

百方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.4
第40卷 第4期

目次

南京江北新区大气单颗粒来源解析及混合状态 于兴娜, 时政, 马佳, 李梅, 龚克坚(1521)

西安市 PM_{2.5} 中碳质气溶胶污染特征 牟臻, 陈庆彩, 王羽琴, 沈振兴, 华晓羽, 张梓萌, 孙浩堯, 王玛敏, 张立欣(1529)

太原市冬季 PM_{2.5} 化学组分特征与来源解析 刘素, 马彤, 杨艳, 高健, 彭林, 曹力媛, 逢妮妮, 张浩杰(1537)

郑州市大气细颗粒物中水溶性离子季节性变化特征及其源解析 闫广轩, 张靖雯, 雷豪杰, 黄海燕, 唐明双, 曹治国, 李云蓓, 樊静, 王跃思, 李怀刚(1545)

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 杨毅红, 贾燕, 卞国建, 于晓巍, 钟昌琴, 全鼎余(1553)

一次沙尘事件对沿海及海洋大气气溶胶中金属粒径分布的影响 金同俊, 祁建华, 郝梓延, 林学辉(1562)

基于 SOA 转化机制的沧州市重点企业秋冬季大气污染模拟 高爽, 伯鑫, 马岩, 雷团团, 王刚, 李时蓓, 陆朝阳, 毛娜, 郝明亮, 黄向峰(1575)

京津冀大气污染变化规律及其与植被指数相关性分析 孙爽, 李令军, 赵文吉, 齐梦溪, 田欣, 李珊珊(1585)

2015~2017年北京及近周边平房燃煤散烧及其污染排放遥感测算 赵文慧, 李令军, 鹿海峰, 姜磊, 张立坤, 王新辉, 邱昀(1594)

基于地基遥感的杭州地区气溶胶光学特性 齐冰, 车慧正, 徐婷婷, 杜荣光, 胡德云, 梁卓然, 马千里, 姚杰(1604)

四川省人为源挥发性有机物组分清单及其臭氧生成潜势 周子航, 邓也, 谭钦文, 吴柯颖, 宋丹林, 黄凤霞, 周小玲(1613)

餐饮源挥发性有机物组成及排放特征 高雅琴, 王红丽, 许睿哲, 景盛翱, 刘跃辉, 彭亚荣(1627)

广州番禺大气成分站一次典型光化学污染过程 PAN 和 O₃ 分析 邹宇, 邓雪娇, 李菲, 殷长泰(1634)

北京市典型道路扬尘化学组分特征及年际变化 胡月琪, 李萌, 颜旭, 张超(1645)

南昌市扬尘 PM_{2.5} 中多环芳烃的来源解析及健康风险评价 于瑞莲, 郑权, 刘贤荣, 王珊珊, 赵莉斯, 胡恭任(1656)

道路扬尘排放因子建立方法与应用 樊守彬, 杨涛, 王凯, 李雪峰(1664)

现实工况下挖掘机电尾气排放特征分析 马帅, 张凯山, 王帆, 庞凯莉, 朱怡静, 李臻, 毛红梅, 胡宝梅, 杨锦锦, 王斌(1670)

雾-霾天人体平均呼吸高度处不同粒径气溶胶的微生物特性 杨唐, 韩云平, 李琳, 刘俊新(1680)

霾天能见度参数化方案改进及预报效果评估 赵秀娟, 李梓铭, 徐敬(1688)

支持向量机回归在臭氧预报中的应用 苏筱倩, 安俊琳, 张玉欣, 梁静舒, 刘静达, 王鑫(1697)

基于中国电网结构及一线典型城市车辆出行特征的 PHEV 二氧化碳排放分析 郝旭, 王贺武, 李伟峰, 欧阳明高(1705)

岩溶槽谷区地下河硝酸盐来源及其环境效应:以重庆龙凤槽谷地下河系统为例 段世辉, 蒋勇军, 张远瞩, 曾泽, 王正雄, 吴韦, 彭学义, 刘九缠(1715)

胶州湾表层水体中邻苯二甲酸酯的污染特征和生态风险 刘成, 孙翠竹, 张智, 唐燎, 邹亚丹, 徐擎擎, 李锋民(1726)

湛江湾沉积物中六六六(HCHs)、滴滴涕(DDTs)有机氯农药的分布特征与风险评估 彭诗云, 彭平安, 孔德明, 陈法锦, 于赤灵, 李嘉诚, 梁宇钊, 宋建中(1734)

生态净化系统中 DOM 光学特性及影响因素分析:以盐龙湖春季为例 马睿, 李璇, 王莲, 王家新, 马卫星, 丁成, 吴向阳(1742)

溶解性有机物(DOM)与区域土地利用的关系:基于三维荧光-平行因子分析(EEM-PARAFAC) 李昀, 魏鸿杰, 王侃, 张招招, 于旭彪(1751)

汉丰湖流域农业面源污染氮磷排放特征分析 谢经朝, 赵秀兰, 何丙辉, 李章安(1760)

基于 RZWQM 模型模拟太行山低山丘陵区农田土壤硝态氮迁移及淋溶规律 郑文波, 王仕琴, 刘丙霞, 雷玉平, 曹建生(1770)

澜沧江流域梯级水库建设下水体营养盐和叶绿素 a 的空间分布特征 程豹, 望雪, 马金川, 杨正健, 刘德富, 马骏(1779)

福州地区海湾和河口潮汐沼泽湿地秋季上覆水营养盐分布特征 何露露, 杨平, 谭立山, 仝川, 黄佳芳(1788)

尾水受纳河流中 PhACs 在传统水相中的分布及环境风险 王硕, 刘建超, 郑超亚, 张吉琛, 许嘉诚, 徐莹莹, 陆光华(1797)

绿色屋顶雨洪调控能力与效益评价 李俊生, 尹海伟, 孔繁花, 陈佳宇, 邓金玲(1803)

超声活化过硫酸盐降解水中典型臭味 孙昕, 孙杰, 李鹏飞, 汤加刚, 杨晴, 唐晓(1811)

金属有机框架 MIL-53(Fe)可见光催化还原水中 U(VI) 闫增元, 刁海玲, 袁立永(1819)

覆盖材料对洱海不同湖区沉积物溶解态有机磷和无机磷释放影响及差异 龚佳健, 倪兆奎, 肖尚斌, 赵海超, 席银, 王圣瑞(1826)

气氧化铜改性介孔稻壳生物炭除磷性能 许润, 石程好, 唐倩, 石稳民, 康建雄, 任拥政(1834)

改性污泥基生物炭的性质与重金属吸附效果 陈坦, 周泽宇, 孟瑞红, 刘彦廷, 王洪涛, 陆文静, 金军, 刘颖(1842)

纳米磁性磷酸二氢钙对 Cd 的吸附、回收与再生 李玉娇, 杨志敏, 陈玉成, 黄磊, 唐海燕(1849)

赤铁矿抑制硫酸盐废水厌氧消化产甲烷过程中硫化氢形成与机制 黄绍福, 叶捷, 周顺桂(1857)

微藻膜反应器处理海水养殖废水性能及膜污染特性 马航, 李之鹏, 柳峰, 徐仲, 尤宏, 王芳, 陈其伟(1865)

生活污水预沉淀-SNAD 颗粒污泥工艺小试 李冬, 崔雅倩, 赵世勋, 刘志诚, 张杰(1871)

生活污水与人工配水对好氧颗粒污泥系统的影响 李冬, 王樱桥, 李帅, 张杰, 王玉刚(1878)

硫磺/硫酸铁自养反硝化系统脱氮性能 周娅, 买文宁, 梁家伟, 代吉华, 牛颖, 李伟利, 唐启(1885)

异养硝化细菌 *Pseudomonas putida* YH 的脱氮特性及降解动力学 汪旭晖, 杨垒, 任勇翔, 陈宁, 肖倩, 崔坤, 郇丹(1892)

污泥龄及 pH 值对反硝化除磷工艺效能的影响 韦佳敏, 黄慧敏, 程诚, 蒋志云, 刘文如, 沈耀良(1900)

盐度条件下 ANAMMOX-EGSB 反应器颗粒污泥微生物群落 王晗, 李瀚翔, 陈猷鹏, 郭劲松, 晏鹏, 方芳(1906)

内源磷 PHA 的贮存对混合菌群耐低温特性的影响 杨建鹏, 张健, 田晴, 朱艳彬, 李方, Wolfgang Sand(1914)

中国市政污泥中磷的含量与形态分布 王超, 刘清伟, 职音, 程柳, 王宁, 李彩丹, 毛宇翔(1922)

广州市售水产品中全氟烷基化合物的污染特征和安全风险评价 王旭峰, 王强, 黎智广, 黄珂, 李刘冬, 赵东豪(1931)

长江上游典型农业源溪流溶存氧化亚氮(N₂O)浓度特征及影响因素 田琳琳, 王正, 胡磊, 任光前, 朱波(1939)

内蒙古河套灌区不同盐碱程度土壤 CH₄ 吸收规律 杨文柱, 焦燕, 杨铭德, 温慧洋(1950)

水稻光合碳在植株-土壤系统中分配与稳定对施磷的响应 王莹莹, 肖谋良, 张昀, 袁红朝, 祝贞科, 葛体达, 吴金水, 张广才, 高晓丹(1957)

土壤水分和温度对西南喀斯特棕色石灰土无机碳释放的影响 徐学池, 黄媛, 何寻阳, 王桂红, 苏以荣(1965)

黄土丘陵区侵蚀坡面土壤微生物量碳时空动态及影响因素 覃乾, 朱世硕, 夏彬, 赵允格, 许明祥(1973)

农用地土壤抗生素组成特征与积累规律 孔晨晨, 张世文, 聂超甲, 胡青青(1981)

生物发酵制药 VOCs 与臭味治理技术研究与发展 王东升, 朱新梦, 杨晓芳, 焦茹媛, 赵珊, 宋荣娜, 吕明哈, 杨敏(1990)

《环境科学》征订启事(1612) 《环境科学》征稿简则(1787) 信息(1663, 1796, 1833)

太原市冬季 PM_{2.5} 化学组分特征与来源解析

刘素^{1,2}, 马彤², 杨艳², 高健^{2*}, 彭林^{1*}, 曹力媛³, 逢妮妮⁴, 张浩杰⁵

(1. 华北电力大学环境科学与工程学院, 北京 102206; 2. 中国环境科学研究院, 北京 100012; 3. 太原市环境监测中心站, 太原 030002; 4. 北京化工大学化学工程学院, 北京 100029; 5. 山东大学环境研究院, 济南 250013)

摘要: 为研究太原市城区冬季 PM_{2.5} 污染特征及来源, 于 2017 年 1 月对 PM_{2.5} 及其化学组分(水溶性离子、碳组分和微量元素)、气态污染物(SO₂、NO₂)进行在线观测, 结合气象数据, 分析了清洁天和污染天 PM_{2.5} 及其化学组分特征, 并利用正定矩阵因子分析法(positive matrix factorization, PMF)对 PM_{2.5} 进行来源解析. 结果表明, 2017 年 1 月太原市城区污染天 PM_{2.5} 质量浓度(239.92 μg·m⁻³)为清洁天的 5.70 倍, 污染天 PM_{2.5} 主要化学组分 SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Cl⁻、OC 和 EC 分别为清洁天的 7.04、5.76、6.51、5.62、4.06 和 4.70 倍; 污染天硫的氧化速率(SOR)和氮的氧化速率(NOR)分别为 0.12 和 0.19, 明显高于清洁天, 说明污染天二次转化程度更高; PMF 解析结果显示, 污染天二次源(35.06%)、燃煤源(30.19%)和机动车源(24.25%)较清洁天分别增长 18.03%、7.39% 和 2.10%, 说明太原市城区污染天在管控机动车和燃煤等一次排放源的基础上, 更应该注意对二次源前体物的控制.

关键词: 太原; PM_{2.5}; 污染天; 组分特征; 源解析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)04-1537-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201808259

Chemical Composition Characteristics and Source Apportionment of PM_{2.5} During Winter in Taiyuan

LIU Su^{1,2}, MA Tong², YANG Yan³, GAO Jian^{2*}, PENG Lin^{1*}, CAO Li-yuan³, PANG Ni-ni⁴, ZHANG Hao-jie⁵

(1. College of Environment Science and Engineering, North China Electric Power University, Beijing 102206, China; 2. Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China; 3. Taiyuan Environmental Monitoring Station, Taiyuan 030002, China; 4. College of Chemical Engineering, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China; 5. Environment Research Institute, Shandong University, Jinan 250013, China)

Abstract: To study the characteristics and sources of PM_{2.5} pollution in Taiyuan urban area in winter, PM_{2.5} and its chemical components (water-soluble ions, carbon components, and trace elements) and gaseous pollutants (SO₂, NO₂) were monitored by online instruments in January 2017. Combined with meteorological data, the characteristics of PM_{2.5} and its chemical components were analyzed. Also, source apportionment of PM_{2.5} was conducted by using positive matrix factorization (PMF). The results showed that the mean mass concentration of PM_{2.5} on polluted days (239.92 μg·m⁻³) was 5.70 times as much as that on clean days. The concentrations of the main chemical components of PM_{2.5} on polluted days, SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, Cl⁻, OC, and EC, were 7.04, 5.76, 6.51, 5.62, 4.06, and 4.70 times their respective values on clean days. The sulfur oxidation ratios (SOR) and the nitrogen oxidation ratios (NOR) on polluted days were 0.12 and 0.19, respectively, which were higher than those in clean days, indicating that secondary transformation was more significant on polluted days. The results of the PMF source apportionment showed that the contributions of secondary sources (35.06%), coal combustion (30.19%), and vehicle emissions (24.25%) were higher on polluted days than on clean days, with increases of 18.03%, 7.39% and 2.10%, respectively. Thus, air pollution control strategies should pay more attention to controlling secondary source precursors on the basis of controlling the primary emission sources on polluted days.

Key words: Taiyuan; PM_{2.5}; polluted days; composition characteristics; source apportionment

随着我国经济的快速发展, 空气污染问题日益突显, 大气重污染天气得到全社会高度关注^[1,2]. 有研究表明, 北方冬季重污染的关键影响因子是细颗粒物(PM_{2.5})污染, 其不仅会降低大气能见度, 损害居民身体健康, 而且会对全球气候造成影响^[3-5].

近年来国内外学者对大气重污染成因进行了诸多研究, 如文献[6~9]分别针对北京、南京和西安等地大气中 PM_{2.5} 及其组分特征研究发现, 霾天水溶性离子(SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺等)浓度较非霾

天增幅较大, 且不利的气象条件(高湿、低风等)是影响霾天颗粒物浓度升高的重要因素, Tian 等^[10]和 Sulong 等^[11]通过受体模型(PMF)分别对北京、吉隆坡等地霾天和非霾天大气中 PM_{2.5} 来源研究发现, 霾天二次源对 PM_{2.5} 贡献有所增加. 现有研究

收稿日期: 2018-08-31; 修订日期: 2018-10-09

基金项目: 国家自然科学基金项目(91544226, 41673004); 大气重污染成因与治理攻关项目(DQG0107)

作者简介: 刘素(1993~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为大气环境综合观测, E-mail: liuncepu@163.com

* 通信作者, E-mail: gaojian@caes.org.cn; penglin6611@163.com

显示,目前国内主要研究区域集中于京津冀、长三角、珠三角和汾渭平原等地,而太原作为我国典型的燃煤型工业城市,同时也是我国污染最为严重的城市之一^[12,13]。目前对太原大气污染特征研究主要针对某一污染过程或单一化学组分进行分析,且采样方式多以离线采样为主,基于高时间分辨率在线监测研究仍鲜有报道,难以对大气污染过程特征及来源进行动态解析^[14~17]。因此,利用高时间分辨率污染物在线监测开展针对重污染过程 PM_{2.5} 快速、连续来源解析更具有重要意义。

为了深入研究太原市冬季大气颗粒物的污染特征,本研究基于高时间分辨率(1 h)在线监测仪器对太原市城区 PM_{2.5} 及其化学组分(水溶性离子、碳组分、微量元素)、气态污染物(SO₂ 和 NO₂) 等进行观测,同时结合气象参数等数据,分别对清洁天(PM_{2.5} < 75 μg·m⁻³)和污染天(PM_{2.5} ≥ 75 μg·m⁻³)大气污染特征进行对比分析,并通过正定矩阵因子分析模型(PMF)对 PM_{2.5} 来源进行解析,探究其污染来源,以期有效应对重污染过程提供科学依据。

1 材料与与方法

1.1 采样点位及时间介绍

采样地点为太原市环境监测中心站三层楼顶,距地面高度约为 12 m,太原市环境监测站位于太原市中心城区(37.87°N、112.54°E),采样点位周围无明显排放源,附近主要以居民住宅区为主,属于人口密集区。采样时间为 2017 年 1 月 1~31 日,每日 24 h 连续监测。

1.2 采样仪器

在线离子采样器为 MARGA ADI 2080 离子色谱仪(瑞士万通公司 瑞士),该仪器可在 1 h 分辨率条件下连续测量气溶胶中水溶性无机离子,其中包括 SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻、NH₄⁺、K⁺、Na⁺、Mg²⁺、Ca²⁺,对应检测限分别为 0.04、0.05、0.01、0.05、0.09、0.05、0.06 和 0.09 μg·m⁻³。测量原理:仪器依据气体扩散性质,通过旋转液膜气蚀器(WRD)采集酸性气体和氨气,气溶胶通过 WRD 后被蒸气喷射气溶胶收集器(SJAC)收集,进而气溶胶颗粒物通过离子色谱分析出其可溶性阴离子和阳离子组分。为保证仪器的正常运行,定期通过内标的方法对阴阳离子色谱柱进行标定,采用多点校正的方法对仪器的流量进行校正,保证空气进样流量为 1 m³·h⁻¹^[5,18,19]。

OC、EC 分析采用 OCEC(Modle 4)在线分析仪(Sunset Laboratory 美国),该仪器基于热学/光学方

法对在石英膜上采集的碳组分进行分析。具体测量原理:在测量 OC 过程中,为避免仪器内有机物和碳化产物对 OC 检测的干扰,通入 He 气对其吹扫进入 MnO₂ 炉内,定量转化为 CO₂ 气体,然后通过非扩散红外(NDIR)检测器进行测量,测量 EC 时通入 He/O₂ 混合气体,通过同样的方法进行测量。该仪器对每次测量过程进行自动光学校正,并且定期通过蔗糖溶液和空白对比等方法对仪器进行校准,确保仪器正常运行和数据的可靠性,采样流量为 8 L·min⁻¹,其 OC 和 EC 检测限分别为 0.4 μg·m⁻³ 和 0.2 μg·m⁻³^[5,18,20]。

在线微量元素采样器为 Xact 625 多金属连续排放检测系统(PALL corporation 美国),该仪器通过滤带将空气颗粒物进行采集,同时使用流量计对样本流量进行监测,采集样品后,通过滤带的转动将金属颗粒物传送到检测器位置,测量方法主要采用 EPA 规定的 IO3.3 标准方法(XRF, X 射线光荧光分析)测量空气颗粒物中金属成分,该仪器可检测环境颗粒物中 23 种元素,分别为 K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Ni、Cu、Zn、Ga、As、Se、Pd、Ag、Cd、Ba、Hg、Pb、Au、Tl、Co、Sn 和 Sb。其测量范围为 0~100 μg·m⁻³,其中 1h 最低检测限为 0.135 ng·m⁻³,为保证数据的正常,需要定期对该仪器进行气密性实验、流量校准、空白实验、以及滤波器的校准^[5,18]。

1.3 正定矩阵因子分析法

正定矩阵因子分析法(positive matrix factorization, PMF)是一种多变量因子分析方法^[21,22],该方法将样本数据矩阵 $X(n \times m)$ 分解为两个矩阵,分别为源成分谱矩阵 $F(k \times j)$ 和源贡献矩阵 $G(j \times i)$, $E(i \times j)$ 为样本的观测值与模拟值之间的残差矩阵,具体表示方法如下:

$$X = GF + E \quad (1)$$

通过寻求最小目标函数 Q 的值,确定污染源成分谱矩阵 F 和污染源贡献矩阵 G ,达到目标解析结果。

$$Q = \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n (e_{ij}/\sigma_{ij})^2 \quad (2)$$

式中, e_{ij} 为第 i 个样本数据中第 j 个组分观测值与模拟值的残差, σ_{ij} 为第 i 个样本数据中第 j 个组分不确定性^[23,24]。

1.4 其他数据来源

本文 PM_{2.5} 质量浓度、气态污染物(NO₂ 和 SO₂)及气象参数(温度、湿度、风向、风速等)等数据均来自太原市国控点空气质量监测站,采样仪器均为美国 Thermo 公司,具体仪器型号为:美国热电

公司 Model 5030 (PM_{2.5})、Model 42i (NO₂) 和 43i (SO₂)、WS500-UMB (气象参数)。

2 结果与讨论

2.1 大气污染特征及气象条件的影响

为了研究不同污染条件下太原市大气污染特征, 根据 PM_{2.5} 质量浓度范围分类, 划分为清洁天 (PM_{2.5} < 75 μg·m⁻³) 和污染天 (PM_{2.5} ≥ 75 μg·m⁻³), 不同污染条件下 PM_{2.5}、气态污染物及气象参数情况详见表 1。

表 1 不同污染条件下 PM_{2.5}、气态污染物及气象参数

Table 1 PM_{2.5}, gaseous pollutants, and meteorological parameters under different pollution conditions

类型	清洁天	污染天
PM _{2.5} /μg·m ⁻³	42.11	239.92
SO ₂ /μg·m ⁻³	58.77	222.18
NO ₂ /μg·m ⁻³	39.63	89.35
温度/°C	-1.02	1.58
相对湿度/%	32.47	49.50
风速/m·s ⁻¹	2.68	0.69

图 1 为观测期间 PM_{2.5} 质量浓度、气态污染物及气象参数时间变化序列。从中可知, 太原市城区

PM_{2.5} 质量浓度范围为 14 ~ 781 μg·m⁻³, 均值为 146.87 μg·m⁻³, 污染天 PM_{2.5} 质量浓度均值为 239.92 μg·m⁻³, 为清洁天 PM_{2.5} 质量浓度的 5.70 倍, 约为我国《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 二级标准 (75 μg·m⁻³) 限值的 3.20 倍。气态污染物中 SO₂ 和 NO₂ 污染天浓度分别为 222.18 μg·m⁻³ 和 89.35 μg·m⁻³, 是清洁天的 3.78 和 2.25 倍, 相关性分析表明, SO₂ 和 NO₂ 浓度变化趋势与 PM_{2.5} 较为一致 (R² 为 0.82 和 0.83, P < 0.01), SO₂ 主要来源于燃煤和工业排放等, NO₂ 主要来源于机动车排放和化石燃料燃烧等, 说明观测期间 PM_{2.5} 可能受燃煤、机动车尾气及工业排放影响较大^[6,9]。

通过对气象参数分析可知, 清洁天风速为 2.68 m·s⁻¹, 而污染天风速仅为 0.69 m·s⁻¹, 污染天气大气基本处于静稳状态, 导致大气污染物扩散条件变差, 进而加重大气污染程度^[2]。清洁天和污染天相对湿度分别为 32.47% 和 49.50%, 相对湿度的增加有利于环境空气中 SO₂、NO₂ 等气态前体物的二次转化, 促进颗粒物的吸湿增长和 PM_{2.5} 浓度升高^[25]。

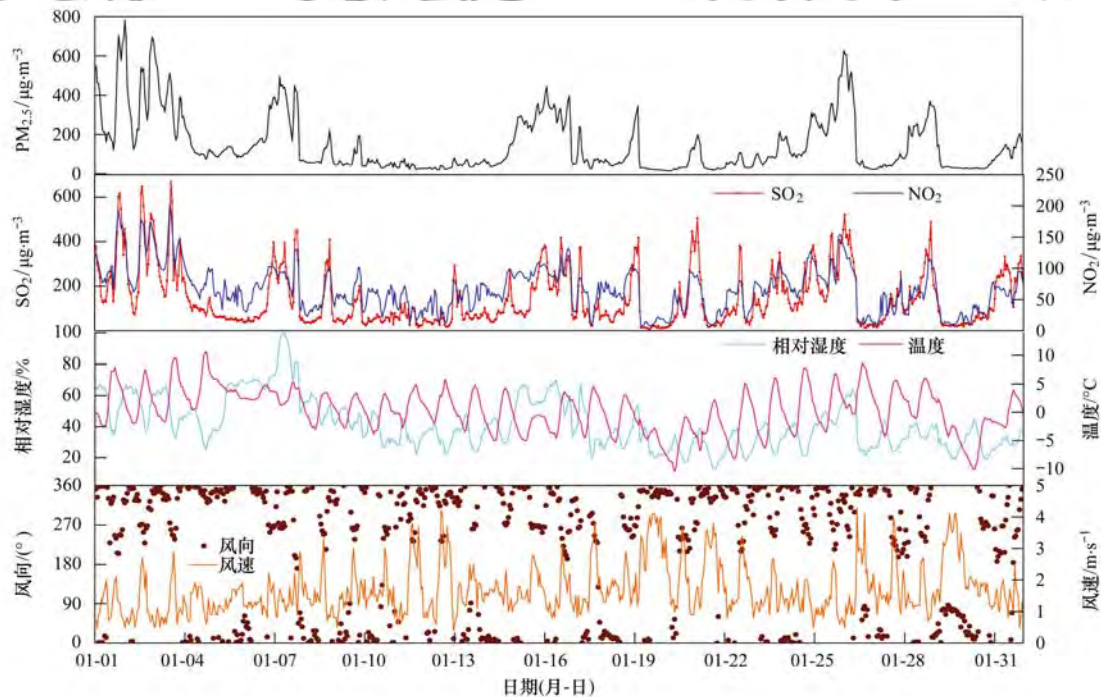


图 1 PM_{2.5}、气态污染物及气象参数时间变化序列

Fig. 1 Time series of PM_{2.5}, gaseous pollutants, and meteorological parameters

2.2 PM_{2.5} 中化学组分变化特征

观测期间太原市城区 PM_{2.5} 中水溶性离子、碳组分和微量元素质量浓度均值分别为 71.43、34.35 和 4.54 μg·m⁻³, 分别占 PM_{2.5} 的 48.64%、23.39% 和 3.09%, 具体各化学组分质量浓度情况如表 2 所

示。可以看出, SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Cl⁻、OC、EC 质量浓度明显高于其他组分, 是大气 PM_{2.5} 中的主要化学组分。观测期间 SO₄²⁻、NO₃⁻ 和 Cl⁻ 质量浓度分别占水溶性离子浓度总和的 34.59%、23.42% 和 12.68%, OC 和 EC 分别占 PM_{2.5} 质量浓度的

17.71%和5.68%，与国内其他城市（如北京^[26]、天津^[27]、南京^[28]等）同期观测结果对比，太原市城区 SO_4^{2-} 和 Cl^- 在水溶性离子中占比明显高于其他城市，而 NO_3^- 在水溶性离子中占比相对要低，且 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比值为0.78，说明观测期间太原市城区燃煤源对大气 $\text{PM}_{2.5}$ 贡献较为突出。

表2 太原市城区 $\text{PM}_{2.5}$ 中各化学组分质量浓度
Table 2 Mass concentration of the chemical components
in $\text{PM}_{2.5}$ in Taiyuan urban area

类型	组分	月均值	清洁天均值	污染天均值
水溶性离子/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	SO_4^{2-}	24.71	6.11	43.03
	NO_3^-	16.73	4.91	28.30
	NH_4^+	17.01	4.52	29.40
	Cl^-	9.06	2.72	15.28
	Na^+	0.93	0.42	1.44
	Mg^{2+}	0.25	0.21	0.29
碳组分/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	EC	8.34	2.67	12.56
	OC	26.01	9.94	40.38
微量元素/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	K	1.84	0.60	3.03
	Ca	0.62	0.52	0.71
	Cr	0.04	0.03	0.05
	Mn	0.10	0.05	0.15
	Fe	1.16	0.82	1.49
	Ni	0.01	0.01	0.01
	Cu	0.04	0.01	0.07
	Zn	0.38	0.10	0.66
	As	0.03	0.01	0.06
	Se	0.02	0.01	0.03
	Ag	0.01	0.00	0.01
	Cd	0.01	0.01	0.01
	Ba	0.09	0.04	0.15
	Hg	0.01	0.00	0.01
Pb	0.17	0.04	0.29	

通过清洁天与污染天对比发现，污染天 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 质量浓度分别为清洁天其质量浓度的7.04、5.76和6.51倍，清洁天和污染天三者质量浓度之和(SNA)在 $\text{PM}_{2.5}$ 中占比分别为36.89%和41.99%。污染天 Cl^- 质量浓度均值 ($15.28 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 明显高于清洁天 Cl^- 质量浓度均值 ($2.72 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)，清洁天和污染天 Cl^- 质量浓度在水溶性离子总和中分别占比为13.25%和12.57%， Cl^- 作为燃煤源的特征组分，说明太原市城区受燃煤影响较大^[19]。清洁天总碳(total carbonaceous, TC)组分在 $\text{PM}_{2.5}$ 中占比(29.96%)明显高于污染天总碳组分在 $\text{PM}_{2.5}$ 中占比(22.07%)，说明清洁天碳组分对 $\text{PM}_{2.5}$ 贡献高于污染天，由 OC 和 EC 浓度均值变化来看，污染天 OC 和 EC 质量浓度分别为清洁天的4.06和4.70倍，污染天 EC 在 TC 中占比(23.72%)高于清洁天 EC 在 TC 中占比(21.20%)，而污染天 OC 在 TC 中占比(76.28%)较清洁天小(78.80%)，表明污染天碳气溶胶一次

排放源贡献增大，该结果与沙丹丹等^[29]的研究结果一致。

对于 SO_2 和 NO_2 等气态前体物的二次气溶胶转化情况，可通过硫的氧化速率(SOR)和氮的氧化速率(NOR)来反映，其数值越高，说明二次转化程度越高^[30]。具体计算公式如下：

$$\text{SOR} = c(\text{SO}_4^{2-})/[c(\text{SO}_4^{2-}) + c(\text{SO}_2)] \quad (3)$$

$$\text{NOR} = c(\text{NO}_3^-)/[c(\text{NO}_3^-) + c(\text{NO}_2)] \quad (4)$$

式中， c 表示浓度，单位为 $\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$ 。计算结果显示，污染天 SOR(0.12)和 NOR(0.19)明显高于清洁天 SOR(0.08)和 NOR(0.09)，说明污染天二次转化程度更高，可能是污染天 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 增幅较大的重要原因^[6]。结合 SOR、NOR 与气象参数(相对湿度和温度)相关性分析，发现相对湿度对 SOR 和 NOR 的相关性最为显著 (R^2 为 0.70 和 0.59, $P < 0.01$)，说明相对湿度可能会影响 SO_2 和 NO_2 的二次转化，且非均相反应在二次污染物形成过程中的作用更强^[31]。

2.3 相关性分析

2.3.1 水溶性离子间相关性分析

为了探究观测期间二次气溶胶的主要存在形式，对离子间相关性进行分析^[19]。有研究表明，大气中二次气溶胶存在形式主要包括 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4HSO_4 、 NH_4NO_3 和 NH_4Cl 等，由其挥发性可知， $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 挥发性最小， NH_4Cl 挥发性最高。因此，假设 NH_4^+ 首先与 SO_4^{2-} 结合，过量 NH_4^+ 与 NO_3^- 和 Cl^- 结合，且当过量 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 反应时， SO_4^{2-} 存在形式以 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 为主^[19,32-34]。图2分别为 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 、 $\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$ 相关性曲线，从中可以看出，清洁天与污染天 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 、 $\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$ 相关性斜率均大于1，表明大气中 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 形成化合物后表现仍有剩余，剩余 NH_4^+ 则可能与 Cl^- 继续反应，因此，判断太原市城区清洁天与污染天二次气溶胶存在形式均以 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 和 NH_4NO_3 为主。另外，清洁天离子间相关性曲线斜率均大于污染天，说明清洁天较污染天 NH_4^+ 更为充足，并且污染天 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 的增长速率较 NH_4^+ 更快。

2.3.2 OC 与 EC 相关性分析

OC 主要来源于直接排放的一次有机碳和经过化学反应生成的二次有机碳(SOC)，而 EC 则主要来源于化石燃料等不完全燃烧的一次排放，其相关性大小可用于判断二者是否具有同源性^[35,36]。由图3可以看出，清洁天 OC 与 EC 相关性 ($R^2 = 0.766$) 高于污染天相关性 ($R^2 = 0.69$)，且当 OC 质量浓度

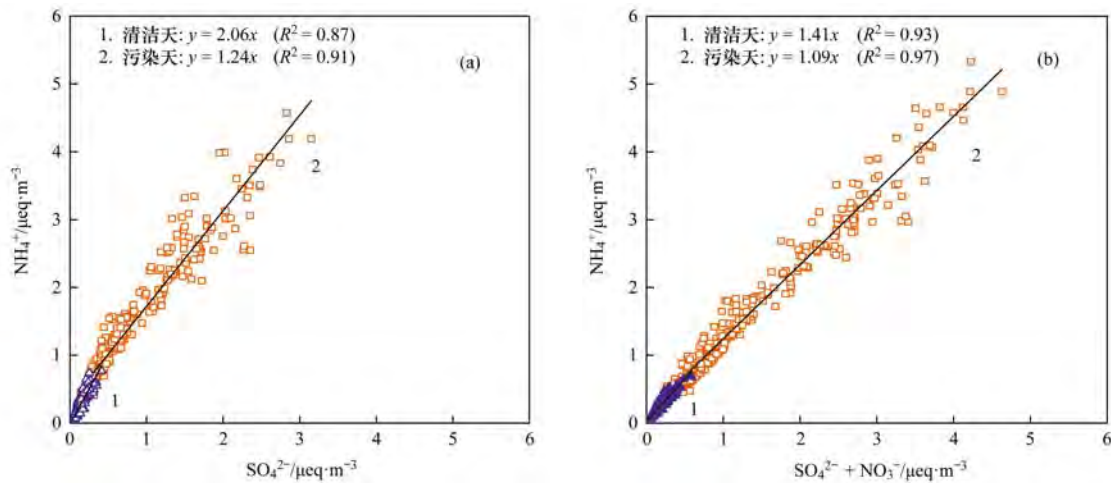


图2 清洁天与污染天 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 、 $\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$ 相关性分析

Fig. 2 Analysis of the correlation between NH_4^+ and SO_4^{2-} and between NH_4^+ and $\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$ on clean and polluted days

高于 $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时, 相关系数 R^2 为 0.17, 当 OC 质量浓度高于 $60 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时, R^2 为 0.06, 说明污染天 OC、EC 来源更加复杂, 这与以往其它研究结果相似^[36]. 有研究表明, 当碳气溶胶中存在 SOC 的生成时 ($\text{OC}/\text{EC} > 2$), 可能会影响 OC 与 EC 的相关性, 本研究中清洁天和污染天 OC/EC 比值分别为 4.70 和 3.37, 表明清洁天和污染天均存在二次有机碳生成的可能性^[36,37]. 基于 OC/EC 最小比值法对 SOC 进行估算^[38], 为减小计算误差, 对 OC/EC 比值大小进行排序后, 选取比值最小的前 5% 所对应的 OC 和 EC 值做相关性分析, 取其斜率作为 OC/EC 最小比值, 结果显示, 污染天 SOC 质量浓度 ($16.21 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 明显高于清洁天 ($3.75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), 说明污染天 SOC 的显著增长可能是影响 OC 和 EC 相关性较差的重要原因.

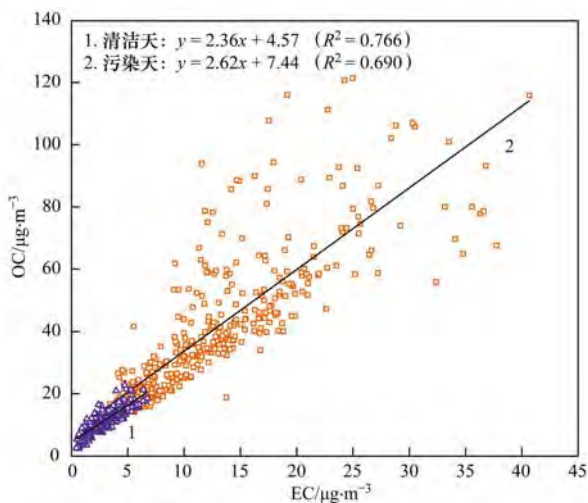


图3 清洁天与污染天 OC 和 EC 相关性分析

Fig. 3 Analysis of the correlation between OC and EC on clean and polluted days

2.4 PM_{2.5} 来源解析

本研究基于在线观测的颗粒物组分数据, 采用

PMF 5.0 定量解析不同污染源对 PM_{2.5} 贡献, 将样品矩阵 (560×23) 及对应组分不确定度矩阵输入模型, 多次运行后, 确定污染源类别. 运行结果显示, 实测 PM_{2.5} 质量浓度与计算 PM_{2.5} 质量浓度相关性较高 (斜率为 0.998, $R^2 = 0.98$), 且 $Q_{\text{目标值}}/Q_{\text{理论值}} = 1.02$, 说明本次源解析结果是合理的.

PMF 解析 PM_{2.5} 源成分谱如图 4 示, 依据不同特征组分对 5 种因子进行来源识别. 因子 1 中以 NO_3^- 、EC 源贡献较高, NO_x 和 EC 主要来源于机动车尾气的排放, 而 NO_3^- 主要来源于 NO_x 的二次转化^[39,40], 因此, 判断因子 1 为机动车源; 因子 2 中 Cl^- 、EC、OC、Cu、Zn、As 和 Se 源贡献较高, 通常 Cl^- 可作为燃煤排放的特征组分^[41], 另外 As 和 Se 也可作为燃煤标识元素^[40,41], 因此, 判断因子 2 为燃煤源; 因子 3 中以 Mg^{2+} 、Ca、Ag 和 Cd 源贡献较高, 其中 Mg^{2+} 、Ca 为典型扬尘特征组分^[19,42], 判断因子 3 为扬尘源; 因子 4 中以 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 等二次离子贡献突出, 表现为明显的二次源特征^[14], 判断因子 4 为二次源; 因子 5 中以 Cr、Ni、Fe、Mn 源贡献较高, Cr、Ni、Fe、Mn 主要来源于人为排放, 其中 Cr、Ni、Mn 被认为与金属制造业有关^[42], 而 Fe、Mn 常被认为来源于炼钢工业^[43], 因此, 将因子 5 识别为工艺过程源. 综上所述, 识别 2017 年 1 月太原城区 PM_{2.5} 主要污染源为: 机动车源、燃煤源、扬尘源、二次源和工艺过程源.

基于源解析结果, 太原市城区不同污染水平下各类污染源对 PM_{2.5} 的贡献情况如图 5 所示. 从中可以看出, 清洁天 PM_{2.5} 主要污染源为燃煤源 (22.79%)、机动车源 (22.15%) 和扬尘源 (21.11%), 而污染天主要污染源为二次源 (35.06%)、燃煤源 (30.19%) 和机动车源

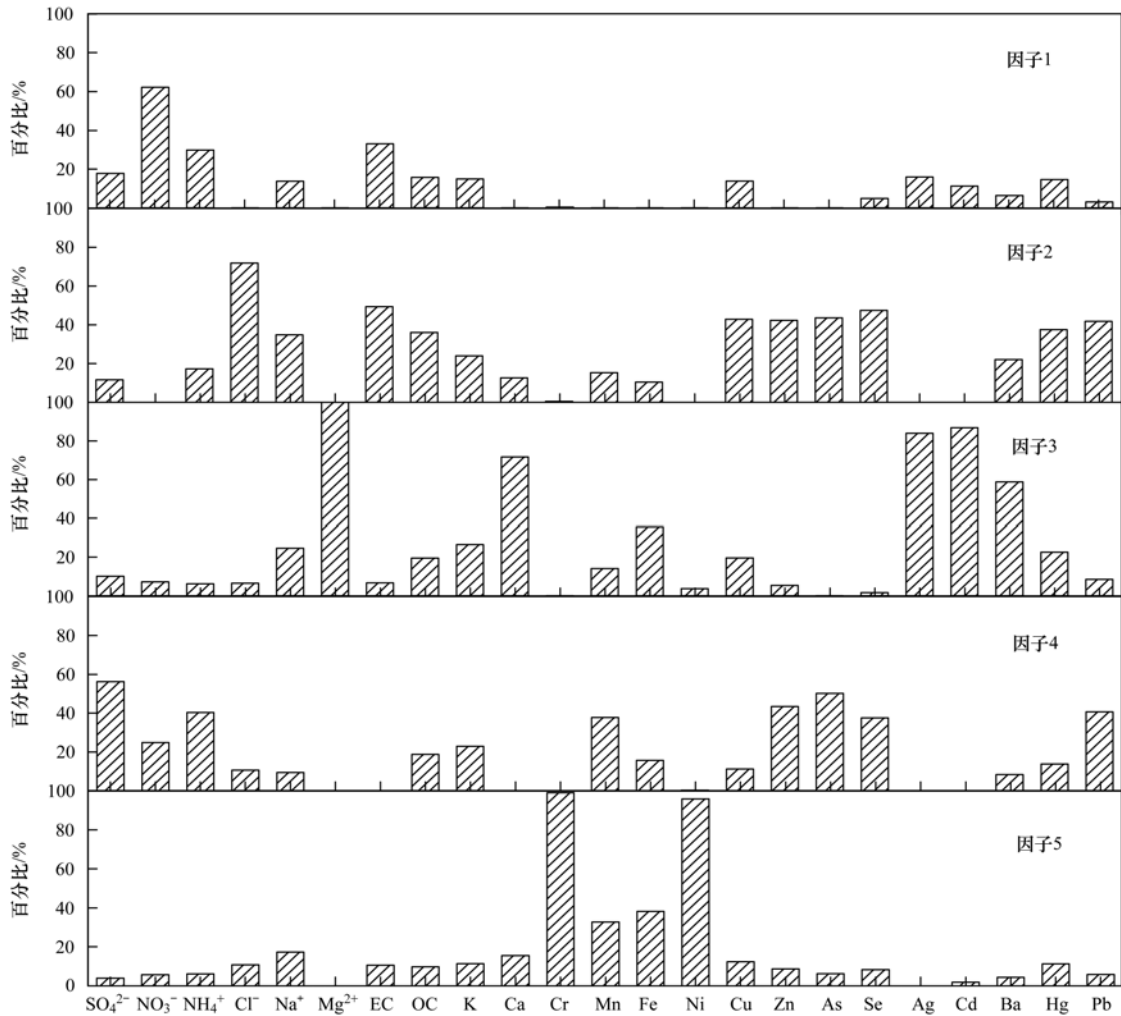


图4 2017年1月太原城区大气PM_{2.5}源成分谱

Fig. 4 Sources profiles of PM_{2.5} during January 2017 in Taiyuan urban area

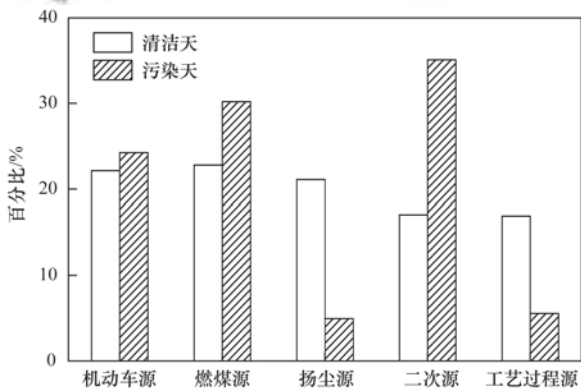


图5 不同污染条件下各类污染源对PM_{2.5}贡献

Fig. 5 Sources contributions of PM_{2.5} under different pollution conditions

(24.25%)，通过对比发现，污染天二次源对PM_{2.5}贡献显著增加，说明二次颗粒物是造成污染天PM_{2.5}上升的重要因素，主要原因可能是不利的气象条件及较强的非均相反应作用造成一次排放的SO₂、NO₂转化为二次颗粒物的速度加快导致。污染天燃煤源对PM_{2.5}贡献较清洁天增长显著，而清

洁天和污染天机动车源对PM_{2.5}贡献变化不明显，表明太原市城区静稳天气条件下燃煤源排放的污染物积累后对PM_{2.5}影响更大。低风速可能是导致污染天扬尘源对PM_{2.5}贡献低于清洁天对PM_{2.5}贡献的主要原因。工艺过程源在污染天对PM_{2.5}的贡献远低于清洁天，反映了污染天采取的应急措施对降低工业污染源直接排放的影响是有效的。因此，针对降低太原市污染天的污染程度，应在加强太原市污染天机动车和燃煤等一次排放源管控的基础上，更应该注意对二次源前体的控制。

3 结论

(1)2017年1月太原城区PM_{2.5}质量浓度均值为146.87 μg·m⁻³，其中污染天PM_{2.5}质量浓度均值高达239.92 μg·m⁻³，为清洁天的5.70倍，约为我国《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)二级标准(75 μg·m⁻³)限值的3.20倍，说明观测期间太原城区PM_{2.5}污染较为严重。

(2)SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Cl⁻、OC和EC均为

PM_{2.5} 中主要化学组分, SO₄²⁻ 和 Cl⁻ 质量浓度分别占水溶性离子浓度总和的 34.59% 和 12.68%, 明显高于北京、天津、南京等城市, 观测期间 NO₃⁻/SO₄²⁻ 比值为 0.78, 说明太原市城区燃煤源对大气 PM_{2.5} 贡献较为突出。

(3) 污染天硫的氧化速率 (SOR) 和氮的氧化速率 (NOR) 分别为 0.12 和 0.19, 明显高于清洁天硫的氧化速率 (0.08) 和氮氧化速率 (0.09), 说明污染天二次转化程度更高; 清洁天和污染天二次气溶胶主要存在形式均为 (NH₄)₂SO₄、NH₄NO₃; 污染天 OC 和 EC 同源性低于清洁天二者同源性, 污染天 SOC (16.21 μg·m⁻³) 的显著增长可能是影响其同源性的的重要因素。

(4) PMF 解析结果表明, 污染天二次源 (35.06%)、燃煤源 (30.19%) 和机动车源 (24.25%) 较清洁天分别增长 18.03%、7.39% 和 2.10%, 表明太原市城区污染天在管控机动车和燃煤等一次排放源的基础上, 更应该注意对二次源前体物的控制。

参考文献:

- [1] 吴兑. 近十年中国灰霾天气研究综述[J]. 环境科学学报, 2012, 32(2): 257-269.
Wu D. Hazy weather research in China in the last decade: A review[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2012, 32(2): 257-269.
- [2] 王跃思, 姚利, 王莉莉, 等. 2013 年元月我国中东部地区强霾污染成因分析[J]. 中国科学: 地球科学, 2014, 44(1): 15-26.
Wang Y S, Yao L, Wang L L, et al. Mechanism for the formation of the January 2013 heavy haze pollution episode over central and eastern China[J]. Science China Earth Sciences, 2014, 57(1): 14-25.
- [3] 白志鹏, 蔡斌彬, 董海燕, 等. 灰霾的健康效应[J]. 环境污染与防治, 2006, 28(3): 198-201.
- [4] 贺克斌, 杨复沫, 段凤魁, 等. 大气颗粒物与区域复合污染[M]. 北京: 科学出版社, 2011.
- [5] 郑玫, 张延君, 闫才青, 等. 中国 PM_{2.5} 来源解析方法综述[J]. 北京大学学报(自然科学版), 2014, 50(6): 1141-1154.
Zheng M, Zhang Y J, Yan C Q, et al. Review of PM_{2.5} source apportionment methods in China[J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Pekinensis, 2014, 50(6): 1141-1154.
- [6] Zhang Y, Huang W, Cai T Q, et al. Concentrations and chemical compositions of fine particles (PM_{2.5}) during haze and non-haze days in Beijing[J]. Atmospheric Research, 2016, 174-175: 62-69.
- [7] Sun Z Q, Mu Y J, Liu Y J, et al. A comparison study on airborne particles during haze days and non-haze days in Beijing[J]. Science of the Total Environment, 2013, 456-457: 1-8.
- [8] 张程, 于兴娜, 安俊琳, 等. 南京北郊不同大气污染程度下气溶胶化学组分特征[J]. 环境科学, 2017, 38(12): 4932-4942.
Zhang C, Yu X N, An J L, et al. Aerosol chemical characteristics for different air pollution levels in north suburban Nanjing[J]. Environmental Science, 2017, 38(12): 4932-4942.
- [9] Zhang Q, Shen Z X, Cao J J, et al. Variations in PM_{2.5}, TSP, BC, and trace gases (NO₂, SO₂, and O₃) between haze and non-haze episodes in winter over Xi'an, China[J]. Atmospheric Environment, 2015, 112: 64-71.
- [10] Tian S L, Pan Y P, Wang Y S. Size-resolved source apportionment of particulate matter in urban Beijing during haze and non-haze episodes[J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2015, 15(6): 9405-9443.
- [11] Sulong N A, Latif M T, Khan M F, et al. Source apportionment and health risk assessment among specific age groups during haze and non-haze episodes in Kuala Lumpur, Malaysia[J]. Science of the Total Environment, 2017, 601-602: 556-570.
- [12] 王念飞, 陈阳, 郝庆菊, 等. 苏州市 PM_{2.5} 中水溶性离子的季节变化及来源分析[J]. 环境科学, 2016, 37(12): 4482-4489.
Wang N F, Chen Y, Hao Q J, et al. Seasonal variation and source analysis of the water-soluble inorganic ions in fine particulate matter in Suzhou[J]. Environmental Science, 2016, 37(12): 4482-4489.
- [13] 周瑶瑶, 马嫣, 郑军, 等. 南京北郊冬季霾天 PM_{2.5} 水溶性离子的污染特征与消光作用研究[J]. 环境科学, 2015, 36(6): 1926-1934.
Zhou Y Y, Ma Y, Zheng J, et al. Pollution characteristics and light extinction effects of water-soluble ions in PM_{2.5} during winter hazy days at north suburban Nanjing[J]. Environmental Science, 2015, 36(6): 1926-1934.
- [14] 贾小花, 解静芳, 马翔, 等. 太原市冬季 PM_{2.5} 水溶性组分污染特征分析[J]. 中国环境科学, 2013, 33(4): 599-604.
Jia X H, Xie J F, Ma X, et al. Analysis of water-soluble constituents in winter of PM_{2.5} in Taiyuan City[J]. China Environmental Science, 2013, 33(4): 599-604.
- [15] He Q S, Guo W D, Zhang G X, et al. Characteristics and seasonal variations of carbonaceous species in PM_{2.5} in Taiyuan, China[J]. Atmosphere, 2015, 6(6): 850-862.
- [16] 曹玲娟, 耿红, 姚晨婷, 等. 太原市冬季灰霾期间大气细颗粒物化学成分特征[J]. 中国环境科学, 2014, 34(4): 837-843.
Cao L X, Geng H, Yao C T, et al. Investigation of chemical compositions of atmospheric fine particles during a wintertime haze episode in Taiyuan City[J]. China Environmental Science, 2014, 34(4): 837-843.
- [17] He Q S, Yan Y L, Guo L L, et al. Characterization and source analysis of water-soluble inorganic ionic species in PM_{2.5} in Taiyuan city, China[J]. Atmospheric Research, 2017, 184: 48-55.
- [18] 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.
- [19] 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.
- [20] Liu B S, Yang J M, Yuan J, et al. Source apportionment of atmospheric pollutants based on the online data by using PMF and ME2 models at a megacity, China[J]. Atmospheric Research, 2017, 185: 22-31.
- [21] 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.
- [22] Paatero P, Hopke P K. Rotational tools for factor analytic models [J]. *Journal of Chemometrics*, 2009, **23**(2): 91-100.
- [23] 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.
- [24] Qiu X H, Duan L, Gao J, *et al.* Chemical composition and source apportionment of PM₁₀ and PM_{2.5} in different functional areas of Lanzhou, China [J]. *Journal of Environmental Science*, 2016, **40**: 75-83.
- [25] 李艳红, 赵彩萍, 荆肖军, 等. 太原地区灰霾天气特征及影响因子分析 [J]. *气候与环境研究*, 2014, **19**(2): 200-208.
Li Y H, Zhao C P, Jing X J, *et al.* Characteristics of dust haze in Taiyuan and its causative factors [J]. *Climatic and Environmental Research*, 2014, **19**(2): 200-208.
- [26] Han B, Zhang R, Yang W, *et al.* Heavy haze episodes in Beijing during January 2013: Inorganic ion chemistry and source analysis using highly time-resolved measurements from an urban site [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **544**: 319-329.
- [27] 元洁, 刘保双, 程渊, 等. 2017年1月天津市PM_{2.5}化学组分特征及高时间分辨率来源解析研究 [J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(3): 1090-1101.
Yuan J, Liu B S, Cheng Y, *et al.* Study on characteristics of PM_{2.5} and chemical components and source apportionment of high temporal resolution in January 2017 in Tianjin urban area [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(3): 1090-1101.
- [28] 汤莉莉, 汤蕾, 花艳, 等. 苏南三市秋冬季PM_{2.5}中水溶性离子和元素特征及源解析 [J]. *大气科学学报*, 2015, **38**(5): 686-693.
Tang L L, Tang L, Hua Y, *et al.* Characteristics and source apportionment of water-soluble ions and elements in PM_{2.5} in three cities of South Jiangsu in autumn and winter [J]. *Transactions of Atmospheric Sciences*, 2015, **38**(5): 686-693.
- [29] 沙丹丹, 王红磊, 朱彬, 等. 冬季PM_{2.5}中含碳气溶胶的污染特征——长江三角洲地区一次区域重污染过程分析 [J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(10): 3611-3622.
Sha D D, Wang H L, Z B, *et al.* Pollution characteristics of carbonaceous aerosols in PM_{2.5} during a regional heavy air pollution episode in winter in the Yangtze River Delta [J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(10): 3611-3622.
- [30] Ohta S, Okita T. A chemical characterization of atmospheric aerosol in Sapporo [J]. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1990, **24**(4): 815-822.
- [31] Zhang R, Sun X S, Shi A J, *et al.* Secondary inorganic aerosols formation during haze episodes at an urban site in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **177**: 275-282.
- [32] Seinfeld J H, Pandis S N, Noone K. *Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change* [M]. New York: Wiley, 1998.
- [33] Tan T Y, Hu M, Li M R, *et al.* New insight into PM_{2.5} pollution patterns in Beijing based on one-year measurement of chemical compositions [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **621**: 734-743.
- [34] Wang Y, Zhuang G S, Tang A H, *et al.* The ion chemistry and the source of PM_{2.5} aerosol in Beijing [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(21): 3771-3784.
- [35] 田鹏山, 曹军骥, 韩永明, 等. 关中地区冬季PM_{2.5}中碳气溶胶的污染特征及来源解析 [J]. *环境科学*, 2016, **37**(2): 427-433.
Tian P S, Cao J J, Han Y M, *et al.* Pollution characteristics and sources of carbonaceous aerosol in PM_{2.5} during winter in Guanzhong area [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(2): 427-433.
- [36] 刘凤娴, 彭林, 白慧玲, 等. 朔州市市区PM_{2.5}中元素碳、有机碳的分布特征 [J]. *环境科学*, 2015, **36**(3): 787-793.
Liu F X, Peng L, Bai H L, *et al.* Characteristics of organic carbon and elemental carbon in PM_{2.5} in Shuozhou City [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(3): 787-793.
- [37] Turpin B J, Lim H J. Species contributions to PM_{2.5} mass concentrations: Revisiting common assumptions for estimating organic mass [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2001, **35**(1): 602-610.
- [38] Castro L M, Pio C A, Harrison R M, *et al.* Carbonaceous aerosol in urban and rural European atmospheres; estimation of secondary organic carbon concentrations [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(17): 2771-2781.
- [39] Tao J, Gao J, Zhang L, *et al.* PM_{2.5} pollution in a megacity of southwest China: source apportionment and implication [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14**(16): 8679-8699.
- [40] Hsu S C, Liu S C, Huang Y T, *et al.* Long-range southeastward transport of Asian biomass pollution: Signature detected by aerosol potassium in Northern Taiwan [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2009, **114**(D14): D14301.
- [41] Feng J L, Yu H, Su X F, *et al.* Chemical composition and source apportionment of PM_{2.5} during Chinese Spring Festival at Xinxiang, a heavily polluted city in North China: Fireworks and health risks [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **182**: 176-188.
- [42] Liu B S, Song N, Dai Q L, *et al.* Chemical composition and source apportionment of ambient PM_{2.5} during the non-heating period in Taian, China [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **170**: 23-33.
- [43] Tan J H, Zhang L M, Zhou X M, *et al.* Chemical characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in Lanzhou, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **601-602**: 1743-1752.

CONTENTS

Source Apportionment and Mixing State of Single Particles in the Nanjing Jiangbei New Area	YU Xing-na, SHI Zheng, MA Jia, <i>et al.</i> (1521)
Characteristics of Carbonaceous Aerosol Pollution in PM _{2.5} in Xi'an	MU Zhen, CHEN Qing-cai, WANG Yu-qin, <i>et al.</i> (1529)
Chemical Composition Characteristics and Source Apportionment of PM _{2.5} During Winter in Taiyuan	LIU Su, MA Tong, YANG Yan, <i>et al.</i> (1537)
Seasonal Variation and Source Analysis of Water-soluble Inorganic Ions in Fine Particulate Matter in Zhengzhou	YAN Guang-xuan, ZHANG Jing-wen, LEI Hao-jie, <i>et al.</i> (1545)
Elemental Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric PM _{2.5} in a Suburb of Zhuhai City	YANG Yi-hong, JIA Yan, BIAN Guo-jian, <i>et al.</i> (1553)
Impact of a Dust Event on the Size Distribution of Metal Elements in Atmospheric Aerosols at a Coastal Region and over the Ocean	JIN Tong-jun, QI Jian-hua, XI Zi-yan, <i>et al.</i> (1562)
CALPUFF Modeling of the Influence of Typical Industrial Emissions on PM _{2.5} in an Urban Area Considering the SOA Transformation Mechanism	GAO Shuang, BO Xin, MA Yan, <i>et al.</i> (1575)
Variation in Pollutant Concentrations and Correlation Analysis with the Vegetation Index in Beijing-Tianjin-Hebei	SUN Shuang, LI Ling-jun, ZHAO Wen-ji, <i>et al.</i> (1585)
Estimation of Coal Consumption and the Emission of Related Contaminants in the Plain Area Around Beijing During 2015-2017	ZHAO Wen-hui, LI Ling-jun, LU Hai-feng, <i>et al.</i> (1594)
Column-integrated Aerosol Optical Properties Determined Using Ground-based Sun Photometry Measurements in the Hangzhou Region	QI Bing, CHE Hui-zheng, XU Ting-ting, <i>et al.</i> (1604)
Speciated VOCs Emission Inventory and Ozone Formation Potential in Sichuan Province	ZHOU Zi-hang, DENG Ye, TAN Qin-wen, <i>et al.</i> (1613)
Characterization of Volatile Organic Compounds from Cooking Emissions	GAO Ya-qin, WANG Hong-li, XU Rui-zhe, <i>et al.</i> (1627)
Analysis of Peroxyacetyl Nitrate and Ozone During a Typical Photochemical Pollution Process at the Panyu Atmospheric Composition Station	ZOU Yu, DENG Xue-jiao, LI Fei, <i>et al.</i> (1634)
Characteristics and Interannual Variation of Chemical Components in Typical Road Dust in Beijing	HU Yue-qi, LI Meng, YAN Xu, <i>et al.</i> (1645)
Sources Analysis and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the PM _{2.5} Fraction of Fugitive Dust in Nanchang City	YU Rui-lian, ZHENG Quan, LIU Xian-rong, <i>et al.</i> (1656)
Methods and Application of Road Fugitive Dust Emission Factor Localization	FAN Shou-bin, YANG Tao, WANG Kai, <i>et al.</i> (1664)
Characterization of Tailpipe Emissions from in-use Excavators	MA Shuai, ZHANG Kai-shan, WANG Fan, <i>et al.</i> (1670)
Microbial Properties of Different Size Aerosols at Human Average Respiratory Height During Fog-haze Days	YANG Tang, HAN Yun-ping, LI Lin, <i>et al.</i> (1680)
Modification and Performance Tests of Visibility Parameterizations for Haze Days	ZHAO Xiu-juan, LI Zi-ming, XU Jing (1688)
Application of Support Vector Machine Regression in Ozone Forecasting	SU Xiao-qian, AN Jun-lin, ZHANG Yu-xin, <i>et al.</i> (1697)
Analysis of PHEV CO ₂ Emission Based on China's Grid Structure and Travelling Patterns in Mega Cities	HAO Xu, WANG He-wu, LI Wei-feng, <i>et al.</i> (1705)
Sources of Nitrate in Groundwater and Its Environmental Effects in Karst Trough Valleys: A Case Study of an Underground River System in the Longfeng Trough Valley, Chongqing	DUAN Shi-hui, JIANG Yong-jun, ZHANG Yun-zhu, <i>et al.</i> (1715)
Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Phthalate Esters (PAEs) in the Surface Water of Jiaozhou Bay	LIU Cheng, SUN Cui-zhu, ZHANG Ge, <i>et al.</i> (1726)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Sediments of Zhanjiang Bay	PENG Shi-yun, PENG Ping-an, KONG De-ming, <i>et al.</i> (1734)
Analysis of the Optical Properties and Factors Influencing DOM in an Ecological Purification System: A Case Study of Yanlong Lake in Spring	MA Rui, LI Xuan, WANG Lian, <i>et al.</i> (1742)
Analysis of the Relationship Between Dissolved Organic Matter (DOM) and Watershed Land-use Based on Three-dimensional Fluorescence-Parallel Factor (EEM-PARAFAC) Analysis	LI Yun, WEI Hong-jie, WANG Kan, <i>et al.</i> (1751)
Analysis of the Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Emissions from Agricultural Non-point Sources on Hanfeng Lake Basin	XIE Jing-chao, ZHAO Xiu-lan, HE Bing-hui, <i>et al.</i> (1760)
Simulation of the Migration and Leaching of Nitrate Nitrogen in the Farmland Soil Profile in a Hilly Area of Taihang Mountain with the RZWQM Model	ZHENG Wen-bo, WANG Shi-qin, LIU Bing-xia, <i>et al.</i> (1770)
Spatial Distribution Characteristics of Nutrients and Chlorophyll A in the Lancang River Basin Under Cascade Reservoirs	CHENG Bao, WANG Xue, MA Jin-chuan, <i>et al.</i> (1779)
Nutrient Distribution of Overlying Water in Tidal Marshes in Five Estuaries and Bays of the Fuzhou Region in Autumn	HE Lu-lu, YANG Ping, TAN Li-shan, <i>et al.</i> (1788)
Distribution and Environmental Risk of Pharmaceutically Active Compounds in the Traditionally Aqueous Phase of Effluent-receiving Rivers	WANG Shuo, LIU Jian-chao, ZHENG Chao-ya, <i>et al.</i> (1797)
Effects of a Green Roof on Stormwater Regulation and Cost-benefit Analysis	LI Jun-sheng, YIN Hai-wei, KONG Fan-hua, <i>et al.</i> (1803)
Ultrasonically Activated Persulfate Degrades Typical Odors in Water	SUN Xin, SUN Jie, LI Peng-fei, <i>et al.</i> (1811)
Metal Organic Framework MIL-53(Fe) as a Photocatalyst for Visible-light Catalytic Reduction of U(VI) in Aqueous Solution	YAN Zeng-yuan, XI Hai-ling, YUAN Li-yong (1819)
Effects and Differences of the Release of Dissolved Organic and Inorganic Phosphorus in Different Sediments Covered by Different Materials of Erhai Lake	GONG Jia-jian, NI Zhao-kui, XIAO Shang-bin, <i>et al.</i> (1826)
Phosphate Removal Using Rice Husk Biochars Modified with Lanthanum Hydroxide	XU Run, SHI Cheng-hao, TANG Qian, <i>et al.</i> (1834)
Characteristics and Heavy Metal Adsorption Performance of Sewage Sludge-derived Biochar from Co-pyrolysis with Transition Metals	CHEN Tan, ZHOU Ze-yu, MENG Rui-hong, <i>et al.</i> (1842)
Adsorption, Reclaim, and Regeneration of Cd by Magnetic Calcium Dihydrogen Phosphate Nanoparticles	LI Yu-jiao, YANG Zhi-min, CHEN Yu-cheng, <i>et al.</i> (1849)
Effect of Hematite on the Inhibition of Hydrogen Sulfide Formation and Its Mechanism During Anaerobic Digestion and Methanogenesis of Sulfate Wastewater	HUANG Shao-fu, YE Jie, ZHOU Shun-gui (1857)
Pollutant Removal Performance and Membrane Fouling Characteristics in Marine Aquaculture Wastewater Treatment by a Microalgae Membrane Reactor	MA Hang, LI Zhi-peng, LIU Feng, <i>et al.</i> (1865)
Pre-precipitation of Sewage-SNAD Granular Sludge Process Test	LI Dong, CUI Ya-qian, ZHAO Shi-xun, <i>et al.</i> (1871)
Impact of Actual Domestic Sewage and Simulated Wastewater on an Aerobic Granular Sludge System	LI Dong, WANG Ying-qiao, LI Shuai, <i>et al.</i> (1878)
Nitrogen Removal Performance of a Sulfur/Pyrite Autotrophic Denitrification System	ZHOU Ya, MAI Wen-ning, LIANG Jia-wei, <i>et al.</i> (1885)
Nitrogen Removal by Heterotrophic Nitrifying Bacterium <i>Pseudomonas putida</i> YH and Its Kinetic Characteristics	WANG Xu-hui, YANG Lei, REN Yong-xiang, <i>et al.</i> (1892)
Effect of Sludge Retention Time and pH on the Denitrifying Phosphorus Removal Process	WEI Jia-min, HUANG Hui-min, CHENG Cheng, <i>et al.</i> (1900)
Microbial Community of Granular Sludge in an ANAMMOX-EGSB Reactor Under Saline Conditions	WANG Han, LI Han-xiang, CHEN You-peng, <i>et al.</i> (1906)
Effect of Intracellular Carbon Source (PHA) Storage on the Mixed Growth Microbial Community Resistance to Low Temperature	YANG Jian-peng, ZHANG Jian, TIAN Qing, <i>et al.</i> (1914)
Contents and Forms of Phosphorus in the Municipal Sewage Sludge of China	WANG Chao, LIU Qing-wei, ZHI Yin, <i>et al.</i> (1922)
Contamination Characteristics and Safety Risk Assessment of Perfluorinated Alkylated Substances in Aquatic Products from Guangzhou	WANG Xu-feng, WANG Qiang, LI Zhi-guang, <i>et al.</i> (1931)
Characteristics of the Dissolved Nitrous Oxide (N ₂ O) Concentrations and Influencing Factors in a Representative Agricultural Headwater Stream in the Upper Reach of the Yangtze River	TIAN Lin-lin, WANG Zheng, HU Lei, <i>et al.</i> (1939)
CH ₄ Uptake in Different Saline-alkaline Soils in Hetao Irrigation District, Inner Mongolia	YANG Wen-zhu, JIAO Yan, YANG Ming-de, <i>et al.</i> (1950)
Allocation and Stabilization Responses of Rice Photosynthetic Carbon in the Plant-Soil System to Phosphorus Application	WANG Ying-ying, XIAO Mou-liang, ZHANG Yun, <i>et al.</i> (1957)
Effect of Soil Moisture and Temperature on the Soil Inorganic Carbon Release of Brown Limestone Soil in the Karst Region of Southwestern China	XU Xue-chi, HUANG Yuan, HE Xun-yang, <i>et al.</i> (1965)
Temporal and Spatial Dynamics of Soil Microbial Biomass Carbon and Its Influencing Factors on an Eroded Slope in the Hilly Loess Plateau Region	QIN Qian, ZHU Shi-shuo, XIA Bin, <i>et al.</i> (1973)
Composition, Characteristics, and Accumulation of Antibiotics in the Soil in Agricultural Land	KONG Chen-chen, ZHANG Shi-wen, NIE Chao-jia, <i>et al.</i> (1981)
VOCs and Odors Control and Development in Pharmaceutical Fermentation Industry	WANG Dong-sheng, ZHU Xin-meng, YANG Xiao-fang, <i>et al.</i> (1990)