颗粒物主要集中在

该因子中,本研究认为该因子为机动车尾气管排放颗粒物老化来源. 机动车尾气管排放颗粒物粒径主要集中在 0.10  $\mu\text{m}$  以下,且数浓度较高<sup>[7~9]</sup>. 樊筱筱<sup>[9]</sup>的研究发现,两种类型汽油机汽车和一种轻型柴油车尾气管排放的颗粒物峰值粒径分别为 0.03、0.09 和 0.11  $\mu\text{m}$ . 陆叶强等<sup>[8]</sup>的研究发现在不同怠速情况下汽车尾气管排放颗粒物峰值粒径集中在 0.01  $\mu\text{m}$  和 0.05  $\mu\text{m}$ ,峰值数浓度达  $10^5 \text{ cm}^{-3}$ . 胡志远等<sup>[7]</sup>的研究分析了不同驾驶工况下汽车尾气管颗粒物排放粒径分布特征,基本上呈单峰分布,峰值粒径主要集中在 0.01 ~ 0.03  $\mu\text{m}$  粒径段,峰值数浓度达到  $10^8 \text{ cm}^{-3}$ . 汽车尾气管排放颗粒物在扩散过程中会发生凝并过程,导致颗粒物粒径增长. 本研究为行人道采样,汽车尾气管排放的颗粒物经过老化和凝并,特征粒径较源排放颗粒物粒径有所增大. 因子 3 主要含有粒径小于 0.65  $\mu\text{m}$  的颗粒物,且是道路颗粒物数浓度的主要来源,因此将因子 3 归结为机动车尾气管排放颗粒物老化来源.

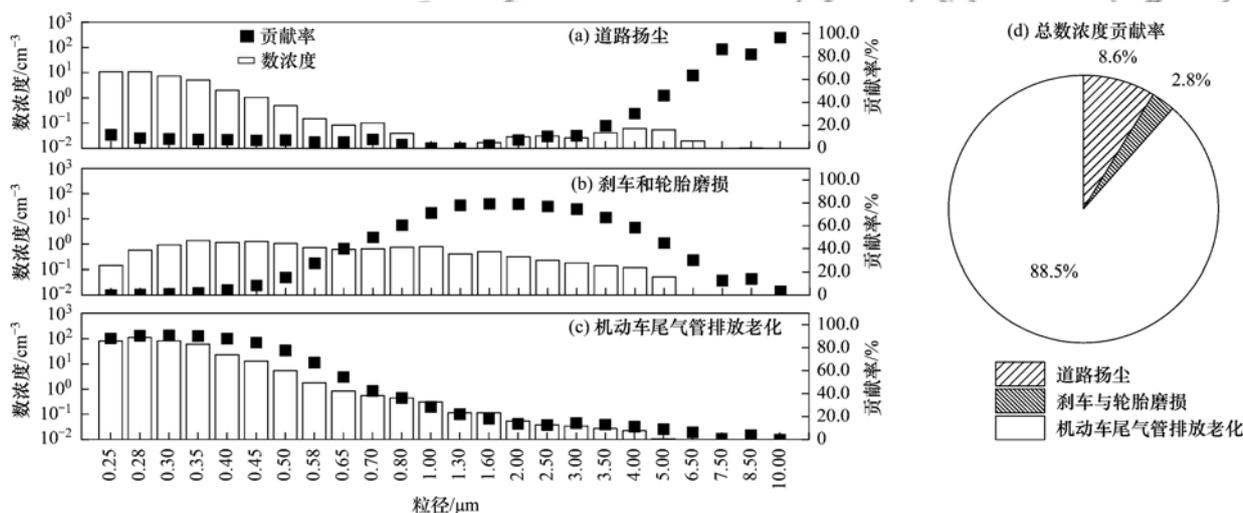


图 4 不同来源下颗粒物粒径组成特征

Fig. 4 Particle size composition of different sources

### 3 结论

(1) 天津市冬季交通早高峰期间,道路旁颗粒物数浓度呈现先增后降的趋势,在 08:14 左右达到峰值,数浓度平均值为  $502 \text{ cm}^{-3}$ ; 不同时间尺度下道路颗粒物粒径谱呈现单峰分布,峰值浓度在 0.28 ~ 0.30  $\mu\text{m}$  粒径段.

(2) 不同工作日数谱分布差异主要与机动车活动有关. 机动车尾号限行政策在一定程度上能控制交通活动产生的颗粒物水平,建议限行政策依据不同尾号实际占比进行合理分配,能减少道路颗粒物对城市空气质量的影响.

(3) 不同温度和相对湿度下,道路颗粒物粒径

谱呈现单峰分布. 随着环境温度的上升,颗粒物峰值数浓度呈现上升趋势但峰值粒径未发生偏移. 随着相对湿度的上升,颗粒物峰值数浓度同样呈现增高趋势,当相对湿度大于 80%,数浓度峰值所在粒径段由 0.28 ~ 0.30  $\mu\text{m}$  偏移至 0.35 ~ 0.40  $\mu\text{m}$ .

(4) 通过 PMF 对道路旁颗粒物数浓度进行来源解析,解析得到道路尘、刹车与轮胎磨损和机动车尾气管排放老化这 3 个主要来源. 道路尘主要涵盖了粒径大于 5.00  $\mu\text{m}$  的颗粒物,数浓度贡献率为 8.6%; 刹车与轮胎磨损来源主要包含粒径在 0.80 ~ 4.00  $\mu\text{m}$  范围内的颗粒物,数浓度贡献率为 2.8%; 机动车尾气管排放老化来源主要包含粒径小于 0.65  $\mu\text{m}$  的颗粒物,数浓度贡献率为 88.5%,

占比最大。

#### 参考文献:

- [ 1 ] Intergovernmental Panel on Climate Change. Climate Change 2013: The Physical Science Basis: Working Group I contribution to the fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [ M ]. London: Cambridge University Press, 2014.
- [ 2 ] World Health Organization. World Health Statistics 2020: Monitoring Health for the SDGs, Sustainable Development Goals [ M ]. Geneva: World Health Organization, 2020.
- [ 3 ] Belis C A, Karagulian F, Larsen B R, *et al.* Critical review and meta-analysis of ambient particulate matter source apportionment using receptor models in Europe [ J ]. Atmospheric Environment, 2013, **69**: 94-108.
- [ 4 ] Fuzzi S, Baltensperger U, Carslaw K, *et al.* Particulate matter, air quality and climate: lessons learned and future needs [ J ]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, **15** ( 14 ): 8217-8299.
- [ 5 ] Whitey K T. The physical characteristics of sulfur aerosols [ J ]. Atmospheric Environment, 2007, **41**: 25-49.
- [ 6 ] 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.
- [ 7 ] 胡志远, 李金, 谭丕强, 等. 汽油轿车 NEDC 循环超细颗粒物排放特性 [ J ]. 环境科学, 2012, **33** ( 12 ): 4181-4187.  
Hu Z Y, Li J, Tan P Q, *et al.* Research on NEDC ultrafine particle emission characters of a port fuel injection gasoline car [ J ]. Environmental Science, 2012, **33** ( 12 ): 4181-4187.
- [ 8 ] 陆叶强, 陈秋方, 孙在, 等. 汽车排放超细微粒子浓度及粒径谱特征的实验研究 [ J ]. 环境科学, 2014, **35** ( 9 ): 3309-3314.  
Lu Y Q, Chen Q F, Sun Z, *et al.* Ultrafine particle number concentration and size distribution of vehicle exhaust ultrafine particles [ J ]. Environmental Science, 2014, **35** ( 9 ): 3309-3314.
- [ 9 ] 樊筱筱. 轻型车排放颗粒物数浓度、粒径分布和有效密度特征研究 [ D ]. 北京: 清华大学, 2016.
- [ 10 ] Amato F, Cassee F R, Van Der Gon H A C D, *et al.* Urban air quality: the challenge of traffic non-exhaust emissions [ J ]. Journal of Hazardous Materials, 2014, **275**: 31-36.
- [ 11 ] Casotti Rienda I, Alves C A. Road dust resuspension: A review [ J ]. Atmospheric Research, 2021, **261**, doi: 10.1016/j.atmosres.2021.105740.
- [ 12 ] Piscitello A, Bianco C, Casasso A, *et al.* Non-exhaust traffic emissions: sources, characterization, and mitigation measures [ J ]. Science of the Total Environment, 2021, **766**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.144440.
- [ 13 ] HJ/T 393-2007, 防治城市扬尘污染技术规范 [ S ].
- [ 14 ] Iijima A, Sato K, Yano K, *et al.* Particle size and composition distribution analysis of automotive brake abrasion dusts for the evaluation of antimony sources of airborne particulate matter [ J ]. Atmospheric Environment, 2007, **41** ( 23 ): 4908-4919.
- [ 15 ] Iijima A, Sato K, Yano K, *et al.* Emission factor for antimony in brake abrasion dusts as one of the major atmospheric antimony sources [ J ]. Environmental Science & Technology, 2008, **42** ( 8 ): 2937-2942.
- [ 16 ] Kukutschová J, Moravec P, Tomášek V, *et al.* On airborne nano/micro-sized wear particles released from low-metallic automotive brakes [ J ]. Environmental Pollution, 2011, **159** ( 4 ): 998-1006.
- [ 17 ] Aatmeeyata N, Kaul D S, Sharma M. Traffic generated non-exhaust particulate emissions from concrete pavement: A mass and particle size study for two-wheelers and small cars [ J ]. Atmospheric Environment, 2009, **43** ( 35 ): 5691-5697.
- [ 18 ] Huang R J, Zhang Y L, Bozzetti C, *et al.* High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China [ J ]. Nature, 2014, **514** ( 7521 ): 218-222.
- [ 19 ] Wu H, Li Z Q, Jiang M J, *et al.* Contributions of traffic emissions and new particle formation to the ultrafine particle size distribution in the megacity of Beijing [ J ]. Atmospheric Environment, 2021, **262**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2021.118652.
- [ 20 ] Ogulei D, Hopke P K, Wallace L A. Analysis of indoor particle size distributions in an occupied townhouse using positive matrix factorization [ J ]. Indoor Air, 2006, **16** ( 3 ): 204-215.
- [ 21 ] Ogulei D, Hopke P K, Zhou L M, *et al.* Source apportionment of Baltimore aerosol from combined size distribution and chemical composition data [ J ]. Atmospheric Environment, 2006, **40**: 396-410.
- [ 22 ] Ogulei D, Hopke P K, Chalupa D C, *et al.* Modeling source contributions to submicron particle number concentrations measured in Rochester, New York [ J ]. Aerosol Science and Technology, 2007, **41** ( 2 ): 179-201.
- [ 23 ] 段青春, 李兴华, 谭吉华, 等. 北京冬季大气颗粒物数浓度的粒径分布特征及来源 [ J ]. 环境科学研究, 2009, **22** ( 10 ): 1134-1140.  
Duan J C, Li X H, Tan J H, *et al.* Size distribution and source apportionment of atmospheric particle number concentration in winter in Beijing [ J ]. Research of Environmental Sciences, 2009, **22** ( 10 ): 1134-1140.
- [ 24 ] Rivas I, Beddows D C S, Amato F, *et al.* Source apportionment of particle number size distribution in urban background and traffic stations in four European cities [ J ]. Environment International, 2020, **135**, doi: 10.1016/j.envint.2019.105345.
- [ 25 ] 天津市统计局. 天津统计年鉴 [ R ]. 北京: 中国统计出版社, 2017-2020.
- [ 26 ] Zhang N, Han B, He F, *et al.* Characterization, health risk of heavy metals, and source apportionment of atmospheric PM<sub>2.5</sub> to children in summer and winter: an exposure panel study in Tianjin, China [ J ]. Air Quality, Atmosphere & Health, 2015, **8** ( 4 ): 347-357.
- [ 27 ] Wang B Q, Liu J F, Liu B W, *et al.* Personal exposure to PM<sub>2.5</sub> associated with heavy metals in four travel modes of Tianjin during the summer season [ J ]. Environmental Science and Pollution Research, 2017, **24** ( 7 ): 6667-6678.
- [ 28 ] Paatero P. Least squares formulation of robust non-negative factor analysis [ J ]. Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 1997, **37** ( 1 ): 23-35.
- [ 29 ] 彭爽, 康平, 张小玲, 等. 成都市大气颗粒物粒径分布及其对能见度的影响 [ J ]. 环境科学学报, 2020, **40** ( 12 ): 4432-4441.  
Peng S, Kang P, Zhang X L, *et al.* Size distribution of atmospheric particles in Chengdu and its influence on visibility [ J ]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2020, **40** ( 12 ): 4432-4441.
- [ 30 ] 刘永明, 廖代强, 朱彬, 等. 重庆市冬季气溶胶粒子的物理特征观测 [ J ]. 环境影响评价, 2019, **41** ( 2 ): 63-66, 70.  
Liu Y M, Liao D Q, Zhu B, *et al.* Physical characteristics observation of aerosol particles in Chongqing City in Winter [ J ].

- Environmental Impact Assessment, 2019, **41**(2): 63-66, 70.
- [31] Stull R B. An introduction to boundary layer meteorology[M]. Dordrecht: Springer Science & Business Media, 1988.
- [32] 吴丹, 张璠, 刘刚, 等. 南京北郊冬春季气溶胶数浓度变化特征分析[J]. 环境科学, 2017, **38**(10): 4015-4023.  
Wu D, Zhang F, Liu G, *et al.* Pollution characteristics of aerosol number concentration in winter and spring in a northern suburb of Nanjing[J]. Environmental Science, 2017, **38**(10): 4015-4023.
- [33] Charron A, Harrison R M. Primary particle formation from vehicle emissions during exhaust dilution in the roadside atmosphere[J]. Atmospheric Environment, 2003, **37**(29): 4109-4119.
- [34] Liu Y, Shao M, Fu L L, *et al.* Source profiles of volatile organic compounds (VOCs) measured in China: Part I[J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(25): 6247-6260.
- [35] Seinfeld J H, Pandis S N. Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change (3rd ed.) [M]. Hoboken: John Wiley & Sons, Inc., 2016.
- [36] Hussein T, Karppinen A, Kukkonen J, *et al.* Meteorological dependence of size-fractionated number concentrations of urban aerosol particles[J]. Atmospheric Environment, 2006, **40**(8): 1427-1440.
- [37] Olivaresv G, Johansson C, Ström J, *et al.* The role of ambient temperature for particle number concentrations in a street canyon [J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(10): 2145-2155.
- [38] Jamriska M, Morawska L, Mergersen K. The effect of temperature and humidity on size segregated traffic exhaust particle emissions [J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(10): 2369-2382.
- [39] Köhler H. The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets [J]. Transactions of the Faraday Society, 1936, **32**: 1152-1161.
- [40] Huang X F, Zou B B, He L Y, *et al.* Exploration of PM<sub>2.5</sub> sources on the regional scale in the Pearl River Delta based on ME-2 modeling[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, **18**(16): 11563-11580.
- [41] Acosta J A, Faz Á, Kalbitz K, *et al.* Heavy metal concentrations in particle size fractions from street dust of Murcia (Spain) as the basis for risk assessment [J]. Journal of Environmental Monitoring, 2011, **13**(11): 3087-3096.
- [42] Shen Z Y, Liu J, Aini G, *et al.* A comparative study of the grain-size distribution of surface dust and stormwater runoff quality on typical urban roads and roofs in Beijing, China[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2016, **23**(3): 2693-2704.
- [43] Zannoni D, Valotto G, Visin F, *et al.* Sources and distribution of tracer elements in road dust: The Venice mainland case of study [J]. Journal of Geochemical Exploration, 2016, **166**: 64-72.
- [44] Aryal R, Beecham S, Sarkar B, *et al.* Readily wash-off road dust and associated heavy metals on motorways[J]. Water, Air, & Soil Pollution, 2017, **228**(1), doi: 10.1007/s11270-016-3178-3.
- [45] 汪志荣, 刘珊珊, 李洁, 等. 城市不同级别道路尘土的粒径特性分析[J]. 生态环境学报, 2018, **27**(2): 282-289.  
Wang Z R, Liu S S, Li J, *et al.* Particle size characteristics of dust in different grade urban roads [J]. Ecology and Environmental Sciences, 2018, **27**(2): 282-289.
- [46] Chen J H, Zheng H F, Wang W, *et al.* Resuspension method for road surface dust collection and aerodynamic size distribution characterization[J]. China Particology, 2006, **4**(6): 300-303.
- [47] Sanders P G, Xu N, Dalka T M, *et al.* Airborne brake wear debris: size distributions, composition, and a comparison of dynamometer and vehicle tests [J]. Environmental Science & Technology, 2003, **37**(18): 4060-4069.
- [48] Kukutschová J, Roubíček V, Malachová K, *et al.* Wear mechanism in automotive brake materials, wear debris and its potential environmental impact [J]. Wear, 2009, **267**(5-8): 807-817.

## CONTENTS

Temporal and Spatial Variation Characteristics of Heavy Metal in Atmospheric Deposition in China from 2000 to 2018 .....	CHEN Qi-yong, GAO Yun-bing, NI Run-xiang, <i>et al.</i> (4413)
Simulation of PM <sub>2.5</sub> Concentration Based on Optimized Indexes of 2D/3D Urban Form .....	LI Sha, ZOU Bin, LIU Ning, <i>et al.</i> (4425)
Characteristics of Carbonaceous Species in PM <sub>2.5</sub> in Chengdu Under the Background of Emission Reduction .....	CHEN Lu-yao, YU Yang-chun, HUANG Xiao-juan, <i>et al.</i> (4438)
Characteristics and Health Risk Assessment of Trace Elements in Atmospheric PM <sub>1</sub> During Autumn and Winter in Qingdao .....	LIU Zi-yang, ZHANG Yi-sheng, ZHANG Hou-yong, <i>et al.</i> (4448)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Atmospheric PM <sub>2.5</sub> -bound Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Port Area .....	WANG Peng-cheng, YANG Ling-xiao, BIE Shu-jun, <i>et al.</i> (4458)
Size Distribution and Source Apportionment of Road Particles During Winter in Tianjin .....	ZHANG Guo-tao, YIN Bao-hui, BAI Wen-yu, <i>et al.</i> (4467)
Characteristics and Impact Factors of Number Concentration of Primary Biological Aerosol Particles in Beijing .....	LIANG Lin-lin, LIU Chang, LIU Xu-yan, <i>et al.</i> (4475)
Characteristic Analysis and Source Apportionment of VOCs in Urban Areas of Beijing in Summer .....	MENG Xiang-lai, SUN Yang, LIAO Ting-ting, <i>et al.</i> (4484)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds (VOCs) in a Typical Industrial Area in Dongguan During Periods of Ozone and Non-ozone Pollution in Summer .....	ZHOU Zhen, XIAO Lin-hai, FEI Lei-lei, <i>et al.</i> (4497)
Temporal and Spatial Variation in Odor Pollution and Membrane Barrier Effect in Municipal Solid Waste Landfill .....	HE Pin-jing, LI Jian-chen, LÜ Fan, <i>et al.</i> (4506)
Comparison of Health Risk from Sources of Perfluoroalkyl Substances in Taihu Lake for Different Years .....	WU Ting, SUN Shan-wei, FAN Jing-pu, <i>et al.</i> (4513)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Typical and Emerging Per- and Polyfluoroalkylated Substances in Tuojiang River Basin .....	SONG Jiao-jiao, WANG Yi-mei, SUN Jing, <i>et al.</i> (4522)
Speciation and Risk of Heavy Metals in Surface Sediments of Different Types of Water Bodies in Baiyangdian Lake .....	XU Meng-ya, ZHANG Chao, SHAN Bao-qing, <i>et al.</i> (4532)
Distribution Coefficient of QNs in Urban Typical Water and Its Main Environmental Influencing Factors .....	JU Ze-jia, FU Yu, ZHAO Xin-yu, <i>et al.</i> (4543)
Ecological Risk Assessment of Quinolones Antibiotics and the Correlation Analysis Between QNs and Physical-Chemical Parameters in Groundwater, Shijiazhuang City .....	CHEN Hui, JU Ze-jia, ZHAO Xin-yu, <i>et al.</i> (4556)
Characteristics and Sources of DOM in Lake Sediments Under Different Inundation Environments .....	CHEN Jia, LI Zhong-wu, JIN Chang-sheng, <i>et al.</i> (4566)
Characteristics of Phytoplankton Community Structure and Their Relationships with Environmental Factors in Autumn in Qinhe River Basin of Jincheng Region .....	GAO Meng-die, LI Yan-fen, LI Yan-li, <i>et al.</i> (4576)
Integrated Assessment of Runoff Quality from Green Roofs with Different Configurations .....	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, YAN Jing, <i>et al.</i> (4587)
Degradation of Chloroquine Phosphate by UV-activated Persulfate .....	LI Yang, XU Bo-hui, DENG Lin, <i>et al.</i> (4597)
Removal Performance of Suspended Solid (SS) and Organic Compounds in the Pre-treatment of Actual Pharmaceutical Wastewater by Microbubble Ozonation .....	LIU Chun, CHEN Rui, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (4608)
Effects of Wastewater Discharge on Antibiotic Resistance Genes and Microbial Community in a Coastal Area .....	CHEN Jia-yu, SU Zhi-guo, YAO Peng-cheng, <i>et al.</i> (4616)
Effects of Biochar and Straw Returning on Soil Fungal Community Structure Diversity in Cotton Field with Long-term Brackish Water Irrigation .....	GUO Xiao-wen, CHEN Jing, LU Xiao-yu, <i>et al.</i> (4625)
Effects of Organic Materials on Phosphorus Fractions and <i>phoD</i> -harboring Bacterial Community in Karst Soil .....	XIA Xin, QIAO Hang, SUN Qi, <i>et al.</i> (4636)
Effects of Different Vegetation Types on Soil Microbial Functional Genes and Enzyme Activities in Reclaimed Coal Mine .....	NING Yue-wei, LIU Yong, ZHANG Hong, <i>et al.</i> (4647)
Effects of Biochar Application on Yellow Soil Nutrients and Enzyme Activities .....	YUAN Fang, LI Kai-yu, YANG Hui, <i>et al.</i> (4655)
Changes in Soil Bacterial Community Diversity in Degraded Patches of Alpine Meadow in the Source Area of the Yellow River .....	SUN Hua-fang, LI Xi-lai, JIN Li-qun, <i>et al.</i> (4662)
Effects of Simulated Nitrogen Deposition on Soil Microbial Carbon Metabolism in <i>Calamagrostis angustifolia</i> Wetland in Sanjiang Plain .....	WENG Xiao-hong, SUI Xin, LI Meng-sha, <i>et al.</i> (4674)
Spatial Distribution of Quinolone Antibiotics and Its Correlation Relationship with Microbial Community in Soil of Shijiazhuang City .....	ZHAO Xin-yu, JU Ze-jia, CHEN Hui, <i>et al.</i> (4684)
Composition Characteristics and Construction Mechanism of Microbial Community on Microplastic Surface in Typical Redox Environments .....	GONG Zhi-wei, MA Jie, SU Qu, <i>et al.</i> (4697)
Annual Nitrogen Removal Efficiency and Change in Abundance of Nitrogen Cycling Microorganisms in Swine Wastewater Treated by Crop Straw Materials .....	LIU Ming-yu, XIA Meng-hua, JIANG Lei, <i>et al.</i> (4706)
Effects of External Carbon Sources on Ultimate Nitrogen Removal Performance and Microbial Community in Secondary Effluent Treating Process .....	WANG Wei, ZHAO Zhong-yuan, ZHANG Xin, <i>et al.</i> (4717)
Microbial Community Structure of Activated Sludge for Total Nitrogen Upgrading Project .....	LI Hai-song, WANG Ke-dan, CHEN Xiao-lei, <i>et al.</i> (4727)
Analysis of Microbial Interaction Law of Mud Membrane in IFAS Process for Treating Low Carbon Source Sewage in South China .....	HE Jun-guo, JIANG Wei-xun, HE Zhuo-yi, <i>et al.</i> (4736)
Abundances and Morphology Patterns of Microplastics Under Different Land Use Types on the Loess Plateau .....	HAO Yong-li, HU Ya-xian, BAI Xiao-xiong, <i>et al.</i> (4748)
Evaluation of Heavy Metal Content, Sources, and Potential Ecological Risks in Soils of Southern Hilly Areas .....	WANG Yu, XIN Cun-lin, YU Shi, <i>et al.</i> (4756)
Risk Assessment and Attribution Analysis of "Five Toxic" Heavy Metals in Cultivated Land in Lanzhou .....	ZHANG Li-rui, PENG Xin-bo, MA Yan-long, <i>et al.</i> (4767)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metal Pollution in Farmland Soils and Crops in Luancheng, Shijiazhuang City .....	MENG Xiao-fei, GUO Jun-mei, YANG Jun-xing, <i>et al.</i> (4779)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Antimony in Typical Urban Soil .....	SHEN Cheng, YE Wen-juan, QIAN Shi-ying, <i>et al.</i> (4791)
Contamination Assessment and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Typical Villages and Towns in a Nonferrous Metal Mining City .....	WANG Feng, HUANG Yan-huan, LI Ru-zhong, <i>et al.</i> (4800)
Effect of Citric Acid and Mowing on Enhancing the Remediation of Cadmium Contaminated Soil by Napier Grass ( <i>Pennisetum purpureum</i> Schum) .....	TANG Qi, WU Gang-fan, GU Jiao-feng, <i>et al.</i> (4810)
Arsenic Methylation Efficiency Changes During Paddy Soil Drying and Its Key Influencing Factors Analysis .....	ZHANG Yue, LI Ling-yi, WEN Jiong, <i>et al.</i> (4820)
Effects of Exogenous Jasmonic Acid on Arsenic Accumulation and Response to Stress in Roots of Rice Seedlings .....	LI Yan, HUANG Yi-zong, BAO Qiong-li, <i>et al.</i> (4831)
Effects of Straw Returning and Fertilizer Application on Soil Nutrients and Winter Wheat Yield .....	SONG Jia-jie, XU Xi-yang, BAI Jin-ze, <i>et al.</i> (4839)
Effect of Winter Cover Cropping on Soil Greenhouse Gas Emissions in a Dryland Spring Maize Field on the Loess Plateau of China .....	ZHANG Shao-hong, WANG Jun, FANG Zhen-wen, <i>et al.</i> (4848)
Detection of Influencing Factors of Spatial Variability of Soil Respiration in Pangqiangou Nature Reserve .....	LI Xiao-min, YAN Jun-xia, DU Zi-qiang, <i>et al.</i> (4858)
Temporal and Spatial Variation Characteristics of Methane, Carbon Dioxide, and Nitrous Oxide Concentrations and the Influencing Factors in Small Aquaculture Pond .....	SHI Jie, ZHANG Mi, QIU Ji-li, <i>et al.</i> (4867)
Effect of Butyl Xanthate on Pb <sup>2+</sup> and Cd <sup>2+</sup> Adsorption by Soil Around a Dressing Plant .....	HU Zhi-hao, GUO Zhao-hui, RAN Hong-zhen, <i>et al.</i> (4878)
Sorption Mechanism and Site Energy Distribution of Acetaminophen on Straw-derived Biochar .....	SHANG Cen-yao, GU Ruo-ting, ZHANG Qiang, <i>et al.</i> (4888)
Spatial-temporal Variations and Their Driving Forces of the Ecological Vulnerability in the Loess Plateau .....	ZHANG Liang-xia, FAN Jiang-wen, ZHANG Hai-yan, <i>et al.</i> (4902)
Mechanism and Application of Plant Growth-Promoting Bacteria in Heavy Metal Bioremediation .....	MA Ying, WANG Yue, SHI Xiao-jun, <i>et al.</i> (4911)