环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第45卷 第3期
2024年3月15日

目 次

中国省域差异化碳达峰评价方法与应用 ……刘润璞，彭栓，陈玉烁，陈民，张楠，Nihed Benani，吕连宏，阳平坚（1233）
全生命周期视角下中国建筑碳排放空间关联网络演化及影响因素分析 ……任晓松，李昭睿（1243）
京津冀地区城市三生空间碳代谢效率特征及演进模式……田超，程琳琳，邵盈钞（1254）
太原市“十四五”规划大气污染防治政策的CO_2协同效益评估 ……肖婷玉，束韫，李慧，王涵，李俊宏，严沁，张文杰，姜华（1265）
湖南省工业领域碳减排与空气质量改善协同……李楠，刘弯弯，朱书涵，邢晓雯，汤克勤，王松伟，白露（1274）
“双碳”背景下河南省电力行业中长期控煤降碳路径 ……张静，杨萌，张伟，曹东，赵静，李勃，薛英岚，蒋洪强（1285）
郑州市公交车队电动化减污降碳环境效益 ……邹超，汪亚男，吴琳，何敬，倪经纬，毛洪钧（1293）
长江中游城市群城市化对$PM_{2.5}$浓度的多尺度驱动机制 ……张政，周廷刚，周志衡，昌悦（1304）
天山北坡城市群$PM_{2.5}$浓度时空分布特征及影响因素分析 ……王相男，张喆，刘方青（1315）
天津市$PM_{2.5}$碳组分空间差异性及来源解析……武甫亮，吴建会，戴启立，肖致美，冯银厂（1328）
贵阳市花溪城区大气$PM_{2.5}$中碳质气溶胶的变化特征及来源解析 ……桂佳群，杨员，王显钦，李云武，闫广轩，徐鹏（1337）
新乡市大气$PM_{2.5}$中水溶性离子的污染特征、来源解析及气象影响分析
……刘桓嘉，李岚清，李焕莉，任言，许梦源，贾梦珂，刘恒志，杨莹，宋天颂，洪启航（1349）
2017~2018年冬季菏泽大气$PM_{2.5}$中金属元素特征及健康风险评估 ……杜虹萱，任丽红，赵明升，韩慧霞，徐义生（1361）
北京市臭氧污染跳变型特征及影响因素分析 ……潘锦秀，安欣欣，刘保献，李云婷，李倩，孙峰，张章，邱启鸿，陈阳（1371）
南京夏季大气臭氧光化学特征与敏感性分析 ……罗丽彤，章炎麟，林煜棋，Ahsan Mozaffar，曹梦瑶（1382）
苏州市初夏臭氧污染成因及年际变化 ……吴也正，张鑫，顾钧，缪青，魏恒，熊宇，杨倩，吴斌，沈文渊，马强（1392）
长江中游典型湖泊沉积物重金属分布特征、生态风险评估及溯源 ……卢洪斌，卢少勇，李响，张森霖，黄张根（1402）
基于PCA-APCS-MLR模型的乌梁素海表层沉积物重金属时空分布及来源解析
……崔志谋，史小红，赵胜男，卢俊平，张昊，刘莹慧，郭鑫，王彦隽（1415）
重庆市长寿湖水库表层水体重金属时空分布及风险评价……张瑞溪，刘娅君，罗泳楠，李杰芹，李彩霞，李佳佳，张成（1428）
长江流域微塑料污染特征及生态风险评价 ……李思琼，王华，储林佑，曾一川，闫雨婷（1439）
宜昌市东山运河微塑料污染评估及年排放量估算……丁爽，李卫明，张续同，刘子健，高雅坤，李映成，王芳炜（1448）
汜水河(荥阳段)入河排污口水体微塑料赋存特征及风险评估 ……赵长民，和兵，李和通，张瑞琪，李银月，张发文，桂新，马丽（1457）
宁夏入黄排水沟中药物和个人护理品的污染特征与生态风险评价 ……高礼，李凌云，郑兰香，吴海娟，陶红，刘邓超（1468）
浙南瓯江流域水体抗生素污染特征及风险评价 ……钟奕昕，李立湘，吴鑫，周施阳，姚飞延，董好刚（1480）
鄱阳湖沉积物中多环芳烃的时空分布及源解析 ……马妍，孙晨，毕笳乐，张波涛，刘艳，邵鹏，刘统，王圣瑞，钟文军（1492）
杭州湾南岸20 a水质净化功能变化及预测 ……王珊珊，曹公平，徐明伟，黄君宝，曾剑（1502）
不同缓冲区的土地利用方式对地表水水质的影响：以海河流域天津段为例 ……代孟均，张兵，杜倩倩，孙季珲，田蕾，王义东（1512）
长江流域安庆段浅层地下水水化学特征及控制因素……刘海，宋阳，李迎春，魏伟，赵国红，王旭东，黄健敏（1525）
富营养化湖泊藻华腐解产生的溶解性有机质动态变化及其环境效应 ……张瑾，陈明滢，郝智能，钟寰，何欢，雷沛（1539）
紫外光活化亚硫酸盐降解水中卡马西平 ……林涛，苑宇杰（1553）
再生水消毒副产物的检测、生成与控制 ……廖雨枫，王正，潘旸，李爱民（1561）
3种人工湿地基质材料对氨氮的吸附特性 ……何强，陈博文，杨雨静，周全，刘彦君，王志刚，程呈（1577）
基于改进遥感生态指数的青藏公路那(曲)安(多)段生态环境评估及驱动机制分析 ……傅楷翔，贾国栋，余新晓，王旭（1586）
基于AWRSEI的岱海流域生态环境质量时空演变及驱动因子分析……赵嘉丽，李兴，孙冰（1598）
定量评估气候变化对长江中下游地区植被GPP_{CS}变化的影响 ……徐勇，盘钰春，邹滨，郑志威，郭振东（1615）
基于Meta分析的煤矿区植被恢复对土壤有机碳储量的影响 ……李健明，康雨欣，蒋福祯，宋明丹，祁凯斌，卢素锦，李正鹏（1629）
连续周年轮作休耕对土壤团聚体稳定性及有机碳的影响 ……鲁泽让，李永梅，杨春怀，夏梓泰，程伟威，王自林，赵吉霞，范茂攀（1644）
4种改良剂对酸性紫色土肥力及活性有机碳组分的影响 ……丁馨茹，严宁珍，王子芳，李志琦，黄容，王洋，代文才，高明（1655）
不同植茶年限土壤氮素组分变化及其与环境因子关系 ……邵奇，吴涛，解雪峰，徐梓晴，李文琦，蒋国俊，张建珍，徐飞（1665）
黄河下游典型湿地土壤养分及其生态化学计量特征 ……王传盈，王凯月，王浩然，张梦迪，周云凯（1674）
覆膜年限和有机肥施用对花生田耕层土壤微塑料赋存特征的影响
……宋宁宁，李梦佳，王学霞，刘君，王芳丽，宗海英，黄小丽，王斌，梁丽娜（1684）
秸秆还田和添加生物炭对热带地区稻菜轮作体系中淹水后土壤温室气体排放的影响
……胡天怡，车佳玥，胡煜杰，陈绮琦，张冬明，雷菲，曾建华，汤水荣，伍延正，孟磊（1692）
耕作深度调控秸秆还田对农田土壤呼吸的影响 ……陈曦，张彦军，邹俊亮，李天姿，于媛，李晶（1702）
基于遥感时-空-谱特征及随机森林模型的土壤重金属空间分布预测 ……王泽强，张冬有，徐夕博，王兆鹏，杨东宇，宋晓宁（1713）
黄河流域农田土壤重金属污染特征及其优先控制源分析……李军，李旭，李开明，焦亮，台喜生，臧飞，曹素珍（1724）
广西贺州市典型矿区周边耕层土壤Cd通量特征 ……杨烨宇，李程，杨忠芳，张起钻，邹胜章，宋淑娥，蔡贺清（1739）
基于信息扩散模型的沣东新城区土壤重金属潜在生态风险评估……杨楠楠，韩玲，刘明（1749）
湘西地区土壤重金属污染溯源分析及环境质量评价 ……肖凯琦，徐宏根，甘杰，戴亮亮，李毅，李凯，许青阳，张俊，邓世民，李颖（1760）
典型行业再利用土壤重金属含量分布、来源解析及生态风险评价……沈城，王文娟，沙晨燕，谢雨晴，王敏，吴健（1769）
省级尺度土壤As迁移转化与水稻安全种植区划：以贵州省为例……董心月，吴勇，周子寒，王佛鹏，张云霞，宋波（1781）
谷壳灰硅肥改善土壤质量降低水稻镉砷累积的效应……易轩韬，欧阳坤，辜娇峰，李倩，游萍，周航，廖柏寒（1793）
EDDS对土壤铜镉有效性及蓖麻吸收转运的影响 ……刘文英，吴刚，胡红青（1803）
叶面调理剂对复合污染农田小麦籽粒Cd、As和Pb累积的阻控效应 …肖冰，王秋实，高培培，赵全利，杨威，王钊，刘文菊，薛培英（1812）
民勤绿洲退耕地土壤微生物群落结构与功能多样性特征 ……李常乐，张富，王理德，赵赫然，赵学成，张恒平（1821）
宏基因组揭示紫色土中邻苯二甲酸酯去除的微生物学机制 ……李雨桐，余海，刘坤，柏宏成，汪军，朱正杰（1830）
养鸡场空气微生物污染及工人呼吸暴露风险 ……白渔樵，孙兴滨，仇天雷，郭雅杰，高敏，王旭明（1840）
玛瑙河多环境介质和铜锈环棱螺体内微塑料的赋存特征 ……高雅坤，李卫明，张续同，刘子健，李映成，丁爽，王芳炜，刘流（1849）
不同官能团微塑料对斑马鱼胚胎菌群和代谢功能的胁迫效应 ……闫振华，张燕，包旭辉，朱培元，陈玉芳（1859）
《环境科学》征订启事(1427)　《环境科学》征稿简则(1576)　信息(1654)

新乡市大气$PM_{2.5}$中水溶性离子的污染特征、来源解析及气象影响分析

刘桓嘉[1],李岚清[1],李焕莉[2],任言[1],许梦源[1],贾梦珂[1],刘恒志[1],杨莹[1],宋天颂[1],洪启航[1]
(1. 河南师范大学环境学院, 黄淮水环境污染与防治教育部重点实验室, 河南省环境污染控制重点实验室, 新乡 453007; 2. 洛阳市生态环境局新安分局, 洛阳 471800)

摘要: 为探究新乡市大气$PM_{2.5}$中水溶性无机离子(WSIIs)的污染演变、来源特征及其气象影响,利用URG-9000在线监测系统于2022年1月(冬季)、4月(春季)、7月(夏季)和10月(秋季)对$PM_{2.5}$组分进行在线观测. 结果表明,TWSIIs(总水溶性无机离子)与$PM_{2.5}$的季节变化特征一致,季度ρ(TWSIIs)均值变化范围为19.62~72.15 μg·m^{-3},在$PM_{2.5}$中的占比超过66%,WSIIs是大气$PM_{2.5}$的重要组分. 年均NO_3^-/SO_4^{2-}(质量浓度比)为2.11,且呈现逐年增加的趋势,移动源对二次无机气溶胶(SNA)的影响不容忽视,年均[NH_4^+]/[NO_3^-](量比)为1.95,说明农业源是大气中氮的主要贡献者. 后向轨迹分析表明,在盛行东北风且风速较大时,$PM_{2.5}$中Ca^{2+}和Mg^{2+}的浓度较高. 低温高湿的气象条件下(T<8℃,RH>60%),SOR和NOR值均较高,更多的气态前体物SO_2和NO_2转化为颗粒态的SO_4^{2-}和NO_3^-. 与SOR不同,在高温条件下(T>24℃),NOR并没有表现出高值特征,与高温条件下NH_4NO_3的分解有关. 结合PMF和后向轨迹分析,来自西北方向的气团所对应的扬尘源对WSIIs的贡献较大,观测站点周边区域的低空低速气团所对应的二次硫酸盐以及二次硝酸盐和生物质源对WSIIs的贡献较大.

关键词: $PM_{2.5}$; 水溶性无机离子; 污染特征; 来源解析; 气象要素; 新乡
中图分类号: X513 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2024)03-1349-12 **DOI:** 10.13227/j.hjkx.202303265

Pollution Characteristics, Source Apportionment, and Meteorological Response of Water-soluble Ions in $PM_{2.5}$ in Xinxiang, North China

LIU Huan-jia[1], LI Lan-qing[1], LI Huan-li[2], REN Yan[1], XU Meng-yuan[1], JIA Meng-ke[1], LIU Heng-zhi[1], YANG Ying[1], SONG Tian-song[1], HONG Qi-hang[1]
(1. Key Laboratory of Yellow River and Huai River Water Environment and Pollution Control, Ministry of Education, Henan Key Laboratory for Environmental Pollution Control, School of Environment, Henan Normal University, Xinxiang 453007, China; 2. Xin'an Branch of Luoyang Ecological Environment Bureau, Luoyang 471800, China)

Abstract: Pollution variation, source characteristics, and meteorological effects of water-soluble inorganic ions (WSIIs) in $PM_{2.5}$ were analyzed in Xinxiang city, Henan Province. $PM_{2.5}$ samples and their chemical components were monitored online by using URG-9000 in four seasons: winter (January, 2022), spring (April, 2022), summer (July, 2022), and fall (October, 2022). The results showed that the TWSIIs had the same seasonal fluctuations as $PM_{2.5}$. The average seasonal concentrations of WSIIs ranged from 19.62-72.15 μg·m^{-3}, accounting for more than 60% of $PM_{2.5}$, demonstrating that WSIIs were the major components of $PM_{2.5}$. The annual concentration value of NO_3^- / SO_4^{2-} was 2.11, which showed an increasing trend, suggesting predominantly mobile sources for secondary inorganic aerosols (SNA). Further, the molar concentration value [NH_4^+]/[NO_3^-] was 1.95, demonstrating that agriculture emissions were the dominant contributors to atmospheric nitrogen. Furthermore, the backward trajectory analysis showed that the concentrations of Ca^{2+} and Mg^{2+} were higher when the northeasterly wind prevailed and the wind speed was high. High values of SOR and NOR were correlated with low temperatures and high relative humidity (T < 8℃, RH > 60%), demonstrating that more gaseous precursors were converted into sulfate and nitrate. At high temperatures (T > 24℃), there was no apparent high NOR value like that for SOR, mainly due to the decomposition of NH_4NO_3 at high temperatures. Finally, backward trajectories associated with the PMF-resolved results were used to explore the regional transport characteristics. The results illustrated that dust sources in the study areas were mainly influenced by air trajectories originating from the northwest regions, whereas secondary sulfate, secondary nitrate, and biomass sources contributed more to WSIIs when wind speed and altitude air masses were low in the area surrounding the observation site.

Key words: $PM_{2.5}$; water-soluble inorganic ions; pollution characteristics; source apportionment; meteorological factors; Xinxiang

大气细颗粒物($PM_{2.5}$,空气动力学直径≤2.5 μm)在对流层大气环境中至关重要,其浓度达到一定程度时会对气候变化[1]、空气质量[2,3]和人体健康[4~6]造成影响. 尽管《大气污染防治行动计划》实施以来,我国大部分地区空气质量得到了一定改善[7],$PM_{2.5}$浓度持续降低[8,9],但京津冀及周边地区大气$PM_{2.5}$污染依然突出[10]. 水溶性无机离子(water soluble inorganic ions, WSIIs)是$PM_{2.5}$的重要组分,约占$PM_{2.5}$质量的30%~80%[11~13]. 在$PM_{2.5}$浓度持续下降的背景下,WSIIs的占比却呈现一定的升高趋势[14],且在重污染形成过程中,WSIIs尤其是SNA(secondary inorganic aerosol,包括NH_4^+、NO_3^-和SO_4^{2-})的作用十分重要[2,12,13,15,16]. 因此对大气$PM_{2.5}$中WSIIs的研究一直是

收稿日期: 2023-03-31; **修订日期:** 2023-05-29
基金项目: 国家自然科学基金项目(42007204);河南省科技攻关项目(222102320394);河南省博士后科研项目(HN2022023)
作者简介: 刘桓嘉(1987~),男,博士,讲师,主要研究方向为大气颗粒物及其化学组分来源解析及二次气溶胶形成机制,E-mail:liuhuanjia@htu.edu.cn

学者关注的热点.

为了探究大气 $PM_{2.5}$ 中 WSIIs 的污染演变规律、区域传输路径及其来源特征,李佳琪等[17]探究了《大气污染防治行动计划》实施后期成都大气 $PM_{2.5}$ 中 WSIIs 的季节变化及来源,发现 WSIIs 浓度呈现秋冬季高春夏低的特点,且 SNA 是 WSIIs 的重要组分,占比超过 84%. 二次硝酸盐、二次硫酸盐、燃煤源、扬尘源和生物质燃烧源被认为是 WSIIs 的主要来源[18,19]. 后向轨迹是利用高空气象数据计算气团的传输路径,研究污染物的区域传输特征[20]. 风向玫瑰分析则是结合近地面气象观测数据,并耦合高时间分辨率的离子浓度数据探究风速风向对受体点组分浓度的影响[10]. Zang 等[21]通过污染物的风玫瑰分析得出高浓度的 Ca^{2+}、Mg^{2+}、K^+、Cl^- 和 Na^+ 与当地盛行风向有关,表现出明显的区域传输特征. 耦合 PMF 模型和后向轨迹以及风玫瑰分析方法并结合高时空分辨率的组分数据,对特定站点 WSIIs 的来源特征进行深入分析的研究相对较少.

目前,学者对我国 WSIIs 的观测研究主要集中在京津冀[20]、长三角[22]、珠三角[23]、汾渭平原和成渝地区[24]以及东北等地. 新乡市作为"传输通道"城市之一,其大气污染形式较为严峻,在生态环境部发布的 2023 年 1 月全国 168 个重点城市空气质量排名中,新乡市位列倒数(https://www.mee.gov.cn/). 有学者通过离线膜采样的方法分析了新乡市 2015 年及 2016 年冬季 WSIIs 的污染特征[25],发现新乡市 WSIIs 的来源主要是尘土、二次源、工业源和化石燃料燃烧源,且相比于 2015 年,2016 年 SNA 在 $PM_{2.5}$ 中的占比上升了 25.1%. 但上述研究时间相对久远,难以反映《大气污染防治行动计划》实施后期及"总理基金"实施以来大气 $PM_{2.5}$ 中 WSIIs 的污染演变及其来源变化,且研究时间较短、采样分辨率较低,缺少对 WSIIs 整体的污染特征及季节演变规律的研究.

本研究利用高时间分辨率的在线气溶胶及气体组分离子监测系统对新乡市 2022 年 $PM_{2.5}$ 中 WSIIs 进行观测分析,旨在:①探究 WSIIs 季节演变特征;②阐明气溶胶的酸碱性及 WSIIs 的存在形式;③通过分析 WSIIs 和气象要素之间的关系研究 SNA 的生成过程;④使用 PMF 模型对 WSIIs 的来源进行解析,并结合后向轨迹模型探究不同方向的气团对受体点离子组分和来源的影响,以期为"减污降碳协同增效"新阶段大气污染精准防控提供科学依据.

1 材料与方法

1.1 观测站点

观测站点位于河南省新乡市生态环境局楼顶(35.303 1°N,113.923 7°E,如图 1),距离地面约为 35 m,周边为居民区、商业区、政府办公楼和城市主干道,附近 1 km 范围内没有大型污染源,能够代表典型城市环境. 选择 2022 年的 1、4、7 和 10 月作为观测时段,分别代表冬季、春季、夏季和秋季.

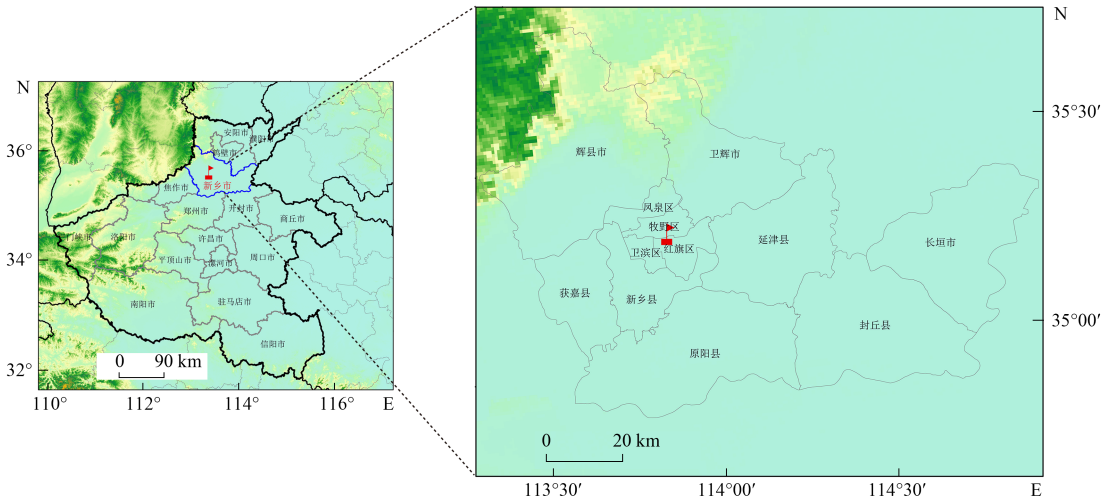


图 1 采样点地理位置示意

Fig. 1 Presenting geographical locations of sampling sites

1.2 数据收集

采用气溶胶及气体组分在线离子色谱监测系统(URG-9000,Thermo Fisher Scientific,美国)分析大气 $PM_{2.5}$ 中 WSIIs,如 K^+、Ca^{2+}、Na^+、Mg^{2+}、NH_4^+、Cl^-、NO_3^- 和 SO_4^{2-}. 该设备由气体采集装置(URG)和离子色谱分析系统组成,仪器采样流量为 16.7 L·min^{-1},采样时间分辨率为 1 h,最低检出限为 0.005 μg·m^{-3}. 本研究中 $PM_{2.5}$、O_3、SO_2、NO_2 和 CO 小时浓度数据来源于市政府省控站点,距离水溶性无机离子组分观测站点约为 300 m,风速(wind speed,

WS）、风向（wind direction，WD）、相对湿度（relative humidity，RH）、降水量（precipitation）和温度（temperature，T）等地面气象观测数据来自于国家气象科学数据中心（http://data.cma.cn/），时间分辨率为 1 h.

离子样品采集及分析测试中，为保证分析结果的准确性，定期更换过滤头等配件及耗材，并对采样流量进行定期校准；每两个月重新配制阴阳离子标准溶液，绘制阴阳离子标准曲线，保证其相关系数在 99.9% 以上，以保证测试结果的准确性.

1.3　数据分析方法

1.3.1　硫氧化率（SOR）和氮氧化率（NOR）

硫氧化率（sulfur oxidation ratio，SOR）和氮氧化率（nitrogen oxidation ratio，NOR）常被用来评估气态前体物（SO_2 和 NO_2）二次转化的程度[26,27]，较高的 SOR 和 NOR 说明 SO_2 和 NO_2 被氧化为二次无机盐的程度更高. 其计算公式如下[28]：

$$\mathrm{SOR}=\frac{\rho(SO_4^{2-})/96}{\rho(SO_4^{2-})/96+\rho(SO_2)/64} \tag{1}$$

$$\mathrm{NOR}=\frac{\rho(NO_3^-)/62}{\rho(NO_3^-)/62+\rho(NO_2)/46} \tag{2}$$

式中，ρ 表示不同离子组分的质量浓度.

1.3.2　阴阳离子平衡

颗粒物酸碱度对人体健康、二次组分形成及周边环境均有重要影响. 阴阳离子电荷当量浓度比值是决定颗粒物酸碱性的重要方法之一[24,29]，若阴离子当量浓度（anion equivalent，AE）小于阳离子当量浓度（cation equivalent，CE），则 $PM_{2.5}$ 呈碱性，反之则呈酸性[24,30]. AE 和 CE 计算公式如下：

$$\mathrm{AE}=\frac{\rho(Cl^-)}{35.5}+\frac{\rho(NO_3^-)}{62}+\frac{\rho(SO_4^{2-})}{48} \tag{3}$$

$$\mathrm{CE}=\frac{\rho(Na^+)}{23}+\frac{\rho(NH_4^+)}{18}+\frac{\rho(K^+)}{39}+\frac{\rho(Mg^{2+})}{12}+\frac{\rho(Ca^{2+})}{20} \tag{4}$$

式中，c 表示不同离子组分的质量浓度.

1.3.3　正交矩阵因子分解模型

正交矩阵因子分解模型（positive matrix factorization，PMF）是应用较为广泛的一种受体源解析模型[31~34]，其通过输入化学组分浓度和不确定度文件，并对每一个因子进行非负约束，基于最小二乘法原理确定不同污染源成分谱和贡献谱[35,36]. 本研究采用 US EPA PMF5.0 对受体点 $PM_{2.5}$ 中离子组分的来源进行解析，数据的不确定度计算如式（5）：

$$\mathrm{Unc}=\begin{cases}\mathrm{MDL}\times 5/6, & (\mathrm{con}\leqslant \mathrm{MDL})\\ [(\text{error fraction}\times \mathrm{con})^2+ & \\ (0.5\times \mathrm{MDL})^2]^{1/2}, & (\mathrm{con}>\mathrm{MDL})\end{cases} \tag{5}$$

式中，Unc 为离子组分的不确定度，error fraction 为样品组分误差，本研究中采用经验值 10%[37]，con 为样品中离子组分的浓度，MDL 为方法检出限. 本研究将 8 种离子浓度之和作为总变量，根据离子组分的信噪比 S/N 和残差值将其分别设置为“strong”、“weak”和“bad”，并进行 DISP 和 Bootstrap 检验[38]. 按照 3~8 个因子数分别进行 100 次运行并计算目标函数 Q 值，并将 Q_{True}/Q_{Theo} 与选择的因子个数进行作图，选择图中斜率突变点附近的因子个数作为参考值[39]，对比现有研究中的特征指纹图谱，并结合受体点周围实际污染源信息，确定 4 个因子为最优解. 分别令 F_{peak} 为 ±1.0、±0.5 和 0，对选定的 4 个因子进行旋转，确定取得 Q_{True}/Q_{Theo} 最小值时的 F_{peak} 为最优解[40].

1.3.4　NOAA HYSPLIT 后向轨迹模式

TrajStat 软件是基于 NOAA 后向轨迹模式（hybrid single-particle Lagrangian integrated trajectory model，HYSPLIT）开发的用于分析污染物传输路径和潜在源区的计算模型[41]. 本研究利用 Meteoinfo 软件中 TrajStat 插件探究了不同传输气团夹带的 $PM_{2.5}$ 中水溶性无机离子组分的污染特征和排放源的差异. 气团轨迹计算开始的坐标为观测点的坐标，起始高度为距离地面 500 m，计算 48 h 的后向气团轨迹[10,42]. 模型使用 1°×1° 的 NCEP/NCAR 再分析气象数据（ftp://arlftp.arlhq.noaa.gov/pub/archives/gdas1/），每小时计算一次气团轨迹，时间为 2022 年的 1、4、7 和 10 月（对应观测时间）.

2　结果与讨论

2.1　$PM_{2.5}$ 及其离子组分污染特征

新乡市 2022 年不同季节 $PM_{2.5}$ 及其水溶性无机离子组分变化特征如表 1 所示. 观测期间，年均 $\rho(PM_{2.5})$ 为（58.87±46.20）μg·m^{-3}，是我国环境空气质量二级浓度限值（GB 3095-2012，35 μg·m^{-3}）的 1.7 倍，低于本地区 2017~2018 年均 $\rho(PM_{2.5})$［（69.0±46.3）μg·m^{-3}）］[26] 及 2019~2020 年均 $\rho(PM_{2.5})$［（66.25±35.73）μg·m^{-3}］[31]，高于本地区 2021~2022 年均 $\rho(PM_{2.5})$［（51.06±39.16）μg·m^{-3}）］[10]. 年均 ρ（WSIIs）为（40.41±29.40）μg·m^{-3}，高于北京年均 ρ（WSIIs）［（31.7±30.1）μg·m^{-3}，2017~2018 年］[30]、重庆［（28.8±20.3）μg·m^{-3}，2015~2016 年］[24] 和成都［（23.07 μg·m^{-3}），2018 年］[43]，与郑州［（39.34±21.56）μg·m^{-3}，2020~2021 年］[29] 相当. NO_3^-、NH_4^+ 和 SO_4^{2-} 是主要的离子组分，其年均浓度分别为（18.53±15.37）、（10.47±7.46）和（8.79±7.13）μg·m^{-3}，与本地区 2017~2018 年离线观测结果相比[26]，NH_4^+ 和 SO_4^{2-} 的浓度变化不显著，而 NO_3^- 的浓度增加了 53%，这可能因为离线观测中样品采集时间较长，硝酸盐分解

导致NO_3^-的浓度过低，从而使离线NO_3^-浓度低于在线观测（本研究）的浓度[26,44]，另外由于机动车保有量的增加，造成NO_x排放量的增加也可能是导致NO_3^-浓度升高的原因之一[8,24,45].

如表1所示，TWSIIs的季节变化特征与$PM_{2.5}$相似，最高值出现在冬季ρ(TWSIIs)[(72.15±31.44) μg·m^{-3}]，最低值出现在夏季ρ(TWSIIs)[(19.62±9.82) μg·m^{-3}]. 除Ca^{2+}以外，其他所有离子最高浓度均在冬季，而最低值出现的季节有所不同. 需要注意的是，夏季SO_2的浓度是秋季的0.8倍，而SO_4^{2-}的浓度和SOR值分别是秋季的1.2倍和1.3倍，并且，冬季SO_2的浓度是春季的1.1倍，而SO_4^{2-}的浓度和SOR值则分别是春季的2.5倍和1.7倍. SO_2和SO_4^{2-}的季节差异反映了冬夏季较强的二次生成过程. 夏季较高的太阳辐射、温度和较高的O_3浓度（如表1）有利于SO_2通过光化学反应（SO_2与·OH的反应）生成硫酸盐，而冬季较高的湿度（如表1）则有利于SO_2通过液相反应生成硫酸盐[16,24,26,30].

Cl^-、NO_3^-、NH_4^+和K^+的季节变化趋势与$PM_{2.5}$一致（如表1）. NO_3^-的季节浓度均值变化幅度最大（最高值为最低值的5.2倍），明显高于其前体物NO_2的变化幅度（2.6倍），因此，NO_3^-的季节变化可能主要是由气象要素的变化引起，而不是污染物排放量的差异所引起的，例如，高温下由于NH_4NO_3的挥发性导致夏季NO_3^-的浓度较低[24,46]. 不同季节Cl^-的变化幅度相对较大（最高值为最低值的4.3倍），燃煤源是Cl^-重要的排放源[47]，由于新乡市冬季采暖污染物的排放量相对较大[48,49]，因此污染物排放和气象条件可能是影响Cl^-的季节变化的主要原因. 同样，NH_4^+和K^+的季节浓度变化较大，最高值分别为最低值的3.6倍和4.0倍. 有研究表明，NH_3的排放主要来自于氮肥利用和畜禽养殖[47,50]，在春夏季浓度较高，但夏季由于高温和频繁降水导致颗粒物中NH_4^+的浓度较低. 冬季大量排放的酸性气体（SO_2和NO_2等）更有利于NH_3向NH_4^+的转化，促进了颗粒相NH_4^+的生成[24]. 同时，有研究表明，非农业氨的排放是大气中NH_3的重要来源，例如有学者认为大气中燃烧排放的NH_3被严重低估了[51]，在城市地区，机动车、工业源及燃料燃烧等非农业源同样是大气NH_3的重要贡献源[52,53]，在早高峰时期机动车对NH_3的贡献率达40%[54]. 本研究中的观测站点位于新乡市中心城区，因此，本地区大气NH_3浓度的季节变化同样受到非农业氨排放的影响. 以上因素共同导致了新乡市$PM_{2.5}$中NH_4^+浓度冬季高夏季低的季节变化特征. K^+是生物质和燃煤源的示踪物，冬季采暖及不利的气象条件导致了K^+浓度最高，$\rho(K^+)$为(0.72±0.31) μg·m^{-3}，与本地区2017~2018年冬季相比$\rho(K^+)$[(1.9±1.1) μg·m^{-3}][26]，其浓度下降了62.1%. 新乡市作为“2+26”传输通道城市，近年来散煤及“散乱污”企业治理、生物质燃烧的严格管控使得本地区冬季K^+浓度大幅下降[31]. 与其他元素不同，Ca^{2+}浓度最高值出现在春季$\rho(Ca^{2+})$[(0.61±0.30) μg·m^{-3}]，其作为扬尘源的示踪组分[31,38,55,56]，春季主要受到来自于内蒙古、新疆等西北地区沙尘的影响[26]，导致其春季浓度较高.

2.2 阴阳离子平衡、离子组分存在形式及SNA来源特征

图2为观测期间$PM_{2.5}$中阴离子当量（AE）与阳离子当量（CE）散点图. 从中可知，4个季节中AE与CE之间存在较强的相关性（R^2>0.90），说明NO_3^-、NH_4^+、SO_4^{2-}、Cl^-、Ca^{2+}、K^+、Na^+和Mg^{2+}是$PM_{2.5}$中的主要离子组分[24,29]. AE/CE年均值（即图2中年均值回归曲线的斜率）为0.91，说明了新乡市$PM_{2.5}$总体上呈现弱碱性. 此外，不同污染程度[57]，不同粒径[58]，不同季节[24]均能影响$PM_{2.5}$的酸碱性. 如图2所示，秋季AE/CE的值（1.01）接近1.0，冬季（0.95）、春季（0.88）和夏季（0.84）都<1.0，因此秋季气溶胶呈现偏中性或弱酸性（需要注意的是，$PM_{2.5}$中少量的CO_3^{2-}、HCO_3^-等离子本研究并未考虑在内）. 春夏季AE/CE的值较低，可能与气温较高且农业活动频繁导致大气中较高的NH_3排放有关. 另外，$PM_{2.5}$中还有些未监测的阴离子（如CO_3^{2-}、HCO_3^-和$C_2O_4^{2-}$）也可能是导致其AE/CE的值较低的原因[24].

不同区域之间由于其污染演变特征的差异，导致颗粒物中二次离子组分的结合方式有所差别. 富NH_4^+条件下，SNA主要以$(NH_4)_2SO_4$、NH_4NO_3和NH_4Cl形式存在；在NH_4^+浓度不足的条件下，NH_3首先与H_2SO_4结合形成非挥发性的NH_4HSO_4或$(NH_4)_2SO_4$，多余的NH_3再进一步中和HNO_3或HCl，形成具有挥发性的NH_4NO_3和NH_4Cl[24]. 如图3(a)所示，不同季节[NH_4^+]与[SO_4^{2-}]相关性有所不同（决定系数R^2为0.532~0.830），回归方程的斜率都>2.0，说明了有足量的NH_4^+中和SO_4^{2-}，二者的存在形式为$(NH_4)_2SO_4$. 从图3(b)可以看出，4个季节[NH_4^+]与2[SO_4^{2-}]+[NO_3^-]的相关性更高（R^2为0.893~0.963），除了秋季以外，回归方程的斜率均高于1.0，说明了春、夏和冬季$(NH_4)_2SO_4$和NH_4NO_3是WSIIs的主要存在形式. 而在秋季，过量的NO_3^-可能以HNO_3或者KNO_3、$Ca(NO_3)_2$和$Mg(NO_3)_2$等形式存在. 同样，在图3(c)中，春季和冬季[NH_4^+]和2[SO_4^{2-}]+[NO_3^-]+[Cl^-]回归曲线的斜率均<1.0，主要是由于缺少足够的阳离子中和阴离子. 对比图3中春季和秋季的回归曲线的相关性，春秋季过量的Cl^-可能以KCl、$MgCl_2$和$CaCl_2$的形式存在. 综

表 1　新乡市 $PM_{2.5}$ 及其离子组分、气态污染物和气象参数季节分布特征 1)

Table 1　Seasonal variation in $PM_{2.5}$, meteorological parameters, gaseous pollutants, and WSIIs at Xinxiang

参数	冬季	春季	夏季	秋季	年均值
T/℃	1.10±2.89	16.84±5.80	26.76±3.67	14.47±5.33	14.78±10.26
RH/%	76.83±23.83	63.89±22.45	87.97±16.28	69.33±22.25	74.60±23.20
WS/m·s^{-1}	2.58±1.70	2.62±1.86	1.68±1.20	1.88±1.52	2.19±1.64
降水量/mm	17.20	8.60	349.30	28.30	403.40
$\rho(O_3)$/μg·m^{-3}	34.18±31.03	82.43±48.59	97.27±46.06	58.58±44.34	68.02±49.25
$\rho(SO_2)$/μg·m^{-3}	11.90±5.57	11.23±4.54	6.61±1.50	8.70±3.08	9.67±4.53
$\rho(NO_2)$/μg·m^{-3}	37.65±16.07	29.46±19.10	14.69±9.56	33.74±19.42	28.99±18.66
$\rho(CO)$/mg·m^{-3}	1.36±0.89	0.69±0.96	0.79±1.83	0.81±0.51	0.91±1.18
$\rho(PM_{2.5})$/μg·m^{-3}	108.19±50.04	42.20±20.45	22.15±10.64	57.39±34.10	58.87±46.20
$\rho(Ca^{2+})$/μg·m^{-3}	0.42±0.26	0.61±0.30	0.40±0.32	0.42±0.24	0.46±0.29
$\rho(Mg^{2+})$/μg·m^{-3}	0.06±0.05	0.06±0.06	0.03±0.06	0.06±0.04	0.05±0.05
$\rho(K^+)$/μg·m^{-3}	0.72±0.31	0.35±0.21	0.18±0.14	0.56±0.36	0.46±0.34
$\rho(NH_4^+)$/μg·m^{-3}	19.22±7.88	8.08±4.07	5.30±2.58	9.06±4.81	10.47±7.46
$\rho(Na^+)$/μg·m^{-3}	0.60±0.21	0.44±0.33	0.29±0.27	0.23±0.17	0.39±0.29
$\rho(SO_4^{2-})$/μg·m^{-3}	16.11±9.44	6.53±3.61	6.54±3.24	5.60±3.39	8.79±7.13
$\rho(NO_3^-)$/μg·m^{-3}	32.81±14.94	13.29±9.30	6.27±5.19	21.11±14.36	18.53±15.37
$\rho(Cl^-)$/μg·m^{-3}	2.77±1.32	0.93±0.80	0.65±0.47	1.03±0.81	1.36±1.24
ρ(SUM)/μg·m^{-3}	72.15±31.44	30.26±16.28	19.62±9.82	38.06±22.13	40.41±29.40
NO_2/SO_2（质量浓度比）	3.16	2.62	2.22	3.88	3.00
NO_3^-/SO_4^{2-}（质量浓度比）	2.04	2.04	0.96	3.77	2.11
$[NH_4^+]/[NO_3^-]$（量比）	2.02	2.09	2.91	1.48	1.95
SOR	0.47	0.28	0.40	0.30	0.38
NOR	0.39	0.25	0.24	0.32	0.32

1)SUM 表示 8 种水溶性无机离子浓度总和

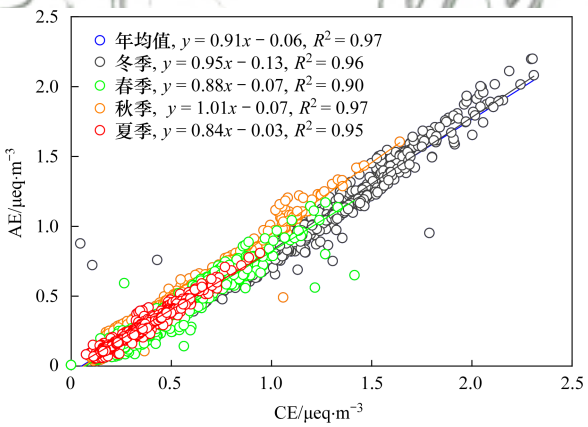


图 2　$PM_{2.5}$ 中水溶性无机离子电荷平衡关系

Fig. 2　Charge balance between anion equivalents and cation equivalents in $PM_{2.5}$

上，冬季和夏季离子组分的存在形式主要是 $(NH_4)_2SO_4$、NH_4NO_3 和 NH_4Cl，秋季离子的存在形式可能是 $(NH_4)_2SO_4$、NH_4NO_3、HNO_3、KNO_3、$Ca(NO_3)_2$、$Mg(NO_3)_2$、KCl、$MgCl_2$ 和 $CaCl_2$ 等，春季离子的存在形式可能为 $(NH_4)_2SO_4$、NH_4NO_3、HNO_3、KCl、$MgCl_2$ 和 $CaCl_2$ 等.

根据清单的研究结果，SO_4^{2-} 的前体物 SO_2 主要来自于燃煤的排放（固定源），城市地区 NO_x（NO_3^- 的前体物）主要来自于机动车的排放[47,49]，NO_3^-/SO_4^{2-} 值常用来评估移动源和固定源对颗粒物中 SNA 生成的相对贡献[24,58]. 本研究中年均 NO_3^-/SO_4^{2-} 为 2.11，高于本地区 2015 年冬季（0.81）[25]、2016 年冬季（0.99）[25]、2017 年（1.21）[59]、2017~2018 年（1.46）[26] 和 2019 年冬季（1.68）[42]，说明移动源对颗粒物中 SNA 的贡献越来越突出. NO_3^-/SO_4^{2-} 呈现逐年增加的趋势，与已有研究的结果一致[24,58]. 这与近年来机动车保有量的快速增加以及大气污染防治行动（重污染天气应急减排、单双号限行、“散乱污”治理和划定“禁煤区”等）减少了 SO_2 的排放有关. 根据 MEIC 清单的研究结果，相比 2010 年，2017 年中国及河南省 SO_2 的排放量分别下降了 62.2% 和 76.2%（http://meicmodel.org.cn），SO_2 排放量的逐年降低导致了颗粒物中 SO_4^{2-} 浓度的下降. 研究区域新乡市机动车的保有量由 2016 年的 84 万辆增加到 2019 年 115 万辆[60]，增加了大气中 NO_x 的排放量. 此外，气象条件可以通过影响气态污染物的化学转化过程进而改变 NO_3^-/SO_4^{2-}，导致其比值呈现出明显的季节变化特征. 如表 1 所示，NO_3^-/SO_4^{2-} 为秋季最高（3.77），夏季最低（0.96），其变化幅度远高于 NO_2/SO_2（2.22~3.88），因此，不同季节 NO_3^-

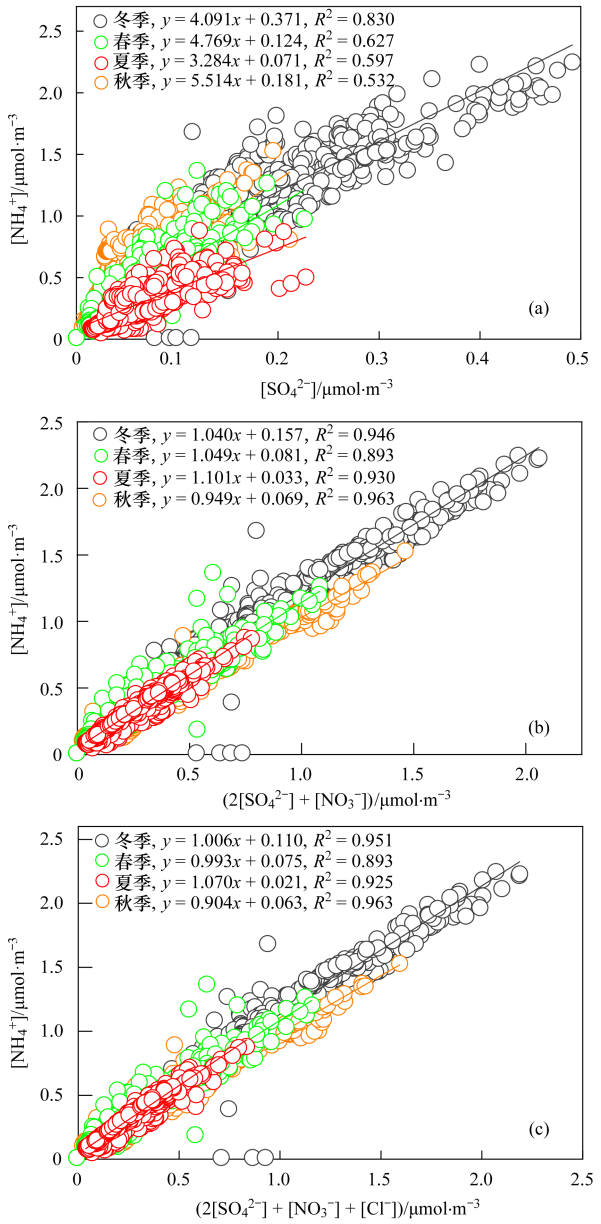


图 3 [NH_4^+]与[SO_4^{2-}]、2[SO_4^{2-}]+[NO_3^-]和2[SO_4^{2-}]+[NO_3^-]+[Cl^-]之间的相关性

Fig. 3 Scatter plots showing linear regressions between certain anions and cations

/ SO_4^{2-}的值与二次无机气溶胶的形成过程有关. 冬季、春季、夏季和秋季的SOR分别为0.47、0.28、0.40和0.30, NOR分别为0.39、0.25、0.24和0.32(表1). NO_3^-/ SO_4^{2-}夏季最低主要是由于夏季较高的SOR和较低的NOR. 冬季由于较高的湿度促进了气态污染的非均相化学反应,导致冬季SOR和NOR最高. 秋季NO_2/ SO_2值最高(3.88),为夏季的1.75倍,而秋季SOR为夏季的0.75倍,NOR为夏季的1.33倍,因此秋季NO_3^-/SO_4^{2-}远高于夏季.

有研究指出[NH_4^+]/[NO_3^-]可以用来区分大气中氮主要来自于农业源还是机动车和工业源[61]. 当[NH_4^+]/[NO_3^-]<1.0时,说明机动车和工业源对于大气NH_3排放比农业源(畜禽养殖和氮肥利用)更重要,反之亦然. 根据MEIC清单的研究结果,2017年全国农业源NH_3排放量为961.2万t,工业和交通源排放量为34.8万t(http://meicmodel.org.cn). 本研究中,年均[NH_4^+]/[NO_3^-]值为1.95,说明农业源是大气氮的主要贡献者. 此外,[NH_4^+]/[NO_3^-]值具有明显的季节变化特征. 如表1所示,[NH_4^+]/[NO_3^-]值最高出现在夏季(2.91),其次为春季(2.09)、冬季(2.02)和秋季(1.48). 夏季较高的NH_3排放量可能是导致[NH_4^+]/[NO_3^-]值最高的原因之一,例如河南省2020年7月NH_3的排放量是1、4和10月(对应本研究的月份)的1.28~1.82倍(http://meicmodel.org.cn).

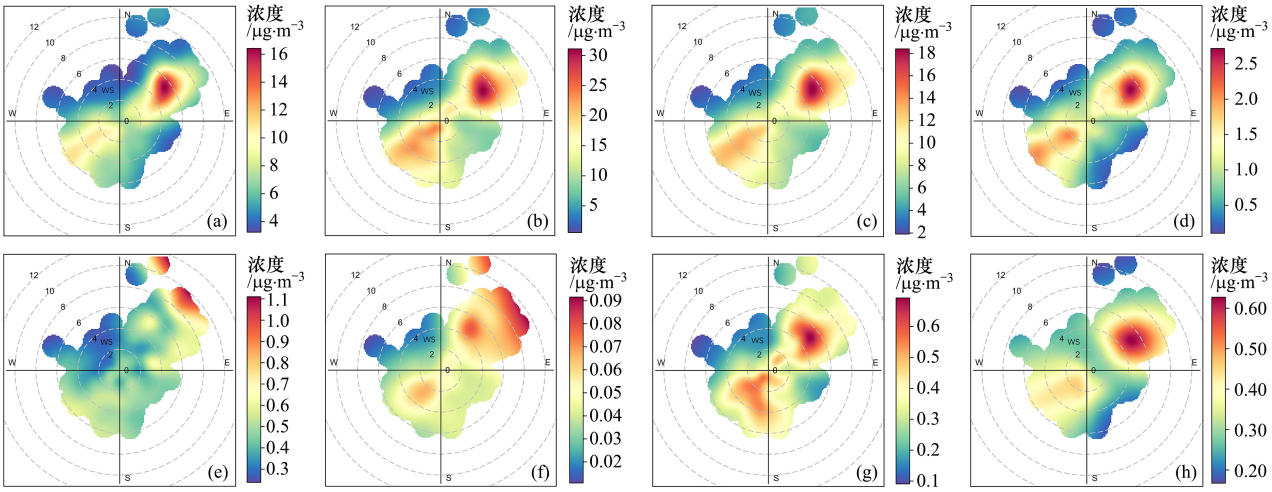
2.3 气象影响

2.3.1 风速风向影响

图4展示了新乡市大气$PM_{2.5}$中WSIIs与当地风速风向的关系,由图4(a)~4(c)可知,SNA在受东北风和西南风的影响时浓度较大. 当盛行东北风且风速为4~7 m·s^{-1}时,SNA的浓度最高,说明其受到东北方向污染物传输的影响. 当风速<2 m·s^{-1}时,SO_4^{2-}的浓度相对较小,说明其受观测点周边区域影响相对较小,可能是由于观测站点位于市中心位置,受本地区燃煤源排放的SO_2的影响较小. Cl^-作为燃煤源的示踪组分,其受风速风向的影响与SO_4^{2-}类似,主要受到东北和西南方向污染物传输的影响. 有研究表明,扬尘中的过渡金属能够促进SO_2向SO_4^{2-}的转化[13,15,27,62], Ca^{2+}和Mg^{2+}作为扬尘源的示踪组分[26,31,38],在盛行东北、西南风且风速较大时(>8 m·s^{-1}),其浓度较高图4(e)~4(f). 来自于东北方向的高速气流夹带着沙尘和污染物在传输过程中促进了气态前体物SO_2向颗粒态SO_4^{2-}的转化,进一步证实了在东北风影响下Ca^{2+}和Mg^{2+}的浓度最高. 与SO_4^{2-}不同,在风速<2 m·s^{-1}时,NO_3^-的浓度出现相对高值,且在西北风、西南风和东南风影响下,NO_3^-的浓度与风速成反比,说明了本地排放和积累可能是导致其浓度较高的原因之一. 站点周边为城市主干道,机动车排放NO_x是导致其浓度较高的原因之一. 如图4(g)所示,在4~6 m·s^{-1}东北风和4~6 m·s^{-1}西南风的影响下K^+的浓度较高,该方向生物质及化石燃料燃烧可能是该地区K^+的重要来源. Na^+同样受到东北及西南方向污染物传输的影响图4(h),本研究中,Cl^-和Na^+的比值约为3.5,远高于海水中二者的比值(1.8)[21],说明海洋气溶胶并不是本地区Cl^-和Na^+的主要来源,扬尘及化石燃料燃烧可能是本地区Na^+的重要来源.

2.3.2 相对湿度和温度的影响

不同气象条件(例如温度和湿度)能够显著影响气态污染物的转化过程,从而改变颗粒物中SNA的



(a) SO_4^{2-}，(b) NO_3^-，(c) NH_4^+，(d) Cl^-，(e) Ca^{2+}，(f) Mg^{2+}，(g) K^+，(h) Na^+；风速单位：$m \cdot s^{-1}$

图 4　不同离子组分风玫瑰分析

Fig. 4　Wind rose analysis for eight inorganic water-soluble ions

浓度[2,3,16,27]. 图 5 展示了不同湿度和温度下 WSIIs 的浓度演变特征. SNA(SO_4^{2-}、NO_3^- 和 NH_4^+)的浓度与 RH 和 T 具有明显的相关性，当温度低于 16℃时，SNA 的浓度随着 RH 的增加而增加图 5(e)~5(g)，说明了较高的相对湿度促进了气态前体物(如 SO_2 和 NO_2 等)向颗粒物的转化. 然而，当温度高于 20℃时，随着 RH 的增大，SNA 的浓度有减小的趋势. 这可能是由于以下原因引起的：①温度较高时，人为源污染物的排放减少及有利的扩散条件导致了气态前体物的浓度较低，限制了 SNA 的生成；②当湿度较高时，降水较多，能够有效地清除颗粒物，导致 SNA 的浓度较低；③高温条件下易挥发的 NH_4NO_3 和 NH_4Cl 将更多地向气态转变，从而抵消了高湿条件下 SNA 的生成. 如图 5(a)和 5(b)所示，Ca^{2+}、Mg^{2+} 与 T 和 RH 的关系呈现出相似的变化特征，当 RH<70% 时，其浓度较高；当 RH>70% 时，浓度较低. Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 是扬尘源的示踪组分，在高湿条件下，降水的冲刷及颗粒的湿沉降导致其浓度较低[21,26]. Cl^- 和 K^+ 主要来自于燃煤和生物质燃烧，当 T<8℃时，二者的浓度较高，这可能与冬季燃煤和生物质燃烧的排放有关[26]. 另外，与 Cl^- 不同，K^+ 在温度较高时(T>20℃)仍然显示出比较高的浓度特征，说明生物质燃烧在不同季节均会对颗粒物的离子浓度产生影响.

为了进一步探究气象要素对于 SNA 生成的影响，计算了不同季节及不同气象条件下 SOR 和 NOR 值，结果如图 6 所示. 图 6(a)中 SOR 有两部分高值区

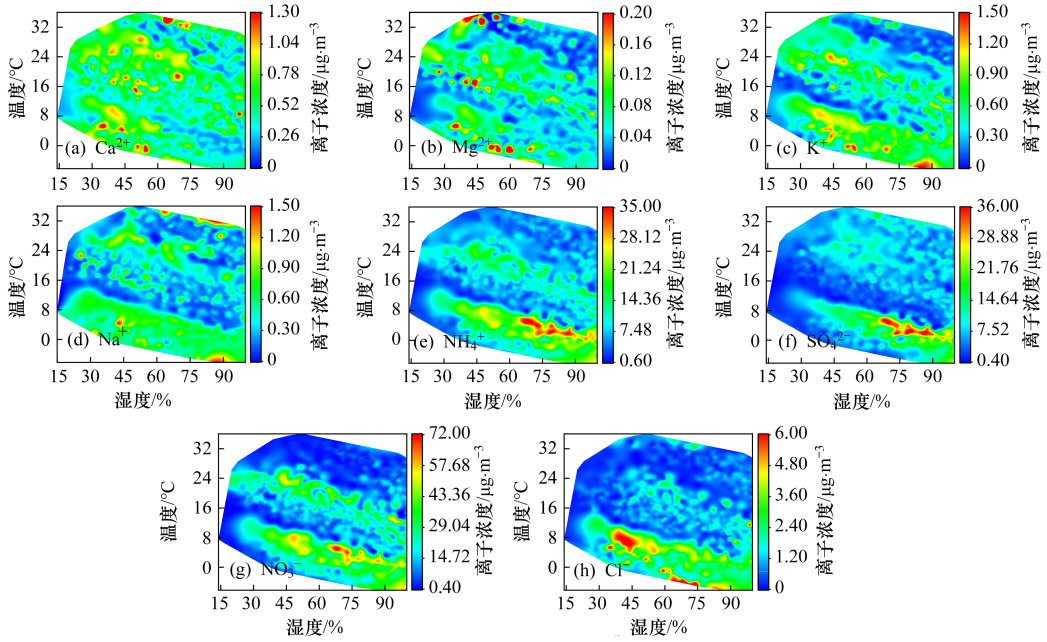


图 5　不同离子组分与相对湿度和温度的关系

Fig. 5　RH and T dependence of mass concentration of WSIIs

域，一个位于低温高湿的气象条件下（T<8℃，RH>60%），与 SO_4^{2-} 高浓度区域相吻合图5(f)；另一个为 T>24℃且RH>45%时，SOR值同样较高．有研究表明，不同的气象条件将会影响气态 SO_2 向颗粒态 SO_4^{2-} 的转化过程[27,63]．低温高湿条件下，有利于气态 SO_2 在颗粒物表面的溶解，从而通过非均相化学反应促进二次硫酸盐的形成．同时，在低温的气象条件下，气态 SO_2 的浓度较高，冬季 $\rho(SO_2)$ 为（11.90±5.57）μg·m^{-3}，（表1），进一步促进了非均相反应的进行，导致了冬季SOR值最高．另外，SO_4^{2-} 还可以通过气态 SO_2 在·OH和 O_3 条件下发生均相化学反应生成[64]，该反应与温度的变化密切相关[13,27,65]，由于·OH氧化气态 SO_2 转化为硫酸盐的反应与温度呈正相关，因此，夏季SOR值同样较高，而春秋季较低图6(c)．如图6(b)所示，较高的NOR值出现在低温高湿的环境中（T<8℃且RH>60%），可能与硝酸盐的液相氧化过程有关[63]．与SOR不同，高温条件下（T>24℃），NOR并没有表现出高值特征，可能的原因是高温条件下易挥发的 NH_4NO_3 分解抵消了气态 NO_2 气相氧化过程．

2.4 水溶性离子组分来源追踪

2.4.1 PMF来源解析

$PM_{2.5}$ 中WSIIs不同源贡献和不同组分的质量浓度及其在各个因子中的占比如图7和图8所示，从中可知：因子1中 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 载荷较大，分别占其总浓度的86.7%和60.6%，其通常被认为是来自于建筑扬尘、土壤扬尘、道路扬尘及远距离传输的沙尘[20,26]，因此该因子被识别为扬尘源．由于沙尘中同样含有高负载的 Ca^{2+} 和 Mg^{2+}，因此本研究中扬尘源包括了远距离传输的沙尘．因子2为燃煤源，该类源的特征组分为高负载的 Cl^-（86.7%），Cl^- 通常被认为是燃煤源的示踪组分[44]，因此该类排放源被识别为燃煤源．因子3中载荷较高的组分是 SO_4^{2-}（80.1%）和 NH_4^+（43.6%），气态前体物 SO_2 和 NH_3 在大气中发生化学反应生成硫酸盐，因此，因子3被判定为二次硫酸盐．因子4中的特征组分为 NO_3^-（73.8%）、NH_4^+（43.5%）和 K^+（57.1%），气态前体物 NO_x 可与大气中的 NH_3 反应生成 NH_4NO_3，K^+ 则主要在生物质燃烧过程中产生，因此，因子4被定义为二次硝酸盐和生物质源．

图8为不同季节及全年不同污染源类的占比图，由图可知，扬尘源、燃煤源、二次硫酸盐及二次硝酸盐和生物质源对WSIIs年均贡献率分别为5.0%、11.1%、35.7%和48.2%．二次硝酸盐和生物质源对WSIIs的贡献最大，其次为二次硫酸盐，有学者对成都[43]和沈阳[66]等城市 $PM_{2.5}$ 中离子的来源进行了研究，证实了二次硝酸盐的占比最高，该结论与近年来硝酸盐的占比远超过硫酸盐相一致（2.1节）．不同季节WSIIs来源有所区别［图8(a)~8(d)］，二次硫酸盐在夏季的贡献率（57.6%）高于其他季节（17.9%~40.4%），这与夏季硫酸盐的快速生成有关（2.2节和2.3节）．燃煤源对WSIIs的贡献，冬季最高（13.1%），与采暖季较大的煤炭燃烧量有关[10,26,31]．与其他源的季节变化特征不同，扬尘源在春季的占比最高（9.9%），明显高于其他季节（2.3%~9.5%），与春季较高的风速［（2.62±1.86）m·s^{-1}，表1］有关．另外，观测

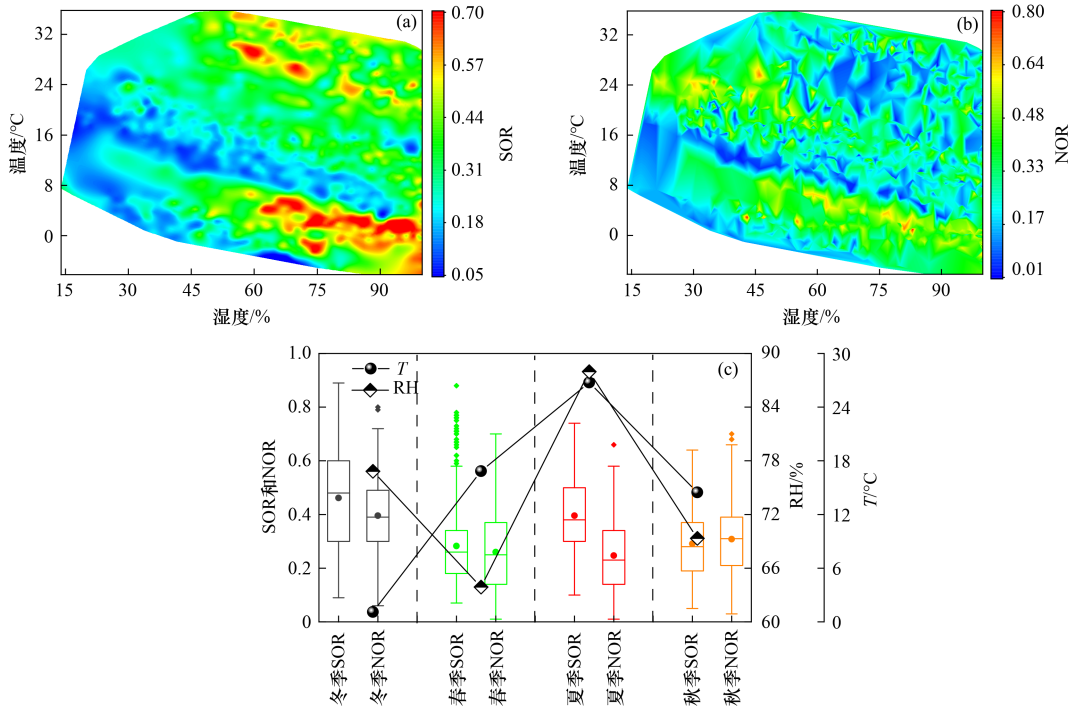
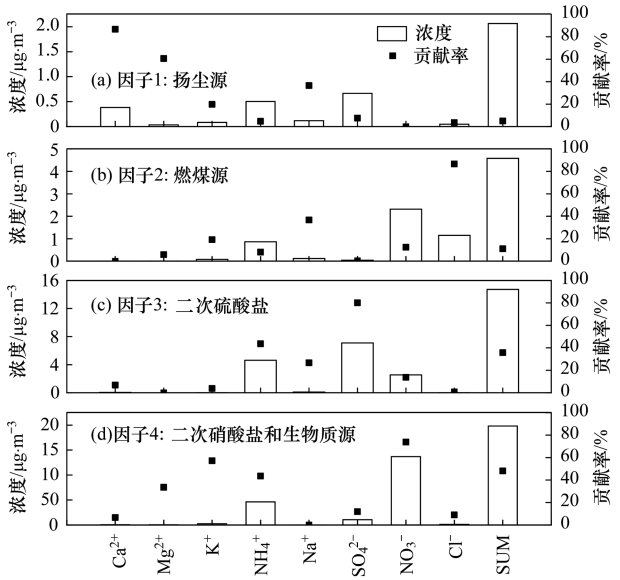


图6 SOR、NOR与温度和相对湿度的关系及不同季节的变化特征

Fig. 6 Relationship between SOR and NOR with temperature and relative humidity and the variation characteristics in different seasons



SUM 表示 8 种水溶性无机离子之和

图 7　整个观测期间 $PM_{2.5}$ 中水溶性无机离子 PMF 源解析成分谱

Fig. 7　PMF source profiles for WSIIs in $PM_{2.5}$ throughout the study period in Xinxiang

站点虽然位于我国东部，但春季依然能受到新疆和内蒙古等地区沙尘的影响[26,31].

2.4.2　气团轨迹分析

图 9 给出了整个观测期间气团后向轨迹聚类分析的结果，表明观测站点明显受到区域和长距离传输的气团的影响. 从中可知，有超过 34% 的气团(C2)来自于河北和河南省北部地区，该气团可能携带了大量的污染物(如颗粒物及其气态前体物)[67]，这些传输气团携带的颗粒物及其气态前体物在输送过程中形成的二次气溶胶抬高了受体点 $\rho(PM_{2.5})$(58.80 $\mu g \cdot m^{-3}$，图 9). 在该气团的影响下，SO_4^{2-} 的占比最高(22.5%)，高于其他气团(20.4%~21.7%). 来自于河南中西部地区的气团 C1 占该地区轨迹数的 28.9%，在该气团影响下，受体点 $PM_{2.5}$ 的浓度最高(72.58 $\mu g \cdot m^{-3}$)，表明经过河南省中西部地区(洛阳和郑州)的气团可能对该采样点的空气质量有较大的影响. 如图 9 所示，气团 C4 来自于江苏省并经过安徽省和河南省东南部，占轨迹总数的 16.26%，其 $\rho(PM_{2.5})$ 为(55.44 $\mu g \cdot m^{-3}$)，相对较高. 在所有气团中，$\rho(PM_{2.5})$ 最低的是气团 C3(13.08%，40.10 $\mu g \cdot m^{-3}$)，该气团来源于空气质量较为干净的蒙古地区，为高空高速气流，同时较大的风速有利于污染物的扩散，导致其 $PM_{2.5}$ 浓度最低. 气团 C5(7.18%)来自于我国内蒙古呼伦贝尔大草原并经过辽宁山东到达受体点，该气团移动速度相对较快，为研究区域带来了相对干净的空气，$\rho(PM_{2.5})$ 为 42.64 $\mu g \cdot m^{-3}$.

不同气团影响下，$PM_{2.5}$ 中 WSIIs 的组分特征和来源贡献有所不同. 如图 9 所示，来自于观测站点周边区域的低空低速气团(气团 C1 和气团 C2)中二次硫酸盐以及二次硝酸盐和生物质源对 WSIIs 的贡献较大，分别为 36.2%、48.4%(气团 C1)和 39.2%、45.5%(气团 C2)，同时，WSIIs 中 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 占比相对较高，21.7%、45.8%(气团 C1)和 22.5%、45.4%(气团 C2)，该结论与 Huang 等[20]对京津冀地区的研究结果一致. 这主要归因于周围重污染区域排放的大量气态前体物(NH_3、NO_x 和 SO_2 等)在静稳的气象条件下通过复杂的大气化学反应生成了较多的 SNA，显著增加的 SNA 提高了下风向受体点的 $PM_{2.5}$ 浓度[68]. 另外，气团 C3 来自于远距离的传输，携带了大量的扬尘，其扬尘源对采样点 $PM_{2.5}$ 中 WSIIs 浓度的贡献率为 10.5%，明显高于其他气团中扬尘对 WSIIs 的贡献率(4.3%~5.9%)，同时，WSIIs 中 Ca^{2+}(1.8%)和 Mg^{2+}(0.22%)的占比也显著高于其他气团中的占比(Ca^{2+}:1.0%~1.1%；Mg^{2+}:0.11%~0.18%).

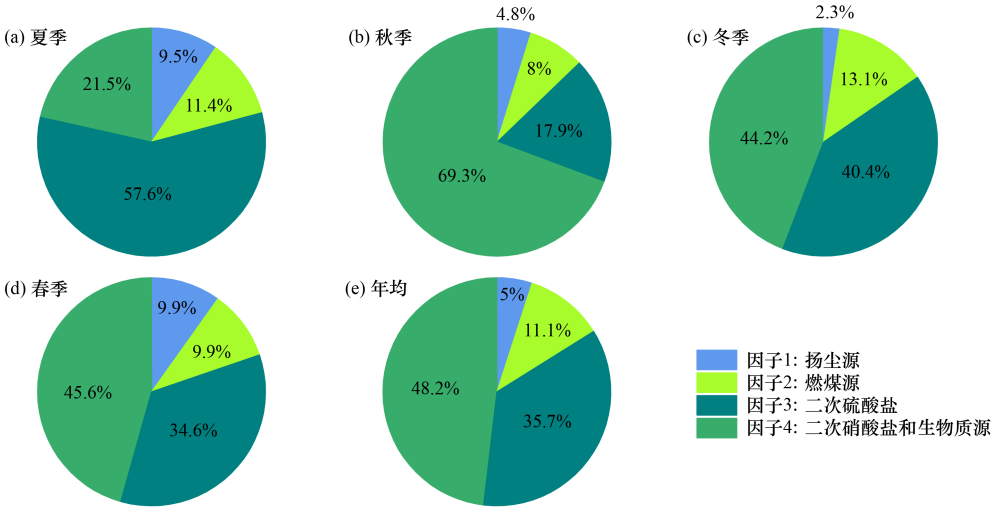


图 8　水溶性无机离子不同源的质量贡献

Fig. 8　Mass contribution from identified sources for WSIIs in Xinxiang

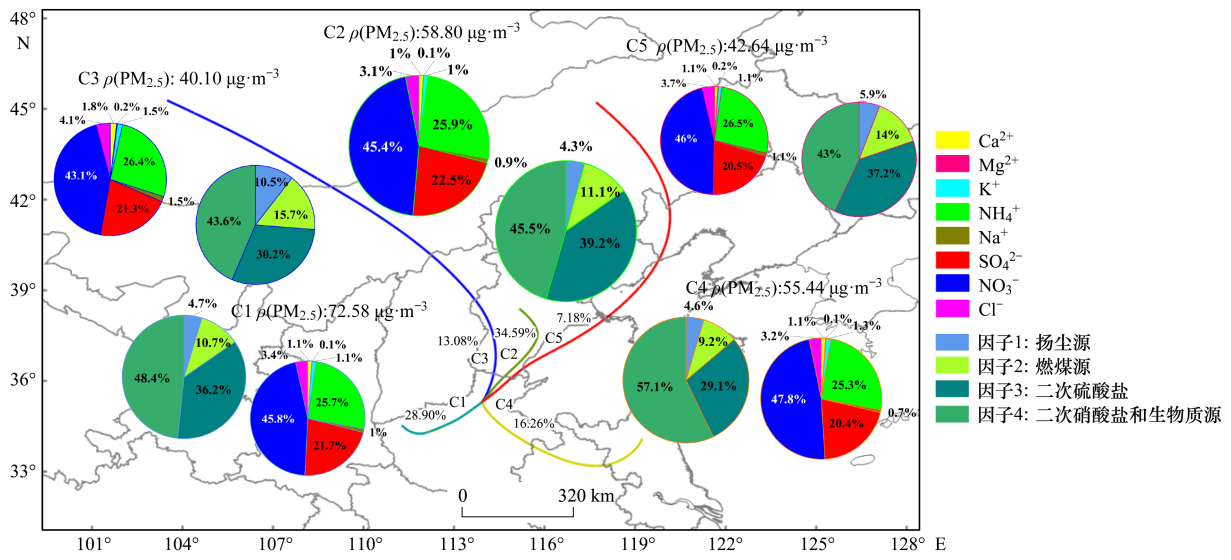


图 9 整个观测期间 48 h 后向气团轨迹分析及相应气团下水溶性无机离子的占比和来源

Fig. 9 The 48 h backward trajectories of air masses and the corresponding average source contributions and component ratios of WSIIs during the entire study period

3 结论

(1)新乡市 2022 年 ρ(TWSIIs)为(40.41±29.40) $\mu g \cdot m^{-3}$,SNA(NO_3^-、NH_4^+ 和 SO_4^{2-})是主要的离子组分. 年均 NO_3^-/SO_4^{2-} 为 2.11,且呈现逐年增加的趋势,移动源是 SNA 的重要贡献者. 年均[NH_4^+]/[NO_3^-]为 1.95,说明农业源是大气中氮的重要贡献者.

(2)SO_4^{2-} 主要通过两种方式生成,高温条件下(T>24℃)气态 SO_2 更容易通过光化学反应生成 SO_4^{2-};而低温高湿条件下(T<8℃,RH>60%),SO_2 则通过液相化学反应生成二次硫酸盐. 同时,低温高湿也促进了 NO_2 通过液相化学反应转化成硝酸盐颗粒.

(3)不同源类的季节变化特征较为明显,冬季燃煤源、春季扬尘源和夏季二次硫酸盐的贡献较为突出. 来自于观测站点周边区域(河北省以及河南省北部和中西部地区)的低空低速气团所对应的二次硫酸盐以及二次硝酸盐和生物质源对 WSIIs 的贡献较大;来自于西北方向气团对应较高 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 占比和较大的扬尘源贡献.

参考文献:

[1] Harmsen M J H M, Van Dorst P, Van Vuuren D P, *et al*. Co-benefits of black carbon mitigation for climate and air quality[J]. Climatic Change, 2020, **163**(3): 1519-1538.

[2] Zhang F, Wang Y, Peng J F, *et al*. An unexpected catalyst dominates formation and radiative forcing of regional haze[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2020, **117**(8): 3960-3966.

[3] Li M G, Wang L L, Liu J D, *et al*. Exploring the regional pollution characteristics and meteorological formation mechanism of $PM_{2.5}$ in North China during 2013-2017[J]. Environment International, 2020, **134**, doi: 10.1016/j.envint.2019.105283.

[4] Xu Y F, Han Y Q, Wang Y W, *et al*. Ambient air pollution and atherosclerosis: a potential mediating role of Sphingolipids[J]. Arteriosclerosis, Thrombosis, and Vascular Biology, 2022, **42**(7): 906-918.

[5] Xue T, Tong M K, Li J J H, *et al*. Estimation of stillbirths attributable to ambient fine particles in 137 countries[J]. Nature Communications, 2022, **13**, doi: 10.1038/s41467-022-34250-4.

[6] Liu C, Chen R J, Sera F, *et al*. Ambient particulate air pollution and daily mortality in 652 cities[J]. New England Journal of Medicine, 2019, **381**(8): 705-715.

[7] Fan H, Zhao C F, Yang Y K. A comprehensive analysis of the spatio-temporal variation of urban air pollution in China during 2014-2018[J]. Atmospheric Environment, 2020, **220**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2019.117066.

[8] 刘桓嘉,贾梦珂,刘永丽,等. 河南省 2015-2019 年大气污染时空变化特征研究[J]. 环境科学学报, 2022, **42**(2): 271-282.
Liu H J, Jia M K, Liu Y L, *et al*. Spatial and temporal variation analysis of air pollution in Henan province during 2015-2019[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2022, **42**(2): 271-282.

[9] Li W J, Shao L Y, Wang W H, *et al*. Air quality improvement in response to intensified control strategies in Beijing during 2013-2019[J]. Science of the Total Environment, 2020, **744**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140776.

[10] Liu H J, Jia M K, Tao J, *et al*. Elucidating pollution characteristics, temporal variation and source origins of carbonaceous species in Xinxiang, a heavily polluted city in North China[J]. Atmospheric Environment, 2023, **298**, doi: 10.1016/J.ATMOSENV.2023.119626.

[11] Kong L W, Feng M, Liu Y F, *et al*. Elucidating the pollution characteristics of nitrate, sulfate and ammonium in $PM_{2.5}$ in Chengdu, southwest China, based on 3-year measurements[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020, **20**(19): 11181-11199.

[12] Sun Y L, Chen C, Zhang Y J, *et al*. Rapid formation and evolution of an extreme haze episode in Northern China during winter 2015[J]. Scientific Reports, 2016, **6**(1), doi: 10.1038/srep27151.

[13] Wang G H, Zhang R Y, Gomez M E, *et al*. Persistent sulfate formation from London Fog to Chinese haze[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2016, **113**(48): 13630-13635.

[14] 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 W 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.

[15] Cheng Y F, Zheng G J, Wei C, *et al*. Reactive nitrogen chemistry in aerosol water as a source of sulfate during haze events in China[J]. Science Advances, 2016, **2**(12), doi: 10.1126/sciadv.1601530.

[16] Liu T Y, Clegg S L, Abbatt J P D. Fast oxidation of sulfur dioxide by hydrogen peroxide in deliquesced aerosol particles [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2020, **117**(3): 1354-1359.

[17] 李佳琪，张军科，董贵明，等.《大气污染防治行动计划》后期成都大气 $PM_{2.5}$ 中水溶性无机离子特征[J]. 环境科学，2021，**42**(12)：5616-5623.
Li J Q, Zhang J K, Dong G M, *et al*. Characterization of water-soluble inorganic ions in atmospheric $PM_{2.5}$ in Chengdu during the later stage of the air pollution prevention and control action plan [J]. Environmental Science, 2021, **42**(12): 5616-5623.

[18] 于谨铖，李建熹，苏枞枞，等. 沈阳市大气 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子的季节变化特征[J]. 环境化学，2021，**40**(12)：3733-3742.
Yu J C, Li J X, Su Z Z, *et al*. Seasonal variation of water soluble ions in $PM_{2.5}$ in Shenyang[J]. Environmental Chemistry, 2021, **40**(12): 3733-3742.

[19] 梁越，姜红，李弘生，等. 中部城市秋冬季 $PM_{2.5}$ 水溶性离子的化学特征及来源[J]. 环境化学，2022，**41**(2)：470-481.
Liang Y, Jiang H, Li H S, *et al*. Chemical characteristics and sources of $PM_{2.5}$ and water-soluble ions in autumn and winter in central China [J]. Environmental Chemistry, 2022, **41**(2): 470-481.

[20] Huang X J, Liu Z R, Liu J Y, *et al*. Chemical characterization and source identification of $PM_{2.5}$ at multiple sites in the Beijing - Tianjin - Hebei region, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, **17**(21): 12941-12962.

[21] Zang L, Zhang Y, Zhu B, *et al*. Characteristics of water-soluble inorganic aerosol pollution and its meteorological response in Wuhan, Central China[J]. Atmospheric Pollution Research, 2021, **12**(3): 362-369.

[22] 方言，曹芳，范美益，等. 中国东海近海岛屿冬季与夏季气溶胶中水溶性离子化学组分特征及来源解析[J]. 环境科学，2020，**41**(3)：1025-1035.
Fang Y, Cao F, Fan M Y, *et al*. Chemical characteristics and source apportionment of water-soluble ions in atmosphere aerosols over the East China Sea Island during winter and summer [J]. Environmental Science, 2020, **41**(3): 1025-1035.

[23] Liu J, Wu D, Fan S J, *et al*. A one-year, on-line, multi-site observational study on water-soluble inorganic ions in $PM_{2.5}$ over the pearl river delta region, China [J]. Science of the Total Environment, 2017, **601-602**: 1720-1732.

[24] Qiao B Q, Chen Y, Tian M, *et al*. Characterization of water-soluble inorganic ions and their evolution processes during $PM_{2.5}$ pollution episodes in a small city in southwest China[J]. Science of the Total Environment, 2019, **650**: 2605-2613.

[25] 闫广轩，雷豪杰，张靖雯，等. 新乡冬季 $PM_{2.5}$ 中金属元素与水溶性离子年际变化及其来源解析[J]. 环境科学，2019，**40**(3)：1071-1081.
Yan G X, Lei H J, Zhang J W, *et al*. Interannual variation of metal elements and water-soluble ions in $PM_{2.5}$ during wintertime in Xinxiang and their source apportionment [J]. Environmental Science, 2019, **40**(3): 1071-1081.

[26] Liu H J, Tian H Z, Zhang K, *et al*. Seasonal variation, formation mechanisms and potential sources of $PM_{2.5}$ in two typical cities in the Central Plains Urban Agglomeration, China[J]. Science of the Total Environment, 2019, **657**: 657-670.

[27] Yang J R, Wang S B, Zhang R Q, *et al*. Elevated particle acidity enhanced the sulfate formation during the COVID-19 pandemic in Zhengzhou, China [J]. Environmental Pollution, 2022, **296**, doi: 10.1016/j.envpol.2021.118716.

[28] Li J H Y, Zhang Y L, Cao F, *et al*. Stable sulfur isotopes revealed a major role of transition-metal ion-catalyzed SO_2 oxidation in haze episodes[J]. Environmental Science & Technology, 2020, **54**(5): 2626-2634.

[29] 张俊美，陈仕霖，王乾恒，等. 郑州市大气 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子的污染特征及来源解析[J]. 环境科学，2023，**44**(2)：602-610.
Zhang J M, Chen S L, Wang Q H, *et al*. Pollution characteristics and sources of water-soluble ions in $PM_{2.5}$ in Zhengzhou city[J]. Environmental Science, 2023, **44**(2): 602-610.

[30] 李欢，唐贵谦，张军科，等. 2017～2018年北京大气 $PM_{2.5}$ 中水溶性无机离子特征[J]. 环境科学，2020，**41**(10)：4364-4373.
Li H, Tang G Q, Zhang J K, *et al*. Characteristics of water-soluble inorganic ions in $PM_{2.5}$ in Beijing during 2017-2018 [J]. Environmental Science, 2020, **41**(10): 4364-4373.

[31] 刘桓嘉，贾梦珂，刘永丽，等. 新乡市大气 $PM_{2.5}$ 载带金属元素季节分布、来源特征与健康风险[J]. 环境科学，2021，**42**(9)：4140-4150.
Liu H J, Jia M K, Liu Y L, *et al*. Seasonal variation, source identification, and health risk of $PM_{2.5}$-bound metals in Xinxiang [J]. Environmental Science, 2021, **42**(9): 4140-4150.

[32] Pei C L, Yang W Q, Zhang Y L, *et al*. Decrease in ambient volatile organic compounds during the COVID-19 lockdown period in the Pearl River Delta region, south China [J]. Science of the Total Environment, 2022, **823**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2022.153720.

[33] Gu Y, Liu B S, Dai Q L, *et al*. Multiply improved positive matrix factorization for source apportionment of volatile organic compounds during the COVID-19 shutdown in Tianjin, China [J]. Environment International, 2022, **158**, doi: 10.1016/j.envint.2021.106979.

[34] Wang J F, Ye J H, Zhang Q, *et al*. Aqueous production of secondary organic aerosol from fossil-fuel emissions in winter Beijing haze[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2021, **118**(8), doi: 10.1073/pnas.2022179118.

[35] Paatero P, Tapper U. Positive matrix factorization: a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values [J]. Environmetrics, 1994, **5**(2): 111-126.

[36] Dai Q L, Liu B S, Bi X H, *et al*. Dispersion normalized PMF provides insights into the significant changes in source contributions to $PM_{2.5}$ after the COVID-19 outbreak[J]. Environmental Science & Technology, 2020, **54**(16): 9917-9927.

[37] Paul S, Bari M A. Elucidating sources of VOCs in the capital region of New York State: implications to secondary transformation and public health exposure [J]. Chemosphere, 2022, **299**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2022.134407.

[38] Liu J W, Chen Y J, Cao H B, *et al*. Burden of typical diseases attributed to the sources of $PM_{2.5}$-bound toxic metals in Beijing: an integrated approach to source apportionment and QALYs [J]. Environment International, 2019, **131**, doi: 10.1016/j.envint.2019.105041.

[39] Shao P, An J L, Xin J Y, *et al*. Source apportionment of VOCs and

the contribution to photochemical ozone formation during summer in the typical industrial area in the Yangtze River Delta, China[J]. Atmospheric Research, 2016, **176-177**: 64-74.

[40] 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.

[41] Wang Y Q, Zhang X Y, Draxler R R. TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data [J]. Environmental Modelling & Software, 2009, **24**(8): 938-939.

[42] Liu H J, Jia M K, You K, *et al*. Elucidating the chemical compositions and source apportionment of multi-size atmospheric particulate (PM_{10}, $PM_{2.5}$ and PM_1) in 2019-2020 winter in Xinxiang, North China[J]. Atmosphere, 2022, **13**, doi: 10.3390/atmos13091400.

[43] 陈耶沙,叶芝祥,袁小燕,等. 2018年成都市$PM_{2.5}$中水溶性无机离子污染特征及来源解析[J]. 环境化学, 2022, **41**(6): 2062-2074.
Chen Y S, Ye Z X, Yuan X Y, *et al*. Characteristics and source apportionment of water-soluble ions in $PM_{2.5}$ during 2018 in Chengdu[J]. Environmental Chemistry, 2022, **41**(6): 2062-2074.

[44] Wang H B, Tian M, Chen Y, *et al*. Seasonal characteristics, formation mechanisms and source origins of $PM_{2.5}$ in two megacities in Sichuan Basin, China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, **18**(2): 865-881.

[45] Tian M, Wang H B, Chen Y, *et al*. Highly time-resolved characterization of water-soluble inorganic ions in $PM_{2.5}$ in a humid and acidic mega city in Sichuan Basin, China[J]. Science of the Total Environment, 2017, **580**: 224-234.

[46] Squizzato S, Masiol M, Brunelli A, *et al*. Factors determining the formation of secondary inorganic aerosol: a case study in the Po Valley (Italy)[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, **13**(4): 1927-1939.

[47] Liu H J, Wu B B, Liu S H, *et al*. A regional high-resolution emission inventory of primary air pollutants in 2012 for Beijing and the surrounding five provinces of North China [J]. Atmospheric Environment, 2018, **181**: 20-33.

[48] Zhang H, Yin S S, Bai L, *et al*. Establishment and evaluation of anthropogenic black and organic carbon emissions over Central Plain, China[J]. Atmospheric Environment, 2020, **226**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117406.

[49] Bai L, Lu X, Yin S S, *et al*. A recent emission inventory of multiple air pollutant, $PM_{2.5}$ chemical species and its spatial-temporal characteristics in central China[J]. Journal of Cleaner Production, 2020, **269**, doi: 10.1016/j.jclepro.2020.122114.

[50] Liu L, Xu W, Lu X K, *et al*. Exploring global changes in agricultural ammonia emissions and their contribution to nitrogen deposition since 1980[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2022, **119**(14), doi: 10.1073/PNAS.2121998119.

[51] Chen Z L, Song W, Hu C C, *et al*. Significant contributions of combustion-related sources to ammonia emissions [J]. Nature Communications, 2022, **13** (1), doi: 10.1038/s41467-022-35381-4.

[52] Feng S J, Xu W, Cheng M M, *et al*. Overlooked nonagricultural and wintertime agricultural NH_3 emissions in Quzhou county, North China plain: evidence from ^{15}N-stable isotopes[J]. Environmental Science & Technology Letters, 2022, **9**(2): 127-133.

[53] Chen Y A, Zhang Q R, Cai X R, *et al*. Rapid increase in China's industrial ammonia emissions: evidence from unit-based mapping [J]. Environmental Science & Technology, 2022, **56**(6): 3375-3385.

[54] Gu M N, Pan Y P, Walters W W, *et al*. Vehicular emissions enhanced ammonia concentrations in winter mornings: insights from diurnal nitrogen isotopic signatures [J]. Environmental Science & Technology, 2022, **56**(3): 1578-1585.

[55] Nguyen Q T, Skov H, Sørensen L L, *et al*. Source apportionment of particles at Station Nord, North East Greenland during 2008-2010 using COPREM and PMF analysis[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, **13**(1): 35-49.

[56] Shang J, Khuzestani R B, Tian J Y, *et al*. Chemical characterization and source apportionment of $PM_{2.5}$ personal exposure of two cohorts living in urban and suburban Beijing[J]. Environmental Pollution, 2019, **246**: 225-236.

[57] Zhan Y Z H, Xie M, Gao D, *et al*. Characterization and source analysis of water-soluble inorganic ionic species in $PM_{2.5}$ during a wintertime particle pollution episode in Nanjing, China [J]. Atmospheric Research, 2021, **262**, doi: 10.1016/j.atmosres.2021.105769.

[58] Gao J J, Tian H Z, Cheng K, *et al*. The variation of chemical characteristics of $PM_{2.5}$ and PM_{10} and formation causes during two haze pollution events in urban Beijing, China[J]. Atmospheric Environment, 2015, **107**: 1-8.

[59] 张靖雯. 郑州-新乡大气细颗粒物中水溶性离子的时空分布特征及来源解析研究[D]. 新乡: 河南师范大学, 2020.

[60] 新乡市统计局. 新乡统计年鉴(2017年, 2020年)[M]. 新乡: 中国统计出版社, 2017, 2020.

[61] Xu W, Luo X S, Pan Y P, *et al*. Quantifying atmospheric nitrogen deposition through a nationwide monitoring network across China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, **15**(21): 12345-12360.

[62] He H, Wang Y S, Ma Q X, *et al*. Mineral dust and NO_x promote the conversion of SO_2 to sulfate in heavy pollution days[J]. Scientific Reports, 2014, **4**(1), doi: 10.1038/srep04172.

[63] Wang S B, Wang L L, Wang N, *et al*. Formation of droplet-mode secondary inorganic aerosol dominated the increased $PM_{2.5}$ during both local and transport haze episodes in Zhengzhou, China [J]. Chemosphere, 2021, **269**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.128744.

[64] Ye C, Lu K D, Song H, *et al*. A critical review of sulfate aerosol formation mechanisms during winter polluted periods[J]. Journal of Environmental Sciences, 2023, **123**: 387-399.

[65] Meng C C, Wang L T, Zhang F F, *et al*. Characteristics of concentrations and water-soluble inorganic ions in $PM_{2.5}$ in Handan City, Hebei province, China [J]. Atmospheric Research, 2016, **171**: 133-146.

[66] 王国祯,任万辉,于兴娜,等. 沈阳市冬季大气$PM_{2.5}$中水溶性离子污染特征及来源解析[J]. 环境科学, 2021, **42**(1): 30-37.
Wang G Z, Ren W H, Yu X N, *et al*. Characteristics and sources of water-soluble ion pollution in $PM_{2.5}$ in winter in Shenyang [J]. Environmental Science, 2021, **42**(1): 30-37.

[67] Zhu X W, Tang G Q, Hu B, *et al*. Regional pollution and its formation mechanism over North China Plain: a case study with ceilometer observations and model simulations [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2016, **121** (24): 14574-14588.

[68] Zhang Y J, Du W, Wang Y Y, *et al*. Aerosol chemistry and particle growth events at an urban downwind site in North China Plain[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, **18**(19): 14637-14651.

HUANJING KEXUE Vol. 45 No. 3
Environmental Science (monthly) Mar. 15, 2024

CONTENTS

Research on the Evaluation Method and Application of Provincial Differentiated Carbon Peaking in China ····· LIU Run-pu, PENG Shuan, CHEN Yu-shuo, *et al.* (1233)
Evolution and Influencing Factors of Spatial Correlation Network of Construction Carbon Emission in China from the Perspective of Whole Life Cycle ····· REN Xiao-song, LI Zhao-rui (1243)
Efficiency Characteristics and Evolution Patterns of Urban Carbon Metabolism of Production-Living-Ecological Space in Beijing-Tianjin-Hebei Region ····· TIAN Chao, CHENG Lin-lin, SHAO Ying-chao (1254)
Assessment of CO_2 Co-benefits of Air Pollution Control Policies in Taiyuan's 14th Five-Year Plan ····· XIAO Ting-yu, SHU Yun, LI hui, *et al.* (1265)
Coordinated Control of Carbon Emission Reduction and Air Quality Improvement in the Industrial Sector in Hunan Province ····· LI Nan, LIU Wan-wan, ZHU Shu-han, *et al.* (1274)
Coal Control and Carbon Reduction Path in Henan Province's Power Industry Under the Carbon Peak and Neutralization Target: A Medium- and Long-term Study ····· ZHANG Jing, YANG Meng, ZHANG Wei, *et al.* (1285)
Environmental Benefits of Pollution and Carbon Reduction by Bus Fleet Electrification in Zhengzhou ····· ZOU Chao, WANG Ya-nan, WU Lin, *et al.* (1293)
Multi-scale Driving Mechanism of Urbanization on $PM_{2.5}$ Concentration in Urban Agglomeration in the Middle Reaches of the Yangtze River ····· ZHANG Zheng, ZHOU Ting-gang, ZHOU Zhi-heng, *et al.* (1304)
Analysis of Spatio-temporal Distribution Characteristics and Influencing Factors of $PM_{2.5}$ Concentration in Urban Agglomerations on the Northern Slope of Tianshan Mountains ····· WANG Xiang-nan, ZHANG Zhe, LIU Fang-qing (1315)
Spatial Variability and Source Apportionment of $PM_{2.5}$ Carbon Components in Tianjin ····· WU Fu-liang, WU Jian-hui, DAI Qi-li, *et al.* (1328)
Characteristics and Source Analysis of Carbonaceous Aerosols in $PM_{2.5}$ in Huaxi District, Guiyang ····· GUI Jia-qun, YANG Yuan, WANG Xian-qin, *et al.* (1337)
Pollution Characteristics, Source Apportionment, and Meteorological Response of Water-soluble Ions in $PM_{2.5}$ in Xinxiang, North China ····· LIU Huan-jia, LI Lan-qing, LI Huan-li, *et al.* (1349)
Characterization of Metal Elements in Atmospheric $PM_{2.5}$ and Health Risk Assessment in Heze in Winter from 2017 to 2018 ····· DU Hong-xuan, REN Li-hong, ZHAO Ming-sheng, *et al.* (1361)
Analysis of the Jumping Characteristics and Influencing Factors of Ozone Pollution in Beijing ····· PAN Jin-xiu, AN Xin-xin, LIU Bao-xian, *et al.* (1371)
Analysis of Photochemical Characteristics and Sensitivity of Atmospheric Ozone in Nanjing in Summer ····· LUO Li-tong, ZHANG Yan-lin, LIN Yu-qi, *et al.* (1382)
Ozone Pollution in Suzhou During Early Summertime: Formation Mechanism and Interannual Variation ····· WU Ye-zheng, ZHANG Xin, GU Jun, *et al.* (1392)
Distribution Characteristics, Ecological Risk Assessment, and Source Tracing of Heavy Metals in the Sediments of Typical Lakes in the Middle Reaches of the Yangtze River ····· LU Hong-bin, LU Shao-yong, LI Xiang, *et al.* (1402)
Spatiotemporal Distribution and Source Analysis of Heavy Metals in Surface Sediments in Lake Ulansuhai Based on PCA-APCS-MLR Model ····· CUI Zhi-mou, SHI Xiao-hong, ZHAO Sheng-nan, *et al.* (1415)
Spatial and Temporal Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Surface Water of Changshou Lake Reservoir, Chongqing ····· ZHANG Rui-xi, LIU Ya-jun, LUO Yong-nan, *et al.* (1428)
Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Microplastics in the Yangtze River Basin ····· LI Si-qiong, WANG Hua, CHU Lin-you, *et al.* (1439)
Assessment of Microplastic Pollution and Estimation of Annual Emission Volume in the Dongshan Canal of Yichang City ····· DING Shuang, LI Wei-ming, ZHANG Xu-tong, *et al.* (1448)
Occurrence Characteristic and Risk Assessment of Microplastics in Sishui River (Xingyang Section) ····· ZHAO Chang-min, HE Bing, LI He-tong, *et al.* (1457)
Contamination Characteristics and Ecological Risk Assessment of Pharmaceuticals and Personal Care Products in Drains Flowing into the Yellow River of Ningxia ····· GAO Li, LI Ling-yun, ZHENG Lan-xiang, *et al.* (1468)
Characteristics and Risk Assessment of Antibiotic Contamination in Oujiang River Basin in Southern Zhejiang Province ····· ZHONG Yi-xin, LI Li-xiang, WU Xin, *et al.* (1480)
Spatial-temporal Distribution and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Sediments of Poyang Lake ····· MA Yan, SUN Chen, BI Jia-le, *et al.* (1492)
Change and Prediction of Water Purification Function in the South Bank of Hangzhou Bay in the Past 20 Years ····· WANG Shan-shan, CAO Gong-ping, XU Ming-wei, *et al.* (1502)
Effects of Land Use Types on Water Quality at Different Buffer Scales: Tianjin Section of the Haihe River Basin as an Example ····· DAI Meng-jun, ZHANG Bing, DU Qian-qian, *et al.* (1512)
Hydrochemical Characteristics and Control Factors of Shallow Groundwater in Anqing Section of the Yangtze River Basin ····· LIU Hai, SONG Yang, LI Ying-chun, *et al.* (1525)
Dynamic Changes of Dissolved Organic Matter Derived from Algal Decomposition and the Environmental Effects in Eutrophic Lakes ····· ZHANG Jin, CHEN Ming-ying, HAO Zhi-neng, *et al.* (1539)
Degradation of Carbamazepine in Water by UV-activated Sulfite Process ····· LIN Tao, YUAN Yu-jie (1553)
Detection, Generation, and Control of Disinfection By-products of Reclaimed Water ····· LIAO Yu-feng, WANG Zheng, PAN Yang, *et al.* (1561)
Absorption of Ammonium by Three Substrates Materials in Constructed Wetland System ····· HE Qiang, CHEN Bo-wen, YANG Yu-jing, *et al.* (1577)
Ecological Environment Assessment and Driving Mechanism Analysis of Nagqu and Amdo Sections of Qinghai-Xizang Highway Based on Improved Remote Sensing Ecological Index ····· FU Kai-xiang, JIA Guo-dong, YU Xin-xiao, *et al.* (1586)
Spatial-temporal Evolution and Driving Factors Analysis of Ecological Environment Quality in Daihai Basin based on AWRSEI ····· ZHAO Jia-li, LI Xing, SUN Bing (1598)
Quantitative Assessment of the Impact of Climate Change on the Growing Season of Vegetation Gross Primary Productivity in the Middle and Lower Reaches of the Yangtze River ····· XU Yong, PAN Yu-chun, ZOU Bin, *et al.* (1615)
Effect of Vegetation Restoration on Soil Organic Carbon Storage in Coal Mining Areas Based on Meta-analysis ····· LI Jian-ming, KANG Yu-xin, JIANG Fu-zhen, *et al.* (1629)
Effects of Continuous Annual Crop Rotation and Fallow on Soil Aggregate Stability and Organic Carbon ····· LU Ze-rang, LI Yong-mei, YANG Chun-huai, *et al.* (1644)
Effects of Four Amendments on Fertility and Labile Organic Carbon Fractions of Acid Purple Soil ····· DING Xin-ru, YAN Ning-zhen, WANG Zi-fang, *et al.* (1655)
Changes in Soil Nitrogen Components and Their Relationship with Environmental Factors with Different Tea Plantation Ages ····· SHAO Qi, WU Tao, XIE Xue-feng, *et al.* (1665)
Nutrients and Ecological Stoichiometry Characteristics of Typical Wetland Soils in the Lower Yellow River ····· WANG Chuan-ying, WANG Kai-yue, WANG Hao-ran, *et al.* (1674)
Effect of Film Mulching Age and Organic Fertilizer Application on the Distribution Characteristics of Microplastics in the Soil of a Peanut Field ····· SONG Ning-ning, LI Meng-jia, WANG Xue-xia, *et al.* (1684)
Effects of Straw Returning and Biochar Addition on Greenhouse Gas Emissions from High Nitrate Nitrogen Soil After Flooding in Rice-vegetable Rotation System in Tropical China ····· HU Tian-yi, CHE Jia-yue, HU Yu-jie, *et al.* (1692)
Tillage Depth Regulation and the Effect of Straw Return on Soil Respiration in Farmland ····· CHEN Xi, ZHANG Yan-jun, ZOU Jun-liang, *et al.* (1702)
Distribution Prediction of Soil Heavy Metals Based on Remote Sensing Temporal-Spatial-Spectral Features and Random Forest Model ····· WANG Ze-qiang, ZHANG Dong-you, XU Xi-bo, *et al.* (1713)
Characteristics and Identification Priority Source of Heavy Metals Pollution in Farmland Soils in the Yellow River Basin ····· LI Jun, LI Xu, LI Kai-ming, *et al.* (1724)
Characteristics of Cd Fluxe in Topsoil Around Typical Mining Area in Hezhou, Guangxi ····· YANG Ye-yu, LI Cheng, YANG Zhong-fang, *et al.* (1739)
Potential Ecological Risk Assessment of Soil Heavy Metals in Fengdong New District Based on Information Diffution Model ····· YANG Nan-nan, HAN Ling, LIU Ming (1749)
Traceability Analysis and Environmental Quality Assessment of Soil Heavy Metal Pollution in West Hunan Province ····· XIAO Kai-qi, XU Hong-gen, GAN Jie, *et al.* (1760)
Distribution Characteristics, Source Analysis and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in the Typical Industry Reclaimed Soil ····· SHEN Cheng, WANG Wen-juan, SHA Chen-yan, *et al.* (1769)
Provincial-scale Soil As Migration and Transformation and Rice Safe Planting Zoning: A Case Study of Guizhou Province ····· DONG Xin-yue, WU Yong, ZHOU Zi-han, *et al.* (1781)
Effect of Silica Fertilizer(Husk Ash) to Improve Soil Quality and Reduce Cd and As Accumulation in Rice ····· YI Xuan-tao, OUYANG Kun, GU Jiao-feng, *et al.* (1793)
Effect of EDDS Application on Soil Cu/Cd Availability and Uptake/transport by Castor ····· LIU Wen-ying, WU Gang, HU Hong-qing (1803)
Blocking Effects of Foliar Conditioners on Cadmium, Arsenic, and Lead Accumulation in Wheat Grain in Compound-contaminated Farmland ····· XIAO Bing, WANG Qiu-shi, GAO Pei-pei, *et al.* (1812)
Soil Microbial Community Structure and Functional Diversity Character of Abandoned Farmland in Minqin Oasis ····· LI Chang-le, ZHANG Fu, WANG Li-de, *et al.* (1821)
Microbial Mechanisms of Removal of Phthalic Acid Esters in Purple Soils Revealed Using Metagenomic Analysis ····· LI Yu-tong, YU Hai, LIU Kun, *et al.* (1830)
Air Microbial Contamination and Risk of Respiratory Exposure of Workers in Chicken Farms ····· BAI Yu-qiao, SUN Xing-bin, QIU Tian-lei, *et al.* (1840)
Occurrence Characteristics of Microplastics in Multi-environmental Media and *Bellamya aeruginosa* of Manao River ····· GAO Ya-kun, LI Wei-ming, ZHANG Xu-tong, *et al.* (1849)
Biological Effect of Microplastics with Different Functional Groups on the Bacterial Communities and Metabolic Functions of Zebrafish (*Danio rerio*) Embryos ····· YAN Zhen-hua, ZHANG Yan, BAO Xu-hui, *et al.* (1859)