

目次

2018~2020年北京市大气PM_{2.5}污染特征及改善原因 刘保献, 李倩, 孙瑞雯, 董瑞, 王书肖, 郝吉明 (2409)

京津冀城市群冬季二次PM_{2.5}的时空分布特征 姚青, 杨旭, 唐颖潇, 樊文雁, 蔡子颖, 韩素芹 (2421)

COVID-19管控前后不同污染阶段PM_{2.5}中二次无机离子变化特征 姜楠, 郝雪新, 郝祺, 魏云飞, 张瑜, 吕政卿, 张瑞芹 (2430)

基于在线观测的太原市冬季PM_{2.5}中金属元素污染水平及来源解析 崔阳, 郭利利, 李宏艳, 李永麒, 李滨, 何秋生, 王新明 (2441)

青藏高原东缘黑碳气溶胶变化特征及其来源 王红磊, 刘思晗, 赵天良, 卢文, 夏俊荣, 施双双 (2450)

湛江市夏季大气挥发性有机物污染特征及来源解析 鹿晓蝶, 高博, 陈来国, 刘明, 陆海涛, 王硕, 赵伟, 梁小明, 郭送军 (2461)

2021年夏季新乡市区臭氧超标日污染特征及敏感性 侯墨, 蒋小梅, 赵文鹏, 马琳, 黄皓旻, 范丽雅, 叶代启 (2472)

台风“浪卡”过程对海南岛臭氧污染的影响分析 符传博, 丹利, 佟金鹤, 徐文帅 (2481)

天津市空气污染的健康影响分析 华琨, 罗忠伟, 贾斌, 薛倩倩, 李亚菲, 肖致美, 吴建会, 张裕芬, 冯银厂 (2492)

2002~2020年中国河流环境质量演变及驱动因子分析 杨传玺, 薛岩, 高畅, 万孜恒, 王小宁, 刘永林, 刘琳, 刘长青, 王炜亮 (2502)

1990~2020年黄河流域典型生态区生态环境质量时空格局及驱动力分析 王芳, 李文慧, 林妍敏, 南雄雄, 胡志瑞 (2518)

长江上游小型水库枯水期水质对景观组成、配置和水库特征的响应 钟泳林, 冉娇娇, 文雯, 张名瑶, 吕明权, 吴胜军 (2528)

宁夏入黄排水沟中典型内分泌干扰物的污染特征与风险评价 李凌云, 高礼, 郑兰香, 李富娟, 陶红, 马兰 (2539)

微塑料及金属在黄浦江地表水环境的赋存特征及与金属抗性基因的相关性分析 陆嘉玮, 徐晨晔, 胡纯, 刘树仁, 李方 (2551)

黄河兰州段城市河道表层沉积物重金属空间分布特征及来源解析 李军, 李旭, 李开明, 焦亮, 臧飞, 毛满萱, 潘文惠, 米璇 (2562)

三峡库区支流库湾消落带土壤磷形态赋存特征及其释放风险 张雪, 朱波 (2574)

霍邱县城湖泊沉积物营养盐分布及污染评价 刘海, 赵国红 (2583)

基于贝叶斯网络的太湖叶绿素a影响因素分析 刘杰, 何云川, 邓建明, 汤祥明 (2592)

河北省顺平县地下水化学特征及其成因分析 刘元晴, 周乐, 吕琳, 李伟, 王新峰, 路小慧, 郑一迪, 孟顺祥 (2601)

饮用水处理过程中全氟化合物的分布、转化及去向 钟婷婷, 林涛, 刘威 (2613)

镍铁氧体@活性炭复合材料去除六价铬的表征、性能及机制 张华, 李荣华, 陈金雄, 曾鸿鹄, 黄海艺, Asfandyar Shahab (2622)

纳米核壳Co@NC催化剂活化过氧乙酸降解磺胺甲噁唑 郑婷露, 张龙龙, 陈家斌, 张亚雷, 周雪飞 (2635)

富里酸改性FeMnNi-LDH复合材料对水中砷镉的吸附性能与机制 何雅馨, 柯心怡, 魏世强, 蒋珍茂 (2646)

富含钙/铝的污泥生物炭复合材料对水溶液中磷酸盐的吸附机制 欧阳铸, 曹露, 王炳乾, 丁丽, 黄海明, 祝采莹, 邝晓彤 (2661)

污泥生物炭掺杂改性及其对水中1,2-二氯乙烷吸附行为和机制 周佳伟, 施维林, 许伟, 魏晨军, 吴建生, 孟宪荣 (2671)

森林生态系统对大气氮沉降降低的响应 谢丹妮, 仰东星, 段雷 (2681)

气候变化和人类活动对我国典型草原区植被恢复的影响 张良侠, 岳笑, 周德成, 樊江文, 李愈哲 (2694)

西南地区陆地植被生态系统NPP时空演变及驱动力分析 徐勇, 黄海艳, 戴强玉, 郭振东, 郑志威, 盘钰春 (2704)

不同碳输入对天山雪岭云杉林土壤化学计量特征的影响 马鑫钰, 贡璐, 朱海强, 张甜, 殷珂洁, 陆星宇 (2715)

氮磷添加对荒漠草原土壤养分含量及生态化学计量特征的影响 刘姝萱, 安慧, 张馨文, 邢彬彬, 文志林, 王波 (2724)

互花米草入侵对杭州湾滨海湿地土壤碳氮磷生态化学计量特征的影响 李文琦, 项琦, 解雪峰, 吴涛, 蒋国俊, 张建珍, 濮励杰, 徐飞 (2735)

黄土旱塬24 a不同秸秆还田土壤碳、氮、磷和胞外酶计量特征 姚志霞, 周怀平, 解文艳, 杨振兴, 陈浩宁, 文永莉, 程曼 (2746)

黄土高原子午岭植被自然恢复下的固碳特征 许小明, 张晓萍, 王浩嘉, 贺洁, 王妙倩, 易海杰, 薛帆, 邹亚东, 田起隆, 何亮 (2756)

短期氮添加对黄土高原人工刺槐林土壤有机碳组分的影响 简俊楠, 刘伟超, 朱玉帆, 李佳欣, 温宇豪, 刘付和, 任成杰, 韩新辉 (2767)

福建省水田土壤有机碳积累对未来温度升高的响应 车燕, 邱龙霞, 吴凌云, 龙军, 毋亭, 李晶, 邢世和, 张黎明 (2775)

中国镉超富集植物的物种、生境特征和筛选建议 赵晓峰, 雷梅, 陈同斌 (2786)

基于地理探测器的土壤重金属空间分异及其影响因素分析研究进展 龚仓, 王顺祥, 陆海川, 陈勇, 刘玖芬 (2799)

河北省土壤化学元素的背景值与基准值 张丽婷, 成杭新, 谢伟明, 齐全强, 谢晓阳, 于文龙, 王俊达 (2817)

非粮化利用下耕地土壤重金属分布特征、生态风险和来源解析 邱乐丰, 祝锦霞, 潘艺, 党云晓, 吴绍华 (2829)

基于乡镇尺度的地质高背景区耕地土壤重金属来源分析与风险评价 余飞, 王佳彬, 王锐, 王宇, 宁墨奂, 张云逸, 苏黎明, 董金秀 (2838)

长株潭地区土壤Cd和Pb固液分配特征与环境风险 李钰滢, 彭驰, 刘乐乐, 张严, 何亚磊, 郭朝晖, 肖细元 (2849)

贵州铅锌矿区土壤和作物重金属生态风险与迁移特征 马宏宏, 张利, 郭飞, 杨峥, 王惠艳, 彭敏, 张富贵 (2856)

贵州省旱地土壤Hg污染状况与玉米安全生产评估 马丽钧, 周浪, 宋波, 王佛鹏, 张云霞, 吴勇 (2868)

山西野生连翘生长地土壤PAHs污染特征及风险评价 郭佳佳, 王琦, 康敏捷, 焦海华, 茹文明, 白志辉 (2879)

P对小麦Cd和As吸收与转运的影响 王云, 赵鹏, 李广鑫, 胡彩霞, 王俊, 刘红恩, 高巍, 秦世玉, 睢福庆, 李畅 (2889)

施硅对水稻铁膜砷固定和体内砷转运的影响 李林峰, 文伟发, 徐梓盛, 陈勇, 李奇, 李义纯 (2899)

广东海丰湿地生态恢复进程中不同生境的土壤微生物特征分析 马姣娇, 高常军, 易小青, 吴琰, 李佳鸿, 曾向武, 蔡坚 (2908)

五台山不同退化程度亚高山草甸土壤微生物群落分类与功能多样性特征 罗正明, 刘晋仙, 胡砚秋, 赫磊, 周妍英, 郑庆荣, 柴宝峰 (2918)

天然高寒草地转变为混播人工草地对土壤微生物群落特征的影响 于皓, 刘悦, 邓晔, 芦光新, 颜璋璘, 王英成 (2928)

紫云英还田与化肥减量配施对稻田土壤细菌群落组成和功能的影响 张济世, 刘春增, 郑春风, 张琳, 张香凝, 吕玉虎, 曹卫东, 张玉亭 (2936)

长期生草栽培对山核桃人工林土壤真菌群落和酶活性的影响 胡颖榭, 梁辰飞, 金锦, 王潇璇, 叶子豪, 吴家森 (2945)

高密度聚乙烯微塑料胁迫对棉花生长、枯萎病发生和根际细菌群落的影响 张浩, 孙洁, 杨慧颖, 董联政, 滑紫微, 韩辉, 陈兆进 (2955)

菌藻复合体系氮代谢性能及菌群特征 赵志瑞, 吴海森, 马超, 李书缘, 李晴, 袁凯倪, 孟祥源, 刘硕, 方晓峰 (2965)

中国碳排放及影响因素的市域尺度分析 吴健生, 晋雪茹, 王晗, 冯喆, 张丹妮, 李雪尘 (2974)

碳交易政策如何影响工业碳生产率:来自中国省级数据的准自然实验 房琪, 李绍萍 (2983)

垃圾分类对碳减排的影响分析:以青岛市为例 陈纪宏, 卞荣星, 张昕雪, 高晨琦, 孙英杰, 李卫华, 张国栋, 占美丽 (2995)

1950~2019年中国季节平均最高气温时空演变特征及其大气环流影响定量分析 苏越, 路春燕, 黄雨菲, 苏艳琳, 王自立, 雷依凡 (3003)

《环境科学》征订启事(2480) 《环境科学》征稿简则(2538) 信息(2766, 2798, 2927)

基于在线观测的太原市冬季 $PM_{2.5}$ 中金属元素污染水平及来源解析

崔阳¹, 郭利利¹, 李宏艳¹, 李永麒², 李滨², 何秋生^{1*}, 王新明³

(1. 太原科技大学环境科学与工程学院, 太原 030024; 2. 山西省太原生态环境监测中心, 太原 030002; 3. 中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室, 广州 510630)

摘要: 为更好地识别太原市 $PM_{2.5}$ 的来源, 于 2022 年 1 月采用在线多金属监测仪对太原市区 $PM_{2.5}$ 中 13 种金属元素 (K、Ca、Ba、Cr、Mn、Fe、Cu、Ni、Zn、As、Se、Pb 和 Sr) 小时浓度进行了监测, 分析了其污染特征, 采用正定矩阵因子分解 (PMF) 模型解析了其来源。结果表明, 13 种金属元素浓度之和均值为 $(3\,901.6 \pm 2\,611.2) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 在 $PM_{2.5}$ 中平均占比为 $(7.1 \pm 7.7) \%$ 。Fe、Ca 和 K 是 3 种主要的金属元素, 浓度平均值分别为 $(1\,319.5 \pm 1\,003.5)$ 、 $(1\,181.0 \pm 1\,241.6)$ 和 $(883.3 \pm 357.3) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 。 $\rho[\text{Cr}(\text{VI})]$ ($4.6 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) 和 $\rho(\text{As})$ ($11.2 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) 平均值高于国家环境空气质量 (GB 3095-2012) 和世界卫生组织的标准值。PMF 源解析结果显示: 扬尘、机动车排放、不锈钢制造、生物质燃烧与垃圾焚烧、散煤燃烧和工业燃煤是 $PM_{2.5}$ 中金属元素的主要来源, 分别贡献了 45.5%、1.4%、15.8%、23.7%、5.5% 和 8.1%。在 $PM_{2.5}$ 污染事件中, 相比于污染发展和消散阶段, 污染维持阶段工业燃煤、散煤燃烧、生物质燃烧与垃圾焚烧对金属元素的贡献率上升明显, 分别贡献了 11.8%、7.1% 和 28.1%。研究结果可为其他区域开展精细化 $PM_{2.5}$ 来源解析工作提供一定的科学参考。

关键词: $PM_{2.5}$; 金属元素; 在线监测; 源解析; 太原

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2023)05-2441-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202205307

On-line Measurement of Trace Elements in $PM_{2.5}$ in Winter in Urban Taiyuan, China: Levels and Source Apportionment

CUI Yang¹, GUO Li-li¹, LI Hong-yan¹, LI Yong-qi², LI Bin², HE Qiu-sheng^{1*}, WANG Xin-ming³

(1. School of Environmental Science and Engineering, Taiyuan University of Science and Technology, Taiyuan 030024, China; 2. Taiyuan Ecological Environment Monitoring Center, Shanxi Province, Taiyuan 030002, China; 3. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510630, China)

Abstract: In order to better identify the sources of $PM_{2.5}$ in Taiyuan, hourly concentrations of 13 trace elements (K, Ca, Ba, Cr, Mn, Fe, Cu, Ni, Zn, As, Se, Pb, and Sr) in $PM_{2.5}$ were monitored at an urban site in Taiyuan from January 1 to 29, 2022. The pollution characteristics of trace elements were analyzed and sources were apportioned using positive matrix factorization (PMF). The results showed that the average concentration of 13 total trace elements was $(3\,901.6 \pm 2\,611.2) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, which accounted for $(7.1 \pm 7.7) \%$ of $PM_{2.5}$. The three dominant elements were Fe [$(1\,319.5 \pm 1\,003.5) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$], Ca [$(1\,181.0 \pm 1\,241.6) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$], and K [$(883.3 \pm 357.3) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$]. The average concentrations of Cr(VI) ($4.6 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) and As ($11.2 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) exceeded the guideline values of the Chinese National Ambient Air Quality Standard (GB 3095-2012) and the World Health Organization. Fugitive dust, vehicle emissions, industry, stainless-steel production, biomass burning and waste incineration, residential coal combustion, and industrial coal combustion were identified by the PMF model, which accounted for 45.5%, 1.4%, 15.8%, 23.7%, 5.5%, and 8.1%, respectively, of the total elements. Compared with those during the stages of pollution development and dissipation, the contributions of industrial coal combustion, residential coal combustion, and biomass burning and waste incineration to the total elements during the pollution maintenance stage of the $PM_{2.5}$ pollution episode increased significantly, contributing 11.8%, 7.1%, and 28.1%, respectively, of the total elements. These results could provide scientific references for the refined source apportionment of $PM_{2.5}$ in other areas.

Key words: $PM_{2.5}$; trace elements; online measurement; source apportionment; Taiyuan

自 2013 年以来,我国政府实施了一系列的空气污染防治措施,如《大气污染防治行动计划》和《打赢蓝天保卫战行动计划》等,空气质量取得了显著的改善,但细颗粒物 ($PM_{2.5}$, 空气动力学直径小于 $2.5 \mu\text{m}$ 的颗粒物) 依然是我国北方城市首要的大气污染物。由于其对人体健康、全球气候和区域环境的重要影响,受到了广泛的关注^[1~4]。在 $PM_{2.5}$ 的组分中,金属元素虽然占比一般不超过 10%,但由于其化学稳定性和独特的来源指示作用,在颗粒物来源解析中被普遍用作污染源的指示物^[5~8],如 As 和

Se 可以作为燃煤的指示物^[5,6],Ca 用作扬尘的指示物^[5~8],Cr 通常用来指示工业源,如电镀行业等^[8]。因此,深入开展 $PM_{2.5}$ 中金属元素的相关研究对于进一步厘清 $PM_{2.5}$ 的来源具有重要意义。

收稿日期: 2022-05-28; 修订日期: 2022-07-23

基金项目: 国家自然科学基金项目 (42077201); 太原科技大学来晋工作优秀博士奖励资金项目 (20212063); 山西省基础研究计划项目 (202103021223300); 山西省应用基础研究计划项目 (201901D111250)

作者简介: 崔阳 (1989 ~), 男, 博士, 讲师, 主要研究方向为大气颗粒物来源解析, E-mail: cuiyang@tyust.edu.cn

* 通信作者, E-mail: heqs@tyust.edu.cn

以往传统的 $PM_{2.5}$ 中金属元素研究方法通常需在长时间膜采样(约 24 h)后,在实验室用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)、电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP-OES)等设备进行分析^[9~12]. 传统方法存在的不足是一方面大量离线采样和实验室分析工作使得数据不能够及时获得,另一方面较低时间分辨率的金属元素数据不利于与气象因素或短期污染源排放变化结合分析,进而不利于掌握其大气来源变化. 随着在线设备的发展,使得获取高时间分辨率的金属元素浓度水平成为可能,这使得在相同时间内获得更多源的变化信息,这对于通过受体模型[如正定矩阵因子分解(positive matrix factorization, PMF)模型]识别一些只有短时峰值的来源识别非常重要,如交通源和工业烟羽等^[13~17]. 目前国内外一些学者已经采用在线重金属监测仪(如 Xact-625 型环境空气多金属在线监测仪)开展了相关研究,这有助于更好地认识和厘清 $PM_{2.5}$ 的来源和贡献^[18~26]. 然而,这样的研究仍非常有限,而且国内相关研究主要集中于北京、上海、成都和南京等城市,在其他区域的研究相对较少^[18~26].

太原是山西省的省会,是我国典型的煤炭重工业城市,地处山西中部,长期以来由于三面环山盆地地形及焦化、钢铁为主的工业结构,空气质量污染较为严重. 近些年,太原市政府实施了一些污染控制措施,空气质量逐年改善. 2019、2020 和 2021 年 $\rho(PM_{2.5})$ 年均值分别为 56、54 和 44 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,仍高于《国家空气质量标准》(GB3095-2012)年均二级标准限值(35 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). 值得注意的是在秋冬季仍然存在着高浓度 $PM_{2.5}$ 污染事件,短期小时 $\rho(PM_{2.5})$ 甚至超过 200 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ^[27]. 为持续改善太原市 $PM_{2.5}$ 污染,非常有必要开展高时间分辨率 $PM_{2.5}$ 中金属元素的污染特征研究,以获得更加精细化的源解析结果. 鉴于此,本研究采用在线多金属监测仪(Xact-625)对太原市 2022 年 1 月期间 $PM_{2.5}$ 中 13 种金属元素小时浓度水平进行监测,分析了其污染特征,使用 PMF 受体模型解析了金属元素的来源,最后探讨了污染事件中金属元素来源的动态变化. 本研究结果可为太原下一步 $PM_{2.5}$ 的精细化控制提供数据支撑,也可为其他区域开展相关研究提供参考.

1 材料与方法

1.1 采样地点

本研究采样点选择在太原市环境监测中心站楼顶(37.87°N, 112.54°E, 图 1),距地面约 15 m,属于商业、交通和居民混合区,临近街道,附近人流密集,车流量较大,周围无高大建筑物,能够较好地代

表太原市典型的城市环境. 此外,山西太钢不锈钢股份有限公司距离采样站点北边约 4 km,大唐山西发电有限公司太原第二热电厂距离采样站点北边约 13 km,清徐焦化园区位于采样点西南方向约 39 km.



图 1 采样点位置示意

Fig. 1 Location of sampling site

1.2 观测设备

本研究采用美国 CES 公司生产的 Xact 625 大气金属监测仪(Cooper Environmental Services, USA)来监测小时分辨率的 $PM_{2.5}$ 中多种金属元素浓度. 该设备通过卷轮式滤带采集样品,并通过 X 射线荧光光谱(X-ray fluorescence, XRF)技术对沉积在纸带滤膜上的颗粒物样品进行无损分析,该设备可以同时测量多种金属元素. 采样时,空气样品以 16.7 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ 的流量通过粒径切割头进入仪器然后沉积在 Teflon 滤纸带上,沉积在滤纸带上样品自动前进进入 XRF 系统中进行分析,然后同时采集下一个样品. 通过非破坏能量色散 XRF 来测量沉积在滤纸带上颗粒物中金属元素质量,除以采样体积得到相应金属元素的质量浓度.

在进行观测前,对设备的流量、温度、压力和气密性等进行校准和检查. 对于不同金属元素的质量采用标准质量膜片进行校准,要求金属元素的测量值与标准质量膜片的质量差值应小于 5%. 设备每天 00:00~00:15 会自动进行能量校准和升级检测,在 00:15~00:30 期间,采用 Cr、Pb 和 Cd 进行 3 个不同能级的校准,在每次分析中, Pd 用做内标来

跟踪 Xact 设备可能的漂移和不稳定, Xact 设备的 Cr、Cd、Pb 和 Pd 在采样时段的变化因子, 其平均值在 $\pm 10\%$ 范围之内. 根据 Cui 等的研究^[5], 最终本研究选择 13 种金属元素 (K、Ca、Ba、Cr、Mn、Fe、Cu、Ni、Zn、As、Se、Pb 和 Sr) 用于污染特征分析和来源解析.

此外, 本研究所使用小时分辨率的 PM_{2.5} 浓度和风向、风速等观测数据均来自于采样站点所在的太原市桃园国控站点. 3h 分辨率的大气边界层高度数据来自于美国国家海洋和大气管理局网站 (<http://ready.arl.noaa.gov/READYamet.php>).

1.3 来源解析

正定矩阵因子分解 (PMF) 模型广泛应用于颗粒物的来源解析工作中^[28-30], 该模型是一种多元因子分析数学方法, 将一个物种化样本数据的矩阵 X 分解为两个矩阵因子: 因子贡献 (G) 和因子谱 (F). 该方法无需源谱输入, 同时保证分解的因子贡献 (G) 和因子谱 (F) 为非负值. 矩阵形式可表示如式 (1):

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad (1)$$

式中, x_{ij} 为 j 物种在第 i 个样品中的浓度, p 为因子个数, g_{ik} 为第 k 个因子在第 i 个样品中的贡献值, f_{kj} 为 j 物种对因子 k 的浓度, e_{ij} 为此模型中的 j 物种在第 i 个样品中的误差. PMF 模型利用加权最小二乘法, 以此减小目标函数 Q 的值并使其最小化 [式 (2)]. 该函数可以用来观察每个物种的分布情况, 并估计解析结果的相对有效性.

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left[\frac{x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj}}{u_{ij}} \right]^2 \quad (2)$$

式中, u_{ij} 为第 j 个物种在第 i 个样品中的不确定度, n 为样品个数, m 为物种的个数.

在本研究中, 具体金属元素的观测误差、不确定度计算等细节参见以前的研究^[5]. PMF 分析结果的不确定度通过 DISP (displacement) 和 BS (bootstrap) 两种方法进行评估^[31,32].

1.4 双变量的极坐标图

不同来源的风向、风速极坐标图通过使用 R 语言的 OpenAir 包绘制, 可以用来判断其本地尺度上不同来向的贡献率^[33].

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5} 中金属元素污染水平

图 2 显示了研究期间 PM_{2.5} 和 13 种金属元素的浓度时间序列, ρ (PM_{2.5}) 范围为 4.0 ~ 272.0

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 均值为 $(86.9 \pm 54.4) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 超过国家空气质量标准日均限值二级标准 ($75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, GB 3095-2012), 说明太原冬季 PM_{2.5} 污染依然较为严重. PM_{2.5} 中 13 种金属元素浓度之和范围为 $724.2 \sim 14955.6 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 均值为 $(3901.6 \pm 2611.2) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$. 金属元素浓度大小顺序为: Fe [$(1319.5 \pm 1003.5) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > Ca [$(1181.0 \pm 1241.6) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > K [$(883.3 \pm 357.3) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > Zn [$(225.8 \pm 165.2) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > Mn [$(75.4 \pm 63.7) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > Ba [$(64.0 \pm 47.5) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > Pb [$(61.4 \pm 42.3) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > Cr [$(32.4 \pm 34.5) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > Cu [$(24.5 \pm 18.2) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > As [$(11.2 \pm 9.4) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > Ni [$(9.8 \pm 11.4) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > Se [$(6.8 \pm 4.5) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] > Sr [$(6.6 \pm 5.4) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$]. Fe、Ca 和 K 是 13 种金属元素中浓度较高的 3 种元素, 在 13 种金属元素质量之和中的占比分别为 33.8%、30.3% 和 22.6%. 13 种金属元素质量之和在 PM_{2.5} 中的平均占比为 $(7.1 \pm 7.7)\%$, 高于北京 [$(4.7 \pm 3.3)\%$]^[34]、上海 (1.8%)^[7] 和河北一些城市如保定、石家庄和唐山 (2%~7%)^[35].

与相关标准相比, 本研究 ρ (Pb) [$(61.4 \pm 42.3) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] 低于国家空气质量标准 (NAAQS, GB 3095-2012) 和世界卫生组织 (WHO) 的标准值 (均为 $500 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$). ρ (As) [$(11.2 \pm 9.4) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$] 高于 NAAQS (GB 3095-2012, $6 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$) 和 WHO 的标准值 ($6.6 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$). 大气中 Cr 通常有六价铬 [Cr(VI)] 和三价铬 [Cr(III)] 两种形态, Cr(VI) 对人体健康具有致癌性, 而 Cr(III) 则不具有致癌性. 根据以往研究结果, 大气中六价铬 Cr(VI) 通常用总 Cr 浓度的 1/7 进行估算^[8,36]. 经估算, 本研究 PM_{2.5} 中 ρ [Cr(VI)] 为 $(4.6 \pm 4.9) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 高于 NAAQS (GB 3095-2012, $0.025 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$) 和 WHO 的标准值 ($0.25 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$).

为进一步说明太原市冬季 PM_{2.5} 中金属元素的污染水平, 选取了国内一些典型城市冬季的研究结果进行对比, 如表 1 所示. 与刘喆等^[37] 于 2017 ~ 2018 年太原城区采暖期大气 PM_{2.5} 中金属元素的研究相比, 本研究中 K、Ca、Cr、Mn、Fe、Ni、Cu、Zn、As 和 Pb 浓度分别下降 58.8%、30.7%、21.2%、31.8%、31.0%、45.9%、73.8%、43.4%、38.5% 和 79.2%, 说明近些年太原市政府采取的一系列大气污染控制措施具有一定的成效. 与国内其他城市相比, 本研究的金属元素浓度水平高于沈阳^[38] 和上海^[39] 等地. 除了 Ca、Cr 和 Ni 外, 本研究的其余金属元素浓度低于河北望都、廊坊等地^[35]. 与北京 2016 年冬季的研究相比, 本研究的 Ca、Cr、Mn、Fe、Ni

和 Ba 浓度水平高于北京,而其余元素浓度则低于北京^[40].与河南郑州、新乡相比,本研究 Cu、As 和

Pb 浓度水平低于新乡,Cu 和 Pb 浓度水平低于郑州,其余元素浓度高于郑州和新乡两地^[12].

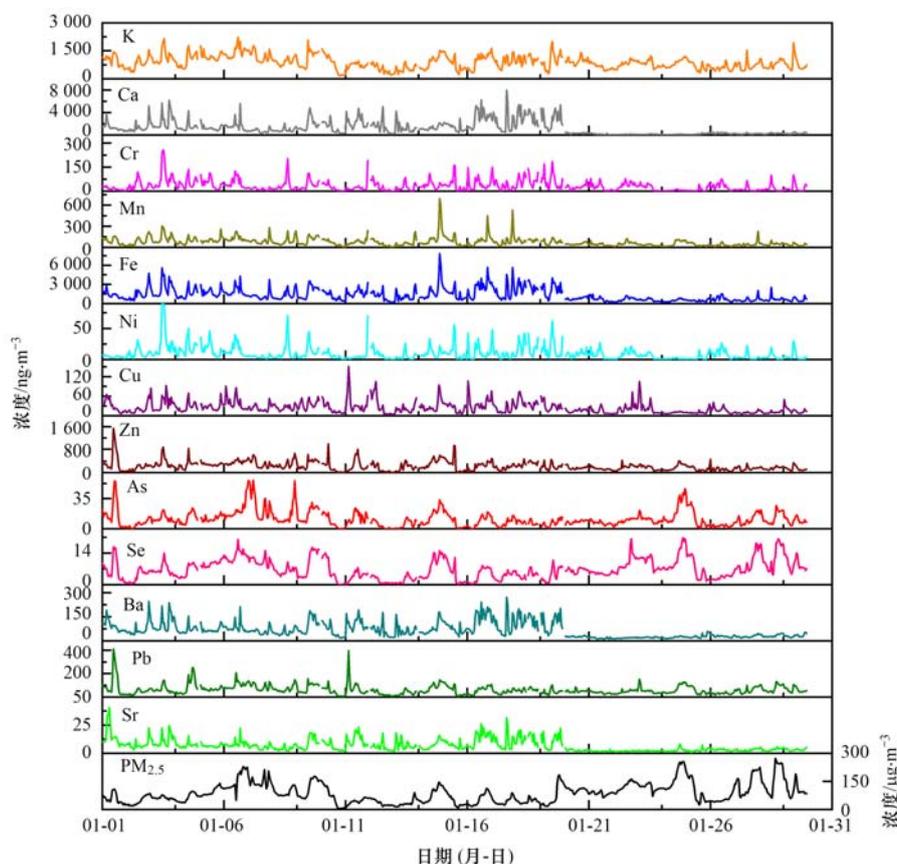


图2 研究期间 $PM_{2.5}$ 和金属元素浓度的时间变化序列

Fig. 2 Time series of the concentrations of $PM_{2.5}$ and trace elements during the study period

表1 太原市与国内典型城市 $PM_{2.5}$ 中金属元素水平的比较¹⁾/ $ng \cdot m^{-3}$

Table 1 Comparison of individual element mass concentrations in $PM_{2.5}$ between Taiyuan and domestic typical cities/ $ng \cdot m^{-3}$

城市	采样期(年·月)	K	Ca	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	As	Se	Ba	Pb	Sr	文献
太原	2022-01	883.3	1 181	32.4	75.4	1 319.5	9.8	24.5	225.8	11.2	6.8	64	61.4	6.6	本研究
太原	2018-01	2 143.9	1 703	41.1	110.6	1 911.7	18.1	93.6	398.6	18.2	—	—	295.6	—	[37]
北京	2016 年冬	1 490	384	10	58	769	2	27	286	22	8	35	107	—	[40]
保定望都	2018 年冬	3 696	597	8.5	120	1 145	3.1	40.2	979	55.7	30.2	74.2	279	—	[35]
廊坊	2018 年冬	1 307	467	7.2	50.6	565	2.2	26.7	184	14.3	4.8	40.4	67.5	—	[35]
沈阳	2019-01	—	—	6.6	36.1	—	2.1	9.4	206.4	11.2	—	—	58.4	—	[38]
上海	2018 年冬	380	137	4	65	450	4	12	114	6	—	24	25	—	[39]
郑州	2016 年冬	120.9	186.8	8.0	41.3	301.9	5.7	30.5	97.5	10.9	—	—	63.4	—	[12]
新乡	2016 年冬	117.3	224.0	8.7	46.0	217.1	7.7	46.1	135.1	28.7	—	—	237.2	—	[12]

1)“—”表示文章中没有相关数据

2.2 $PM_{2.5}$ 中金属元素来源解析

为得到合适的源解析结果,本研究采用 PMF 模型进行 4~8 个因子方案的尝试.从最终分析结果来看,6 个因子的方案最为合理,解析出污染源分别为工业燃煤、扬尘、生物质燃烧与垃圾焚烧、不锈钢制造、机动车排放和散煤燃烧.源解析结果的不确定度通过 DISP 和 BS 两种方法的评估,在 DISP 运行结果中没有出现因子交换,同时超过 93% 的 BS 运行结果可以映射到 Base 运算上,说明源解析的结

果是稳健的.6 个因子的源谱和平均贡献率分别见图 3 和图 4.6 个因子在风向、风速上分布的极坐标见图 5.

如图 3 所示,在因子 1 中,Zn、As、Mn 和 Pb 有着较高的贡献率.有研究报道,在山西省 Zn、As 和 Pb 排放主要来自于工业燃煤^[41],因此这个因子可被认定为工业燃煤.通过分析这个因子在风向、风速上的分布发现(图 5),较高浓度因子贡献来自于较高西南风速($>2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$)的情况,说明工业燃煤

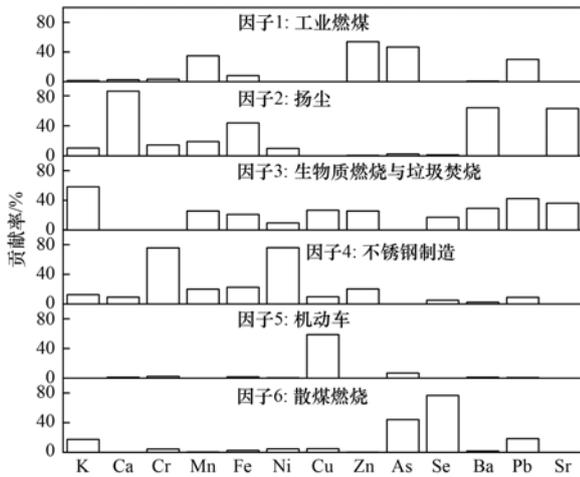


图3 基于 PMF 得到 PM_{2.5} 中金属源的 6 个源的源谱

Fig. 3 Source profiles of six sources resolved by PMF for the elements in PM_{2.5}

贡献更多来自区域上的传输,如西南方向上工业燃煤的贡献,这与太原南部工业企业的分布相一致.此外,在较低风速上也存在一定贡献,这与太原市市区仍存在山西太钢不锈钢股份有限公司和大唐山西发电有限公司太原第二热电厂等燃煤工业企业有关.这个因子贡献了 13 种金属元素质量之和的 8.1%.

在因子 2 中,Ca、Fe、Ba 和 Sr 有着较高的贡献率,PMF 模型解析出尘的源谱与以往研究相似^[5-7],从而这个因子被认定为扬尘.这个因子是 PM_{2.5} 中金属元素的最大贡献者,贡献了 45.5%.

因子 3 可以认定为生物质燃烧与垃圾焚烧,其中 K 的贡献率相对较高,贡献了 58.1%.在以往研究中 K 可以作为生物质燃烧的指示物^[5,6].除此之外,Pb 在这个因子中也有着一定的贡献率(42.3%),以往研究中 Pb 也来自于生物质燃烧^[13].

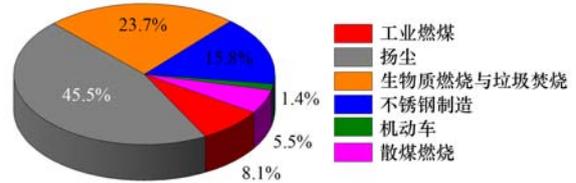


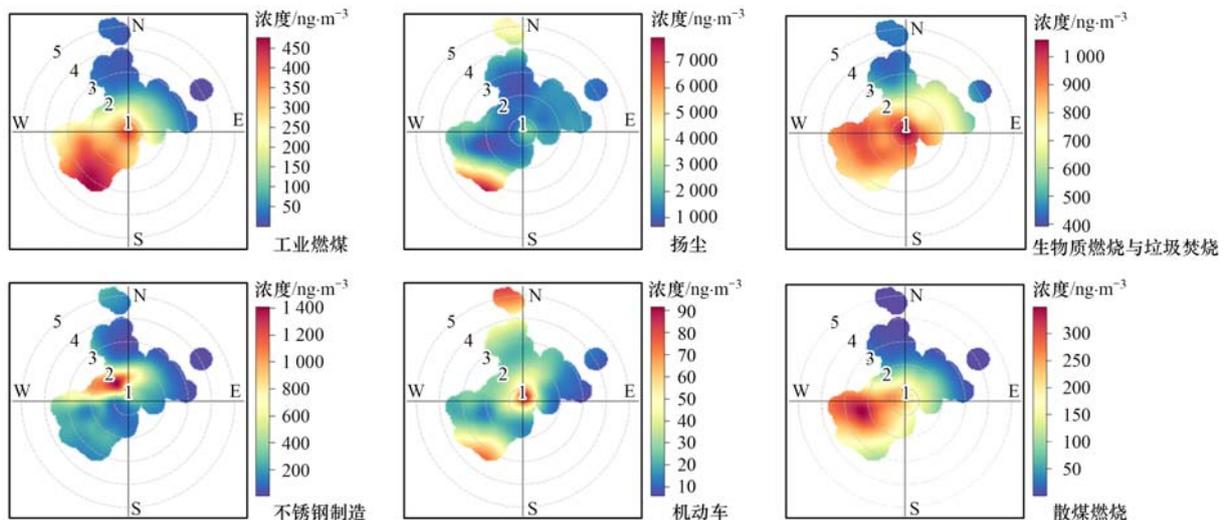
图4 太原 PM_{2.5} 中金属元素的 6 个源的平均贡献率

Fig. 4 Average contributions from the six factors to the total mass of the trace elements in PM_{2.5} in Taiyuan

Zn、Cu 和 Mn 也存在一定贡献率,以往研究显示这些元素也来自于垃圾焚烧^[42].生物质燃烧与垃圾焚烧贡献了 23.7%.从该因子的风向、风速分布上来看(图 5),存在着本地较低风速下的贡献和较高风速下区域传输的影响.

因子 4 中 Cr 和 Ni 的贡献率较高.这个因子在 4 个因子开始运行一直稳定地存在,进一步分析该因子在风向、风速上的分布,较高浓度的因子贡献出现在观测点位的北和西北方向(图 5),这与山西太钢不锈钢股份有限公司的位置相一致,该企业距离采样站点北边约 4 km.根据报道,Cr 和 Ni 在不锈钢制造中广泛使用^[43],Fe、Mn 和 Zn 在这个因子上也存在一定的贡献率,进而该因子被认定为不锈钢制造,贡献了 PM_{2.5} 中金属元素的 15.8%.

在因子 5 中,Cu 的贡献率最高,在 6 个因子中贡献率为 58.8%.在以往京津冀的研究中,超过 50%的 Cu 排放来自于刹车片的磨损^[44].此外,Ba 在这个因子上有一定的贡献率,而一些研究中把 Ba 归因于刹车片磨损^[5,7].进而这个因子被认定为机动车排放,贡献了金属元素质量的 1.4%.该因子的风向、风速分布显示更多的机动车贡献主要是由于本地贡献所致(图 5).



圆环上的数值表示风速,单位为 m·s⁻¹

图5 研究期间太原 6 个污染源浓度的风向、风速极坐标

Fig. 5 Polar plots of six pollution source concentrations during the study period in Taiyuan

在因子6中As和Se有着较高的贡献率,分别贡献了44.0%和76.5%。在以往的研究中,As和Se通常用作燃煤的指示物^[5,7]。在这个因子中K和Pb也有着相对较高的贡献率,根据以往的研究,这个源谱与民用散煤比较接近^[45,46],进而该因子被识别为散煤燃烧,该因子贡献了8.1%。较高的散煤燃烧来自于观测点位的西南方向,且主要来自于风速大于 $2\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时,说明太原南部区域民用散煤燃烧仍比较严重,需要引起进一步关注。

2.3 污染事件中来源的动态变化

鉴于本研究采用高时间分辨率的观测数据,为详细了解 $\text{PM}_{2.5}$ 污染事件中不同金属元素来源贡献的动态变化,选择一次 $\text{PM}_{2.5}$ 污染事件(2022年1月2日00:00~2022年1月10日23:00)进行了分析(图6和图7)。在这次污染事件中, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 范围为

$4.0 \sim 228.0\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,均值为 $(93.0 \pm 50.2)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。由图6可见,随着污染程度的不同,6个污染源有着不同的贡献,根据 $\text{PM}_{2.5}$ 污染演化进一步将该污染事件分成3个不同阶段(图6):1月2日00:00~1月4日23:00为污染发展阶段 $[\rho(\text{PM}_{2.5}) < 75\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$,期间 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 均值为 $(55.7 \pm 22.1)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。1月5日00:00~1月9日18:00为污染维持阶段 $[\rho(\text{PM}_{2.5}) > 75\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$,该阶段 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 处于较高水平,均值为 $(120.0 \pm 44.3)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。1月9日19:00~1月10日23:00为污染消散阶段, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 从1月9日19:00的 $173\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 降至 $10\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以下,期间 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 均值为 $(77.0 \pm 59.1)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。通过分析3个不同污染阶段6个污染源的贡献(图6),可以发现在污染维持阶段工业燃煤、

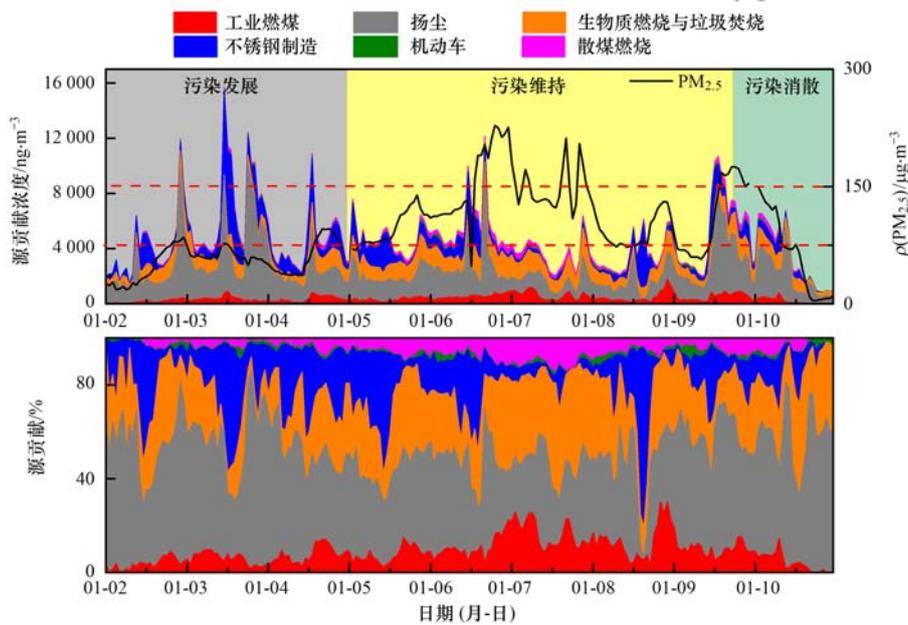


图6 污染事件中 $\text{PM}_{2.5}$ 金属元素各个源的小时变化贡献

Fig. 6 Hourly variations in contributions of different sources to the trace elements in $\text{PM}_{2.5}$ during pollution episodes

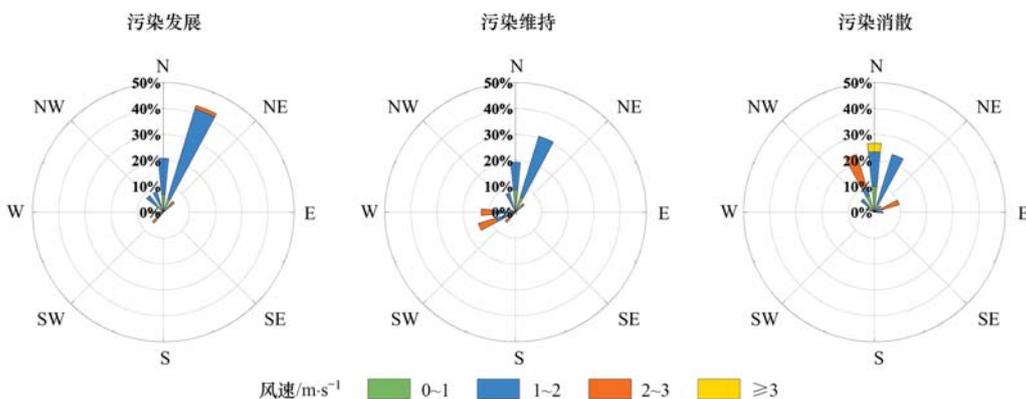


图7 污染事件3个不同污染阶段的风玫瑰图

Fig. 7 Wind roses during three different phases of the pollution episode

生物质燃烧与垃圾焚烧和散煤燃烧的贡献率明显高于污染发展阶段; 而相比于污染维持阶段, 在污染消散阶段随着 PM_{2.5} 浓度逐渐降低, 扬尘和机动车的贡献逐渐增加, 而其余源贡献则呈现下降趋势. 这与 3 个污染阶段的风向、风速和大气边界层的影响有很大关系, 在污染发展、维持和消散阶段平均风速分别为 (1.3 ± 0.4) 、 (1.4 ± 0.5) 和 (1.5 ± 0.8) $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$, 西南风频率在污染维持阶段明显高于其余两个阶段, 西北风频率在污染消散阶段明显高于其余阶段(图 7); 大气边界层高度的平均值在污染发展、维持和消散阶段分别为 (146.2 ± 167.7) 、 (175.3 ± 204.6) 和 (436.1 ± 327.0) m. 较低的风速和边界层高度、较高的南风频率是污染事件发展和维持阶段的主要气象影响因素. 在选择污染事件 3 个污染阶段中, 扬尘是污染发展、维持和消散阶段 PM_{2.5} 中金属元素的主要来源, 分别贡献了 49.3%、37.1% 和 51.7%; 相比于污染发展和消散阶段, 污染维持阶段生物质燃烧与垃圾焚烧、工业燃煤和散煤燃烧的贡献上升明显, 分别贡献了 28.1%、11.8% 和 7.1%, 说明在 PM_{2.5} 高污染阶段需要重点控制这些污染源. 相比于污染发展阶段, 污染维持阶段扬尘和不锈钢制造对金属元素的贡献虽有所下降, 但仍有着较高的贡献, 说明这些源控制也不容忽视.

3 结论

(1) 研究期间太原市 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 均值为 (86.9 ± 54.4) $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 超过国家 2 级标准 $(75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3})$. $\rho[\text{Cr}(\text{VI})]$ 和 $\rho(\text{As})$ 的浓度高于 NAAQS(GB 3095-2012) 和 WHO 的标准值. 相比于以往 2017~2018 年太原城区采暖期大气 PM_{2.5} 中金属元素的研究, 本研究金属元素浓度出现不同程度的下降, 说明近些年太原市政府采取的一系列大气污染控制措施具有一定成效.

(2) 基于小时分辨率金属元素数据, 采用 PMF 模型进行来源解析, 结果表明扬尘、机动车排放、不锈钢制造、生物质燃烧与垃圾焚烧、散煤燃烧和工业燃煤是 PM_{2.5} 中金属元素的主要来源, 分别贡献了 45.5%、1.4%、15.8%、23.7%、5.5% 和 8.1%.

(3) 通过对 PM_{2.5} 污染事件中不同金属元素来源的贡献进行分析, 发现相比于污染发展和消散阶段, 污染维持阶段生物质与垃圾焚烧、工业散煤和散煤燃烧的贡献明显上升, 分别贡献了 28.1%、11.8% 和 7.1%.

参考文献:

[1] 董世豪, 谢扬, 皇甫延琦, 等. 扬州市 PM_{2.5} 中重金属来源及

潜在健康风险评估[J]. 环境科学, 2019, 40(2): 540-547.

Dong S H, Xie Y, Huangfu Y Q, *et al.* Source apportionment and health risk quantification of heavy metals in PM_{2.5} in Yangzhou, China[J]. Environmental Science, 2019, 40(2): 540-547.

[2] 杨毅红, 贾燕, 卞国建, 等. 珠海市郊区大气 PM_{2.5} 中元素特征及重金属健康风险评价[J]. 环境科学, 2019, 40(4): 1553-1561.

Yang Y H, Jia Y, Bian G J, *et al.* Elemental characteristics and health risk assessment of heavy metals in atmospheric PM_{2.5} in a suburb of Zhuhai City[J]. Environmental Science, 2019, 40(4): 1553-1561.

[3] 白雯宇, 徐勃, 郭丽瑶, 等. 淄博市冬季 PM_{2.5} 载带金属元素污染特征、生态风险评价及来源分析[J]. 环境科学, 2022, 43(5): 2336-2342.

Bai W Y, Xu B, Guo L Y, *et al.* Characteristics, ecological risk assessment, and sources of the polluted metallic elements in PM_{2.5} during winter in Zibo City[J]. Environmental Science, 2022, 43(5): 2336-2342.

[4] Harris E, Sinha B, Van Pinxteren D, *et al.* Enhanced role of transition metal ion catalysis during in-cloud oxidation of SO₂ [J]. Science, 2013, 340(6133): 727-730.

[5] Cui Y, Ji D S, Chen H, *et al.* Characteristics and sources of hourly trace elements in airborne fine particles in urban Beijing, China[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2019, 124(21): 11595-11613.

[6] Ji D S, Cui Y, Li L, *et al.* Characterization and source identification of fine particulate matter in urban Beijing during the 2015 Spring Festival [J]. Science of the Total Environment, 2018, 628-629: 430-440.

[7] Chang Y H, Huang K, Xie M J, *et al.* First long-term and near real-time measurement of trace elements in China's urban atmosphere: temporal variability, source apportionment and precipitation effect [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, 18(16): 11793-11812.

[8] Liu J W, Chen Y J, Chao S H, *et al.* Emission control priority of PM_{2.5}-bound heavy metals in different seasons: a comprehensive analysis from health risk perspective [J]. Science of the Total Environment, 2018, 644: 20-30.

[9] 周雪明, 郑乃嘉, 李英红, 等. 2011~2012 年北京大气 PM_{2.5} 中重金属的污染特征与来源分析[J]. 环境科学, 2017, 38(10): 4054-4060.

Zhou X M, Zheng N J, Li Y H, *et al.* Chemical characteristics and sources of heavy metals in fine particles in Beijing in 2011-2012 [J]. Environmental Science, 2017, 38(10): 4054-4060.

[10] 陆平, 赵雪艳, 殷宝辉, 等. 临沂市 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中元素分布特征及来源解析 [J]. 环境科学, 2020, 41(5): 2036-2043.

Lu P, Zhao X Y, Yin B H, *et al.* Distribution characteristics and source apportionment of elements bonded with PM_{2.5} and PM₁₀ in Linyi [J]. Environmental Science, 2020, 41(5): 2036-2043.

[11] 邓林俐, 张凯山, 殷子渊, 等. 基于 PMF 模型的 PM_{2.5} 中金属元素污染及来源的区域特征分析 [J]. 环境科学, 2020, 41(12): 5276-5287.

Deng L L, Zhang K S, Yin Z Y, *et al.* Characterization of metal pollution of regional atmospheric PM_{2.5} and its sources based on the PMF model [J]. Environmental Science, 2020, 41(12): 5276-5287.

[12] 闫广轩, 张朴真, 黄海燕, 等. 郑州-新乡冬季 PM_{2.5} 中元素浓度特征及其源分析 [J]. 环境科学, 2019, 40(5): 2027-2035.

- Yan G X, Zhang P Z, Huang H Y, *et al.* Concentration characteristics and source analysis of PM_{2.5} during wintertime in Zhengzhou-Xinxiang[J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(5): 2027-2035.
- [13] Dall'Osto M, Querol X, Amato F, *et al.* Hourly elemental concentrations in PM_{2.5} aerosols sampled simultaneously at urban background and road site during SAPUSS-diurnal variations and PMF receptor modelling [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(8): 4375-4392.
- [14] Rai P, Furger M, Slowik J G, *et al.* Source apportionment of highly time-resolved elements during a firework episode from a rural freeway site in Switzerland[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, **20**(3): 1657-1674.
- [15] Sofowote U M, Di Federico L M, Healy R M, *et al.* Heavy metals in the near-road environment: Results of semi-continuous monitoring of ambient particulate matter in the greater Toronto and Hamilton area[J]. *Atmospheric Environment: X*, 2019, **1**, doi: 10.1016/j.aeaoa.2019.100005.
- [16] Hasheminassab S, Sowlat M H, Pakbin P, *et al.* High time-resolution and time-integrated measurements of particulate metals and elements in an environmental justice community within the Los Angeles Basin: spatio-temporal trends and source apportionment[J]. *Atmospheric Environment: X*, 2020, **7**, doi: 10.1016/j.aeaoa.2020.100089.
- [17] Jeong C H, Wang J M, Hilker N, *et al.* Temporal and spatial variability of traffic-related PM_{2.5} sources: comparison of exhaust and non-exhaust emissions [J]. *Atmospheric Environment*, 2019, **198**: 55-69.
- [18] 雷建容, 云龙, 苏翠平, 等. 深圳城市大气PM_{2.5}中金属元素的在线测量与来源特征[J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(1): 80-85.
- Lei J R, Yun L, Su C P, *et al.* On-line measurement and source characteristics of metals in PM_{2.5} urban Shenzhen [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(1): 80-85.
- [19] Wang G C, Huang K, Fu Q Y, *et al.* Response of PM_{2.5}-bound elemental species to emission variations and associated health risk assessment during the COVID-19 pandemic in a coastal megacity [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2022, **122**: 115-127.
- [20] Cheng K, Chang Y H, Kuang Y Q, *et al.* Elucidating the responses of highly time-resolved PM_{2.5} related elements to extreme emission reductions [J]. *Environmental Research*, 2022, **206**, doi: 10.1016/j.envres.2021.112624.
- [21] Jin Q, Liu Y M, Feng M, *et al.* High-resolution temporal metallic elements in PM_{2.5} in Chengdu, Southwest China: variations, extreme events, and effects of meteorological parameters[J]. *Air Quality, Atmosphere & Health*, 2021, **14**(12): 1893-1909.
- [22] Zhao S, Tian H Z, Luo L N, *et al.* Temporal variation characteristics and source apportionment of metal elements in PM_{2.5} in urban Beijing during 2018-2019 [J]. *Environmental Pollution*, 2021, **268**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.115856.
- [23] Yu Y Y, He S Y, Wu X L, *et al.* PM_{2.5} elements at an urban site in Yangtze River Delta, China: high time-resolved measurement and the application in source apportionment[J]. *Environmental Pollution*, 2019, **253**: 1089-1099.
- [24] Yang X, Zheng M, Liu Y, *et al.* Exploring sources and health risks of metals in Beijing PM_{2.5}: insights from long-term online measurements[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, **814**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.151954.
- [25] Rai P, Furger M, Slowik J G, *et al.* Characteristics and sources of hourly elements in PM₁₀ and PM_{2.5} during wintertime in Beijing [J]. *Environmental Pollution*, 2021, **278**, doi: 10.1016/j.envpol.2021.116865.
- [26] Li Y Y, Chang M, Ding S S, *et al.* Monitoring and source apportionment of trace elements in PM_{2.5}: implications for local air quality management [J]. *Journal of Environmental Management*, 2017, **196**: 16-25.
- [27] Wang Y, Wen Y P, Cui Y, *et al.* Substantial changes of chemical composition and sources of fine particles during the period of COVID-19 pandemic in Taiyuan, Northern China[J]. *Air Quality, Atmosphere & Health*, 2022, **15**(1): 47-58.
- [28] Gao J, Peng X, Chen G, *et al.* Insights into the chemical characterization and sources of PM_{2.5} in Beijing at a 1-h time resolution[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **542**: 162-171.
- [29] 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.
- [30] Hao Y F, Meng X P, Yu X P, *et al.* Characteristics of trace elements in PM_{2.5} and PM₁₀ of Chifeng, northeast China: insights into spatiotemporal variations and sources [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **213**: 550-561.
- [31] Paatero P, Eberly S, Brown S G, *et al.* Methods for estimating uncertainty in factor analytic solutions [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2014, **7**(3): 781-797.
- [32] Brown S G, Eberly S, Paatero P, *et al.* Methods for estimating uncertainty in PMF solutions: examples with ambient air and water quality data and guidance on reporting PMF results[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **518-519**: 626-635.
- [33] Carslaw D C, Ropkins K. *Openair*—An R package for air quality data analysis[J]. *Environmental Modelling & Software*, 2012, **27-28**: 52-61.
- [34] Cui Y, Ji D S, He J, *et al.* In situ continuous observation of hourly elements in PM_{2.5} in urban Beijing, China: occurrence levels, temporal variation, potential source regions and health risks [J]. *Atmospheric Environment*, 2020, **222**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2019.117164.
- [35] Li X, Yan C Q, Wang C Y, *et al.* PM_{2.5}-bound elements in Hebei Province, China: pollution levels, source apportionment and health risks[J]. *Science of the Total Environment*, 2022, **806**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.150440.
- [36] Li H M, Wu H F, Wang Q G, *et al.* Chemical partitioning of fine particle-bound metals on haze-fog and non-haze-fog days in Nanjing, China and its contribution to human health risks[J]. *Atmospheric Research*, 2017, **183**: 142-150.
- [37] 刘喆, 刘柳, 杨一兵, 等. 太原市城区大气PM_{2.5}中元素污染特征及其来源解析[J]. *光谱学与光谱分析*, 2019, **39**(5): 1593-1598.
- Liu Z, Liu L, Yang Y B, *et al.* Characteristics and sources analysis of element in ambient PM_{2.5} in Taiyuan city [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2019, **39**(5): 1593-1598.
- [38] 任万辉, 李云丹, 苏枫枫, 等. 沈阳市大气PM_{2.5}中重金属污染特征、来源解析及健康风险评估[J]. *环境化学*, 2021, **40**(4): 1029-1037.
- Ren W H, Li Y D, Su C C, *et al.* Pollution characteristics, source apportionment and health risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} in Shenyang[J]. *Environmental Chemistry*, 2021, **40**(4): 1029-1037.
- [39] Li R, Wang Q Q, He X, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} in Shanghai based on hourly organic molecular markers and other source tracers[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020,

- 20(20): 12047-12061.
- [40] Liu Y, Zheng M, Yu M Y, *et al.* High-time-resolution source apportionment of PM_{2.5} in Beijing with multiple models [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, **19**(9): 6595-6609.
- [41] Liu Y Y, Xing J, Wang S X, *et al.* Source-specific speciation profiles of PM_{2.5} for heavy metals and their anthropogenic emissions in China [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **239**: 544-553.
- [42] Yang H N, Chen J, Wen J J, *et al.* Composition and sources of PM_{2.5} around the heating periods of 2013 and 2014 in Beijing: Implications for efficient mitigation measures [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **124**: 378-386.
- [43] Font A, Tremper A H, Priestman M, *et al.* Source attribution and quantification of atmospheric nickel concentrations in an industrial area in the United Kingdom (UK) [J]. *Environmental Pollution*, 2022, **293**, doi: 10.1016/j.envpol.2021.118432.
- [44] Zhu C Y, Tian H Z, Hao Y, *et al.* A high-resolution emission inventory of anthropogenic trace elements in Beijing-Tianjin-Hebei (BTH) region of China [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **191**: 452-462.
- [45] Liu P F, Zhang C L, Xue C Y, *et al.* The contribution of residential coal combustion to atmospheric PM_{2.5} in northern China during winter [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(18): 11503-11520.
- [46] Yan Q, Kong S F, Yan Y Y, *et al.* Emission and spatialized health risks for trace elements from domestic coal burning in China [J]. *Environment International*, 2022, **158**, doi: 10.1016/j.envint.2021.107001.



CONTENTS

Pollution Characteristics and Factors Influencing the Reduction in Ambient PM _{2.5} in Beijing from 2018 to 2020	LIU Bao-xian, LI Qian, SUN Rui-wen, <i>et al.</i>	(2409)
Spatio-temporal Distribution Characteristics of Secondary Aerosol in Beijing-Tianjin-Hebei Urban Agglomeration in Winter	YAO Qing, YANG Xu, TANG Ying-xiao, <i>et al.</i>	(2421)
Changes in Secondary Inorganic Ions in PM _{2.5} at Different Pollution Stages Before and After COVID-19 Control	JIANG Nan, HAO Xue-xin, HAO Qi, <i>et al.</i>	(2430)
On-line Measurement of Trace Elements in PM _{2.5} in Winter in Urban Taiyuan, China; Levels and Source Apportionment	CUI Yang, GUO Li-li, LI Hong-yan, <i>et al.</i>	(2441)
Characteristics and Source Apportionment of Black Carbon Over the Eastern Tibetan Plateau	WANG Hong-lei, LIU Si-han, ZHAO Tian-liang, <i>et al.</i>	(2450)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds in Zhanjiang in Summer	PANG Xiao-die, GAO Bo, CHEN Lai-guo, <i>et al.</i>	(2461)
Ozone Pollution Characteristics and Sensitivity During the Ozone Pollution Days in Summer 2021 of Xinxiang City	HOU Mo, JIANG Xiao-mei, ZHAO Wen-peng, <i>et al.</i>	(2472)
Influence of Typhoon Nangka Process on Ozone Pollution in Hainan Island	FU Chuan-bo, DAN Li, TONG Jin-he, <i>et al.</i>	(2481)
Health Impacts of Air Pollution in Tianjin	HUA Kun, LUO Zhong-wei, JIA Bin, <i>et al.</i>	(2492)
Analysis of Change and Driving Factors of River Environmental Quality in China from 2002 to 2020	YANG Chuan-xi, XUE Yan, GAO Chang, <i>et al.</i>	(2502)
Spatiotemporal Pattern and Driving Force Analysis of Ecological Environmental Quality in Typical Ecological Areas of the Yellow River Basin from 1990 to 2020	WANG Fang, LI Wen-hui, LIN Yan-min, <i>et al.</i>	(2518)
Response of Water Quality in Small Reservoirs to Landscape Composition, Landscape Configuration, and Reservoir Characteristics in the Upper Reaches of the Yangtze River During Dry Season	ZHONG Yong-lin, RAN Jiao-jiao, WEN Wen, <i>et al.</i>	(2528)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Typical Endocrine Disrupting Chemicals in Drains Flowing into the Yellow River of Ningxia	LI Ling-yun, GAO Li, ZHENG Lan-xiang, <i>et al.</i>	(2539)
Occurrence Characteristics of Microplastics and Metal Elements in the Surface Water of Huangpu River and Their Associations with Metal Resistance Genes	LU Jia-wei, XU Chen-ye, HU Chun, <i>et al.</i>	(2551)
Spatial Distribution Characteristics and Source Analysis of Heavy Metals in Urban River Surface Sediments from the Lanzhou Reach of the Yellow River	LI Jun, LI Xu, LI Kai-ming, <i>et al.</i>	(2562)
Distribution and Release Potential of Soil Phosphorus Fractions in Water-level Fluctuation Zone of the Tributary Bay, Three Gorges Reservoir	ZHANG Xue, ZHU Bo, <i>et al.</i>	(2574)
Distribution and Pollution Assessment of Nutrients in the Surface Sediments of Lake in Huoqiu County	LIU Hai, ZHAO Guo-hong, <i>et al.</i>	(2583)
Analysis of Influencing Factors of Chlorophyll-a in Lake Taihu Based on Bayesian Network	LIU Jie, HE Yun-chuan, DENG Jian-ming, <i>et al.</i>	(2592)
Hydrochemical Characteristics and Control Factors of Groundwater in Shunping County, Hebei Province	LIU Yuan-qing, ZHOU Le, LÜ Lin, <i>et al.</i>	(2601)
Distribution, Transformation, and Fate of Per- and Polyfluoroalkyl Substances in Drinking Water Treatment	ZHONG Ting-ting, LIN Tao, LIU Wei, <i>et al.</i>	(2613)
Removal of Cr(VI) via a Nickel Ferrite@Activated Carbon Composite Under Batch Experiments; Study of Characterization, Performance, and Mechanism	ZHANG Hua, LI Rong-hua, CHEN Jin-xiong, <i>et al.</i>	(2622)
Degradation of SMX with Peracetic Acid Activated by Nano Core-shell Co@NC Catalyst	ZHENG Ting-lu, ZHANG Long-long, CHEN Jia-bin, <i>et al.</i>	(2635)
Adsorption Characteristics of Arsenic and Cadmium by FeMnNi-LDH Composite Modified by Fulvic Acid and Its Mechanisms	HE Ya-xin, KE Xin-yi, WEI Shi-qiang, <i>et al.</i>	(2646)
Adsorption Mechanism for Phosphate in Aqueous Solutions of Calcium/Aluminum-rich Sludge Biochar Composite	OUYANG Zhu, CAO Lu, WANG Bing-qian, <i>et al.</i>	(2661)
Sludge Biochar Modified by B-doped and Its Adsorption Behavior and Mechanism of 1,2-DCA in Water	ZHOU Jia-wei, SHI Wei-lin, XU Wei, <i>et al.</i>	(2671)
Response of Forest Ecosystems to Decreasing Atmospheric Nitrogen Deposition	XIE Dan-ni, YANG Dong-xing, DUAN Lei, <i>et al.</i>	(2681)
Impacts of Climate Change and Human Activities on Vegetation Restoration in Typical Grasslands of China	ZHANG Liang-xia, YUE Xiao, ZHOU De-cheng, <i>et al.</i>	(2694)
Spatial-temporal Variation in Net Primary Productivity in Terrestrial Vegetation Ecosystems and Its Driving Forces in Southwest China	XU Yong, HUANG Hai-yan, DAI Qiang-yu, <i>et al.</i>	(2704)
Effects of Different Carbon Inputs on Soil Stoichiometry in Tianshan Mountains	MA Xin-yu, GONG Lu, ZHU Hai-qiang, <i>et al.</i>	(2715)
Effects of Nitrogen and Phosphorus Addition on Soil Nutrient Content and Stoichiometry in Desert Grassland	LIU Shu-xuan, AN Hui, ZHANG Xin-wen, <i>et al.</i>	(2724)
Effect of <i>Spartina alterniflora</i> Invasion on Soil C:N:P Stoichiometry in Coastal Wetland of Hangzhou Bay	LI Wen-qi, XIANG Qi, XIE Xue-feng, <i>et al.</i>	(2735)
Effects of 24 Years Different Straw Return on Soil Carbon, Nitrogen, Phosphorus, and Extracellular Enzymatic Stoichiometry in Dryland of the Loess Plateau, China	YAO Zhi-xia, ZHOU Huai-ping, XIE Wen-yan, <i>et al.</i>	(2746)
Carbon Sequestration Characteristics Under Natural Vegetation Restoration in Ziwuling Area of the Loess Plateau	XU Xiao-ming, ZHANG Xiao-ping, WANG Hao-jia, <i>et al.</i>	(2756)
Effects of Short-term Nitrogen Addition on Soil Organic Carbon Components in <i>Robinia pseudoacacia</i> L. Plantation	JIAN Jun-nan, LIU Wei-chao, ZHU Yu-fan, <i>et al.</i>	(2767)
Response of Soil Organic Carbon Accumulation in Paddy Fields in Fujian Province to Future Temperature Increases	CHE Yan, QIU Long-xia, WU Ling-yun, <i>et al.</i>	(2775)
Species, Habitat Characteristics, and Screening Suggestions of Cadmium Hyperaccumulators in China	ZHAO Xiao-feng, LEI Mei, CHEN Tong-bin, <i>et al.</i>	(2786)
Research Progress on Spatial Differentiation and Influencing Factors of Soil Heavy Metals Based on Geographical Detector	GONG Cang, WANG Shun-xiang, LU Hai-qiang, <i>et al.</i>	(2799)
Geochemical Background and Baseline Value of Soil Chemical Elements in Hebei Province	ZHANG Li-ting, CHENG Hang-xin, XIE Wei-ming, <i>et al.</i>	(2817)
Distribution Characteristics, Ecological Risks, and Source Identification of Heavy Metals in Cultivated Land Under Non-grain Production	QIU Le-feng, ZHU Jin-xia, PAN Yi, <i>et al.</i>	(2829)
Source Analysis and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in the Arable Soil at the Geological High Background, Based on the Township Scale	YU Fei, WANG Jia-bin, WANG Rui, <i>et al.</i>	(2838)
Solid-solution Partitioning Coefficients and Environmental Risk of Cd and Pb in Soil in Chang-Zhu-Tan Area	LI Yu-ying, PENG Chi, LIU Le-le, <i>et al.</i>	(2849)
Ecological Risk and Migration Patterns of Heavy Metals in Soil and Crops in the Lead-Zinc Mining Area in Guizhou, China	MA Hong-hong, ZHANG Li, GUO Fei, <i>et al.</i>	(2856)
Mercury Pollution in Dryland Soil and Evaluation of Maize Safety Production in Guizhou Province	MA Li-jun, ZHOU Lang, SONG Bo, <i>et al.</i>	(2868)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of PAHs in the Soil of Wild <i>Forsythia Suspensa</i> in Shanxi	GUO Jia-jia, WANG Qi, KANG Min-jie, <i>et al.</i>	(2879)
Effects of P on the Uptake and Transport of Cd and As in Wheat Seedlings	WANG Yun, ZHAO Peng, LI Guang-xin, <i>et al.</i>	(2889)
Effects of Silicon Application on Arsenic Sequestration in Iron Plaque and Arsenic Translocation in Rice	LI Lin-feng, WEN Wei-fa, XU Zi-sheng, <i>et al.</i>	(2899)
Characteristics of Soil Microbial Community in Different Habitats in the Process of Ecological Restoration of Haifeng Wetland in Guangdong	MA Jiao-jiao, GAO Chang-jun, YI Xiao-qing, <i>et al.</i>	(2908)
Taxonomic and Functional Diversity of Soil Microbial Communities in Subalpine Meadow with Different Degradation Degrees in Mount Wutai	LUO Zheng-ming, LIU Jin-xian, HU Yan-qiu, <i>et al.</i>	(2918)
Effects of the Transformation from Natural Alpine Grassland to Mixed Artificial Grassland on the Characteristics of Soil Microbial Community	YU Hao, LIU Yue, DENG Ye, <i>et al.</i>	(2928)
Effects of Chinese Milk Vetch Returning Incorporated with Chemical Fertilizer Reduction on the Composition and Function of Soil Bacterial Communities in Paddy Fields	ZHANG Ji-shi, LIU Chun-zeng, ZHENG Chun-feng, <i>et al.</i>	(2936)
Effects of Long-term Sod Cultivation on Chinese Hickory Plantation Soil Fungal Community and Enzyme Activities	HU Ying-bing, LIANG Chen-fei, JIN Jin, <i>et al.</i>	(2945)
Effects of Microplastic High-density Polyethylene on Cotton Growth, Occurrence of <i>Fusarium</i> wilt, and Rhizosphere Soil Bacterial Community	ZHANG Hao, SUN Jie, YANG Hui-ying, <i>et al.</i>	(2955)
Nitrogen Metabolism and Flora Characteristics of Bacteria Algae Complex System	ZHAO Zhi-rui, WU Hai-miao, MA Chao, <i>et al.</i>	(2965)
Analysis of Carbon Emissions and Influencing Factors in China Based on City Scale	WU Jian-sheng, JIN Xue-ru, WANG Han, <i>et al.</i>	(2974)
How Do Carbon Trading Policies Affect Industrial Carbon Productivity; Quasi-natural Experiments from Chinese Provincial Data	FANG Qi, LI Shao-ping, <i>et al.</i>	(2983)
Influence of the Classification of Municipal Solid Wastes on the Reduction of Greenhouse Gas Emissions; A Case Study of Qingdao City, China	CHEN Ji-hong, BIAN Rong-xing, ZHANG Ting-xue, <i>et al.</i>	(2995)
Quantitative Analysis of Spatio-temporal Evolution Characteristics of Seasonal Average Maximum Temperature and Its Influence by Atmospheric Circulation in China from 1950 to 2019	SU Yue, LU Chun-yan, HUANG Yu-fei, <i>et al.</i>	(3003)