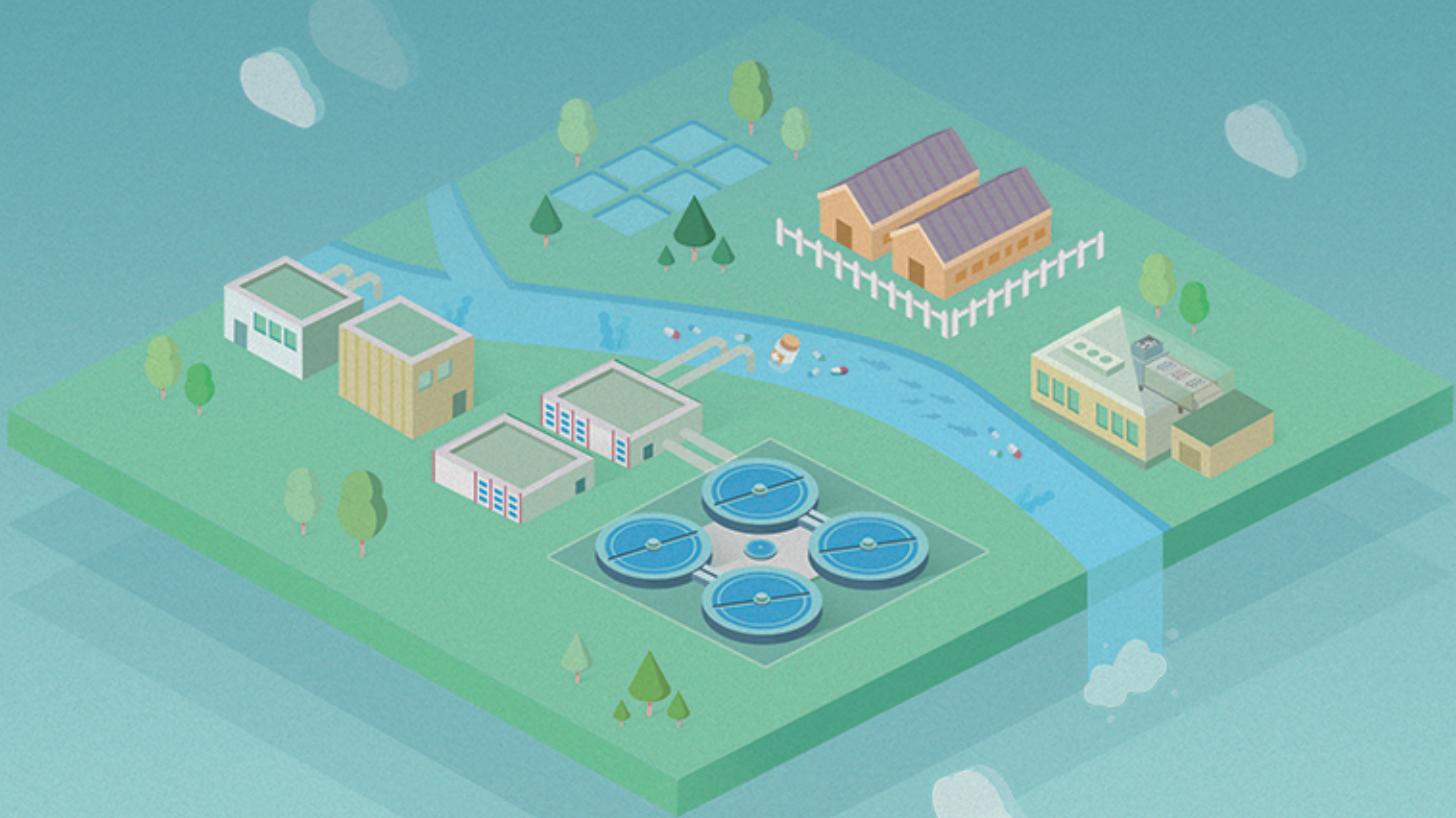


长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价

武俊梅，魏琳，彭晶倩，何鹏，施鸿媛，汤冬梅，吴振斌



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社



2022年6月

第43卷 第6期
Vol.43 No.6

目 次

- COVID-19 管控期间气象条件变化对京津冀 PM_{2.5} 浓度影响 邱雨露, 陈磊, 朱佳, 马志强, 李梓铭, 郭恒, 唐颖潇(2831)
新冠疫情管控措施对郑州市 PM_{2.5} 浓度、粒径分布、组分和来源的影响 黄兵役, 王申博, 和兵, 薛若雨, 高更宇, 张瑞芹(2840)
COVID-19 管控期间苏州市 PM_{2.5} 中金属元素浓度变化及来源解析 缪青, 杨倩, 吴也正, 魏恒, 周民锋, 张晓华, 邹强(2851)
2015~2019 年南京北郊碳质气溶胶组成变化 谢添, 曹芳, 章炎麟,
林煜祺, 范美益, 宋文怀, 鲍孟盈, 项妍琨, 赵祝钰, 杨笑影, 谢锋, 张煜娴, 俞浩然, 张子金, 邢佳莉(2858)
基于受体和化学传输的综合模型解析重庆 PM_{2.5} 来源 彭超, 李振亮, 曹云擎, 蒲茜, 方维凯, 王晓宸, 汪凌韬(2867)
保定市冬季 PM_{2.5} 的氧化潜势特征及其影响来源分析 吴继炎, 杨池, 张春燕, 范美益, 吴爱坪, 章炎麟(2878)
南京江北新区 PM_{2.5} 中水溶性有机氮的污染特征及其来源 关璐, 丁铖, 张毓秀, 胡建林, 于兴娜(2888)
广西十万大山背景点 PM_{2.5} 中非极性有机气溶胶组成及来源解析 邢佳莉, 曹芳, 王谦, 张煜娴, 章炎麟(2895)
大气多环芳烃区域迁移转化模型比较与关键影响因素:以京津冀地区为例
张馨露, 刘世杰, 韩美丽, 苏超, 张志鹏, 马琳琳, 李洋, 程苗苗(2906)
基于过程分析的京津冀区域典型城市臭氧成因 唐颖潇, 姚青, 蔡子颖, 丁净, 樊文雁, 杨旭, 韩素芹(2917)
天津市 PM_{2.5}-O₃ 复合污染特征及气象影响分析 肖致美, 李源, 孔君, 李鹏, 蔡子颖, 高环寰, 徐虹, 戴运峰, 邓小文(2928)
2016~2020 年山东省空气质量时空分布特征及影响因素分析 周梦鸽, 杨依, 孙媛, 张凤英, 李永华(2937)
河南省臭氧污染趋势特征及敏感性变化 晏洋洋, 尹沙沙, 何秦, 秦凯, 张瑞芹(2947)
热带气旋对珠三角秋季臭氧污染的影响 赵伟, 吕梦瑶, 卢清, 高博, 梁小明, 刘明, 孙家仁, 陈来国, 范绍佳(2957)
武汉市夏季大气挥发性有机物实时组成及来源 苏维峰, 孔少飞, 郑煌, 陈楠, 祝波, 全继宏, 祁士华(2966)
运城市区夏季大气挥发性有机物污染特征及来源解析 温肖宇, 赵文婷, 罗淑贞, 张强, 王耘涛, 马俊杰, 刘新罡(2979)
我国地表水新烟碱类杀虫剂对水生生物安全的威胁 范丹丹, 刘红玲, 杨柳燕(2987)
长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价 武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌(2996)
内蒙古东北部地区地下-地表饮用水源多环芳烃污染特征与风险 张坤峰, 昌盛, 付青, 樊月婷, 王恩瑞, 孙兴滨, 王山军(3005)
不同尺度土地利用方式对地表水环境质量的影响及驱动机制 宋静雯, 张学霞, 姜东旸, 赵丞豪, 李鹏飞(3016)
高原湖泊周边浅层地下水:氮素时空分布及驱动因素 李桂芳, 杨恒, 叶远行, 陈清飞, 崔荣阳, 陈安强, 张丹(3027)
青海湖沉积物重金属分布及其潜在生态风险分析 张雅然, 车霏霏, 付正辉, 许野, 李薇(3037)
东江湖表层沉积物重金属污染特征与潜在生态风险评价
赵晓亮, 李响, 卢洪斌, 卢少勇, 王涛, 张森霖, 国晓春, 张静, 张启欣, 刘晓贺, 宋书峰(3048)
湖泊沉积物有机磷释放动力学特征及水质风险 刘哲哲, 倪兆奎, 刘思儒, 李晓秀, 王圣瑞(3058)
长三角一体化示范区青浦区水体表层沉积物有机质分布特征、来源解析及污染评价 张智博, 段艳平, 涂耀仁, 罗鹏程, 高峻(3066)
香溪河流域微塑料的分布特征及其迁移规律分析 陈圣盛, 李卫明, 张坤, 熊伟唯, 张续同, 刘子健(3077)
城市水体微塑料垂向分布下附着细菌群落结构和功能响应 陈玉芳, 闫振华, 张燕, 赵海洲(3088)
2015~2020 年洪泽湖浮游植物群落结构及其环境影响因子 屈宁, 邓建明, 张祯, 蔡永久, 龚志军, 李明(3097)
嘉兴南湖不同湖区浮游动植物群落结构特征与环境因子关系 王雅雯, 李迎鹤, 张博, 郭云艳, 陈俊伊, 韩松(3106)
近 20 年来广东省农业面源污染负荷时空变化与来源分析 葛小君, 黄斌, 袁再健, 王栋栋, 王泉泉, 陈佳村, 谢真越(3118)
长江上游平原丘陵区农业非点源污染输出特征和驱动机制 谭少军, 刘洋, 朱小婕, 刘荷, 邵景安, 邓华(3128)
高分辨率数据驱动的流域非点源污染输出风险评估方法 顾晶晶, 冶运涛, 董甲平, 蒋云钟, 曹引, 赵红莉(3140)
不同面源强度影响下城市河流溶解性有机质光谱特征变化 陈旭东, 高良敏(3149)
生态沟渠-生物滞留池组合控制农村径流污染 石雷, 杨小丽, 吴青宇, 王亦铭, 徐佳莹(3160)
不同水力扰动强度对老化 PSMPs 在泥水两相间迁移的影响 吴香香, 艾萍, 李大鹏(3168)
北京市中心城区屋面径流污染特征及来源分析 席玥, 郭婧, 陶蕾, 田颖, 陈吉吉, 吴悦, 徐苏士, 荆红卫, 刘保献(3177)
不同植被绿色屋顶径流水水质年际变化特征 章孙逊, 张守红, 葛德, 闫婧, 杨航, 王任重远, 魏良怡, 张成玉(3187)
可见光促有机物诱导铁还原的多相类芬顿体系强化效能与机制 曹丝雨, 许路, 付权超, 金鑫, 石烜, 金鹏康(3195)
4 种典型抗生素在反硝化体系中的去除特性 唐佳, 陈茜, 覃牧川, 唐溪, 唐崇俭(3204)
农业废弃物基生物炭对水溶液中镉的吸附效果与机制 龚沛云, 孙丽娟, 宋科, 孙雅菲, 秦秦, 周斌, 薛永(3211)
腐殖酸-重金属对 ANAMMOX 菌脱氮性能的影响及其动力学分析
李芸, 崔楠, 熊星星, 黄志远, 李泽兵, 王东亮, 李朝明, 许丹, 李军(3221)
2000~2020 年西南地区植被 NDVI 对气候变化和人类活动响应特征 徐勇, 黄雯婷, 窦世卿, 郭振东, 李欣怡, 郑志威, 靖娟利(3230)
黄河三角洲湿地不同植被类型下土壤营养元素空间分布及其生态化学计量学特征
孙德斌, 栗云召, 于君宝, 杨继松, 杜朝红, 孙丹丹, 凌越, 马元庆, 周迪, 王雪宏, 赵佳怡(3241)
青藏高原东北部地区表层土壤中全氟化合物的分布特征及来源解析
温祥洁, 陈朝辉, 徐维新, 吴小娟, 郝云庆, 刘伟, 印红玲, 方淑红(3253)
西南典型“退耕还林”区土地利用/覆被变化对土壤中硒及重金属含量的影响 刘永林, 刘属灵, 吴梅, 田兴磊, 刘双燕(3262)
贵州普定喀斯特关键带土壤重金属形态特征及风险评价 张倩, 韩贵琳(3269)
南阳盆地东部山区土壤镉分布特征及其影响因素分析 董秋瑶, 赖书雅, 宋超, 温皓天, 严明疆, 杨振京(3278)
神农架川金丝猴栖息地重金属污染特征及风险评价 严佳莉, 于紫玲, 余辉亮, 向明灯, 王传华(3288)
石灰海泡石钝化后两种轮作模式对重度镉污染农田土壤的利用及修复 许璐, 周春海, 刘梅, 孔辉, 李元, 黄志红(3299)
水稻磷盈亏对镉吸收转运的影响 谭文韬, 霍洋, 周航, 仇银燕, 曾鹏, 姜娇峰, 廖柏寒(3308)
改良剂调控下水稻镉累积和土壤溶解性有机质光谱特征的响应 罗会龙, 陈娟, 张云慧, 袁贝, 杨宾, 张昊, 杜平(3315)
土壤真菌群落对五台山亚高山草甸退化的响应 罗正明, 赫磊, 刘晋仙, 胡砚秋, 周妍英, 郑庆荣, 柴宝峰(3328)
小麦与不同作物多样化轮作对土壤真菌群落的影响
靳海洋, 岳俊芹, 闫雅倩, 张德奇, 杨程, 张素瑜, 李向东, 邵运辉, 方保停, 王汉芳, 秦峰(3338)
重庆农田土壤有机碳稳定性同位素空间分布特征 廖宇琴, 龙娟, 木志坚, 文首鑫, 李翠莲, 杨志敏, 赵秀兰(3348)
长江三角洲 2018 年土壤 NO 排放特征 廖加强, 薛金, 王文锦, 朱永慧, 朱安生, 黄凌, 王杨君, 李莉(3357)
基于多源数据的城市扩张中热环境演变及响应 梁建设, 白永平, 杨雪荻, 高祖桥, 李玲蔚, 张春悦, 王倩(3365)
《环境科学》征订启事(3004) 《环境科学》征稿简则(3047) 信息(3252, 3298, 3327)

基于受体和化学传输的综合模型解析重庆 PM_{2.5} 来源

彭超^{1,2}, 李振亮^{1,2*}, 曹云擎^{1,2}, 蒲茜^{1,2}, 方维凯^{1,2}, 王晓宸^{1,2}, 汪凌韬^{1,2}

(1. 重庆市生态环境科学研究院, 重庆 401147; 2. 城市大气环境综合观测与污染防控重庆市重点实验室, 重庆 401147)

摘要: 为进一步提高 PM_{2.5} 污染源解析的准确性, 研究提出一种基于受体和化学传输的综合源解析模型(CTM-RM), 并以重庆冬季一次典型 PM_{2.5} 污染过程为例(2019 年 1 月 21~27 日)开展模型评估与应用。结果表明, 观测期间基于 CTM-RM 获得的模拟误差平方值较 CAMx/PSAT 低 84.58%, PM_{2.5} 及其化学组分浓度的模拟相对误差值较 CAMx/PSAT 下降 15.69%~92.86%; 此外, CTM-RM 还可以获取重庆市 PM_{2.5} 污染源贡献的时空分布特征。观测期间, 主城区 PM_{2.5} 农业源、工业源、电力源、民用源、交通源和其他源的调整因子 R 值分别为 1.39 ± 0.38 、 1.54 ± 0.48 、 1.01 ± 0.13 、 1.02 ± 0.58 、 0.86 ± 0.59 和 0.58 ± 0.67 , 各污染源 R 值的累积分布函数差异明显。民用源和工业源是主城区 PM_{2.5} 的主要污染源(46.23% 和 28.23%)。与其他源不同, 污染日交通源贡献率(8.62%)同比清洁日显著上升($P < 0.001$), 表明交通源排放是 PM_{2.5} 浓度持续上升的驱动因素。主城区各污染源初始模拟浓度与 R 值的拟合函数适用于重庆市 47 个空气质量监测站的 PM_{2.5} 模拟, 各站点优化模拟浓度与观测浓度显著线性相关($r = 0.82$, $P < 0.001$)。与清洁日相比, 污染日渝东北地区工业源贡献率和渝东南地区民用源贡献率上升幅度较大(17.20% 和 9.15%), 而主城区和渝西地区交通源贡献率上升幅度较大(66.39% 和 84.16%)。1 月 26 日, 民用源对渝东北地区 PM_{2.5} 贡献较大(64.56%), 而工业源对 PM_{2.5} 贡献主要集中在主城区(25.26%)和渝西地区(21.20%)。

关键词: 综合源解析; 模型评估与应用; 时空变化; PM_{2.5}; 重庆

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)06-2867-11 DOI: 10.13227/j.hjxk.202109232

Source Apportionment of PM_{2.5} Based on Hybrid Chemical Transport and Receptor Model in Chongqing

PENG Chao^{1,2}, LI Zhen-liang^{1,2*}, CAO Yun-qing^{1,2}, PU Xi^{1,2}, FANG Wei-kei^{1,2}, WANG Xiao-chen^{1,2}, WANG Ling-tao^{1,2}

(1. Chongqing Academy of Eco-Environmental Science, Chongqing 401147, China; 2. Key Laboratory for Urban Atmospheric Environment Integrated Observation & Pollution Prevention and Control of Chongqing, Chongqing 401147, China)

Abstract: In order to further improve the accuracy of fine particulate matter (PM_{2.5}) source apportionment results, a hybrid source apportionment approach (CTM-RM) combining the capabilities of a receptor model (RM) and chemical transport model (CTM) was developed. The CTM-RM method was evaluated and applied according to a typical PM_{2.5} pollution process from January 21 to 27, 2019 in Chongqing. The average value of square prediction error based on CTM-RM was 84.58% lower than that of CAMx/PSAT during the campaign. Compared with that of CAMx/PSAT, the fractional error of PM_{2.5} and its chemical component concentrations decreased by 15.69%~92.86%. Furthermore, the temporal and spatial variations in PM_{2.5} source impacts could be obtained using the CTM-RM method in Chongqing. The average adjustment factor (R) values were 1.39 ± 0.38 (agriculture sources), 1.54 ± 0.48 (industrial sources), 1.01 ± 0.13 (power sources), 1.02 ± 0.58 (residential sources), 0.86 ± 0.59 (transportation sources), and 0.58 ± 0.67 (other sources) in the main urban areas of Chongqing. Additionally, the cumulative distribution functions of R were found to be distinct among the six sources. The residential and industrial sources were the main sources of PM_{2.5}, with contributions of 46.23% and 28.23%, respectively. In contrast to that of the other sources, the transportation source impacts of PM_{2.5} (8.62%) increased significantly from the clear period to pollution period ($P < 0.001$), indicating that the increase in PM_{2.5} concentrations was mainly driven by vehicular emissions during the pollution period in the main urban areas of Chongqing. The fitting functions between the initial simulated concentrations and R values of each source in the main urban areas of Chongqing could be used to evaluate PM_{2.5} concentrations at 47 air quality monitoring stations in Chongqing, and the correlation between the refined simulated concentrations and measured concentration of PM_{2.5} was significant ($r = 0.82$, $P < 0.001$). Compared with that during the clear period, the increases in the percentages of industrial source impacts of PM_{2.5} in Northeast Chongqing and residential source impacts of PM_{2.5} in Southeast Chongqing were 17.20% and 9.15% higher, respectively, than that in other areas during the pollution period. By contrast, the increasing percentage of transportation source impacts of PM_{2.5} in the main urban areas of Chongqing (66.39%) and Western Chongqing (84.16%) from the clear period to the pollution period were higher than that in other areas. The results of CTM-RM on January 26 indicated that the residential source impacts in Northeast Chongqing (64.56%) were higher than those in other areas, and the industry source impacts of PM_{2.5} were primarily observed in the main urban areas of Chongqing and Western Chongqing, with contributions of 25.26% and 21.20%, respectively.

Key words: hybrid source apportionment; model evaluation and application; temporal and spatial variation; PM_{2.5}; Chongqing

近年来我国环境空气质量虽有明显改善, 但长时间和区域性的大气细颗粒物(PM_{2.5})污染问题仍然频发^[1~3], 对大气能见度、人体健康和气候变化产生重要影响^[4~6], 引起社会和政府部门的高度重视。当前, 使用科学的源解析方法明晰 PM_{2.5} 污染来源及其贡献已成为各地区有效控制和治理 PM_{2.5} 污染的关键。我国颗粒物来源解析研究起步于 20 世纪

80 年代, 已逐步形成“污染源清单-空气质量模型”的技术体系, 但仍以单一的源解析技术为主^[7,8]。由

收稿日期: 2021-09-26; 修订日期: 2021-11-16

基金项目: 国家重点研发计划项目(2018YFC0214002, 2018YFC0214005); 重庆市重点研发项目(cstc2018jszx-zdyfxmX0003)

作者简介: 彭超(1990~), 男, 博士, 工程师, 主要研究方向为大气污染源排放清单和污染源解析, E-mail: pengchao0623@sina.com

* 通信作者, E-mail: zhenliangli@163.com

于 $\text{PM}_{2.5}$ 来源解析是一项复杂且系统的研究, 不同方法具有各自独特的适用性、局限性和不确定性, 因此多种模型结合的综合源解析方法已成为 $\text{PM}_{2.5}$ 源解析的发展趋势。

受体模型和化学传输模型是目前国内外应用较为广泛的 $\text{PM}_{2.5}$ 源解析模型。受体模型是基于受体点 $\text{PM}_{2.5}$ 组分浓度, 并结合示踪物与数理统计解析 $\text{PM}_{2.5}$ 污染源贡献, 如化学质量平衡(CMB) 和正定矩阵因子分解模型(PMF)^[7]。Zheng 等^[9]的研究采用 CMB 模型, 结合有机示踪组分研究了北京市不同季节 $\text{PM}_{2.5}$ 污染源贡献。PMF 模型在我国各地区也得到广泛应用, 如京津冀^[10,11]、长三角^[12,13]、珠三角^[14,15]和成渝地区^[16~18]。但是, 受体模型法存在源成分谱的共线性、源类识别的主观性等方面的问题, 且未考虑污染源的排放因子和活动水平以及污染物在传输中的理化过程, 存在较大的不确定性^[7,19]。化学传输模型(如 CMAQ 和 CAMx 等) 基于污染源排放清单和气象场, 模拟污染物的传输、转化以及沉降等过程, 估算受体点污染物的各类污染源贡献值^[20], 可以获得源解析结果的空间分布, 对大气污染防治具有重要的指导意义^[21,22]。目前, 国内基于化学传输模型的 $\text{PM}_{2.5}$ 源解析研究越来越多^[23~25], 但受污染源清单、气象场以及复杂大气化学过程等影响, 源解析结果的不确定性较大, 尤其是在污染日。为有效降低源解析结果的不确定性, 同时获取污染源的空间分布特征, 本研究提出了基于受体和化学传输模型的综合源解析方法, 并开展案例分析。

重庆是位于我国四川盆地的典型山地城市, 具有特殊的地形地貌和气候特征, 全年以高湿静稳天气为主。有研究表明, 四川盆地冬季 $\text{PM}_{2.5}$ 污染严重, 不同城市 $\text{PM}_{2.5}$ 组分变化特征和污染来源差异明显^[26~28], 尤其是在重庆地区^[29~32]。然而, 当前四川盆地 $\text{PM}_{2.5}$ 来源解析仍主要基于单一的受体模型法(如 CMB 和 PMF)^[17,26,27,33], 未考虑大气化学过程和气象传输等问题, 解析结果存在较大的不确定性, 且无法识别污染源的空间分布。例如, Chen 等^[17]的研究采用 PMF 模型获得 2012 年重庆 $\text{PM}_{2.5}$ 的污染源贡献值, 与任丽红等^[33]的研究采用 CMB 模型解析的同期结果存在明显差异。重庆的地形地貌和气候特征特殊, 气象场和大气化学过程复杂, 为进一步明晰重庆 $\text{PM}_{2.5}$ 污染源的贡献值和时空分布特征, 本研究提出了一种综合源解析方法(CTM-RM)。该方法基于 CMB 的物种平衡法,

将受体点 $\text{PM}_{2.5}$ 组分浓度与化学传输模型的模拟结果有机结合, 得到更准确的源解析结果, 并进一步获得重庆 $\text{PM}_{2.5}$ 污染源贡献的空间分布。本研究结果对国内开展 $\text{PM}_{2.5}$ 源解析研究具有重要的借鉴意义, 对深入开展重庆 $\text{PM}_{2.5}$ 精准治污和科学治污工作具有重要的指导意义。

1 材料与方法

1.1 观测数据

本文在重庆主城区选择 1 个代表性观测点(渝北超级站 CZ)的颗粒物数据用于 CTM-RM 方法的评估(如图 1), 观测时段为 2019 年 1 月的一次典型 $\text{PM}_{2.5}$ 污染过程(1 月 21~27 日)。颗粒物组分包括在线有机碳/元素碳分析仪(Sunset, USA, RT-4)测得的 OC 和 EC、在线离子色谱仪(章嘉, 中国台湾, S-611)测得的 9 种水溶性离子(Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 F^- 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-})和在线重金属分析仪(Pall, USA, Xact-625)测得的 16 种元素(Ca、Cr、Mn、Fe、Ni、Cu、Zn、As、Se、Ag、Cd、Sn、Ba、Au、Hg、Pb), 上述在线观测仪器的质控信息见文献[34~36]。此外, 本研究选择同时段重庆市 47 个空气质量监测站的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度数据开展 CTM-RM 方法的案例分析。

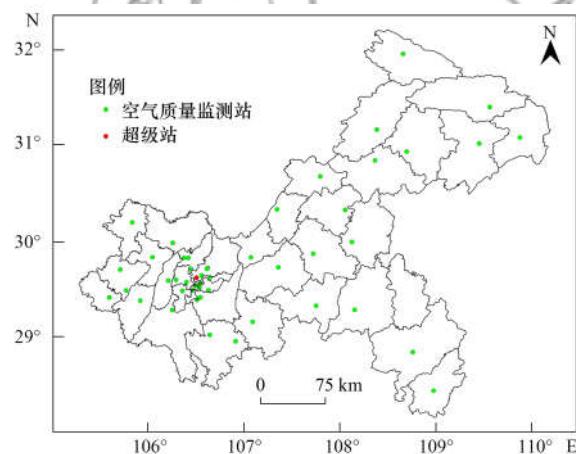


图 1 模拟区域和各监测站点

Fig. 1 Modeling domain and monitoring sites used

1.2 综合源解析方法

本研究综合化学传输模型和受体模型方法, 获得调整因子(R), 从而提高源解析结果的准确性。首先, 基于 CAMx/PSAT 模型获得 $\text{PM}_{2.5}$ 组分的网格化浓度和污染源排放贡献, 将获得的污染源贡献值定义为物种 i 和来源 j 的初始污染源贡献值($\text{SA}_{i,j}^{\text{base}}$)。其次, 将初始污染源贡献值、受体观测浓度和不确定性参数输入 CTM-RM 的目标函数[式(1)], 通过对目标函数最小值的非线性最优化拟合^[37,38], 获得

调整因子 R :

$$X^2 = \sum_{i=1}^N \left[\frac{[C_i^{\text{obs}} - C_i^{\text{sim}} - \sum_{j=1}^J \text{SA}_{i,j}^{\text{base}} (R_j - 1)]^2}{\sigma_{i,\text{obs}}^2 + \sigma_{i,\text{CAMx}}^2} \right] + \Gamma \sum_{j=1}^J \ln(R_j)^2 / \sigma_{\ln(R_j)}^2 \quad (1)$$

式中, X^2 为模拟误差的平方, C_i^{obs} 和 C_i^{sim} 分别为物种 i 的观测和模拟浓度; $\sigma_{i,\text{obs}}$ 、 $\sigma_{i,\text{CAMx}}$ 和 $\sigma_{\ln(R_j)}$ 分别为物种 i 观测值、模拟值和污染源 j 排放强度的不确定性, 其中 $\sigma_{i,\text{obs}}$ 为基于测量误差和检出限计算^[39], $\sigma_{i,\text{CAMx}}$ 和 $\sigma_{\ln(R_j)}$ 的波动变化对式(1)的结果影响可忽略^[37], 本研究引用早期研究结果^[37,40~42]; Γ 为组分数量与污染源的比值(N/J), 是对污染源影响中变化量的加权。

本研究采用一个有限内存的准牛顿优化函数^[43,44], 并将 R 值限制在 0.10 ~ 10.00 之间^[37], 运算步长为 0.01, 对式(1)进行最优化求解, 得到 R 值。然后, 基于式(2)和式(3), 获得优化后 PM_{2.5} 组分的污染源贡献值 SA_{i,j}^{adj} 和模拟浓度值 C_i^{adj} :

$$\text{SA}_{i,j}^{\text{adj}} = R_j \times \text{SA}_{i,j}^{\text{base}} \quad (2)$$

$$C_i^{\text{adj}} = C_i^{\text{sim}} + \sum_{j=1}^J \text{SA}_{i,j}^{\text{base}} (R_j - 1) \quad (3)$$

CAMx/PSAT 模型使用的污染物排放数据来源于中国多尺度排放清单模型 (multi-resolution emission inventory for China, MEIC) 提供的 2017 年清单^[45,46]; 气象场为美国国家大气研究中心(National Center for Atmospheric Research, NCAR) 的 WRF (weather research and forecasting) 模式输出的结果; 气象数据使用美国环境预报中心(National Centers for Environmental Prediction, NCEP) 的 FNL 全球分析资料, 水平分辨率为 $0.25^\circ \times 0.25^\circ$; O₃ 柱浓度数据为美国国家航空和航天局(National Aeronautics and Space Administration, NASA) 提供, 水平分辨率为 $1^\circ \times 1^\circ$ (<https://ozonewatch.gsfc.nasa.gov/data/omi/>)。CAMx/PSAT 模型的参数化方案如表 1 所示。

2 结果与讨论

2.1 综合源解析方法的评估

本研究采用主城区 CZ 点位的观测数据, 通过对比分析初始和优化的加权最小二乘误差 X^2 , 表征优化模型的改进程度。如图 2 所示, 观测期间, 基于 CTM-RM 获得的 X^2 均值明显低于 CAMx/PSAT(降低 84.58%), 且两者显著相关($r = 0.78$, $P < 0.001$)。此外, CTM-RM 模拟的 PM_{2.5} 及其化学组分浓度与观测浓度显著线性相关($P < 0.001$), 其相关系数 r 值均明显高于 CAMx/PSAT 的模拟结果(图

3)。与 CAMx/PSAT 的模拟结果相比, CTM-RM 模拟浓度与观测浓度更接近, 且相对误差 FE 更低(图 3 和表 2)。

表 1 CAMx/PSAT 参数设置

Table 1 CAMx/PSAT parameter settings

中心点	35°N, 103°E		
	投影类型	兰伯特投影(Lambert)	
网格	层数	分辨率/km	网格数(经向×纬向)
	1	27	192 × 168
初始场和边界条件	ICBCPREP		
	气象化学机制	CB05	
	液相化学机制	RADM	
	气溶胶方案	CF 方案	
	二次有机化学方案	SOAP	
	气溶胶热力学平衡模式	ISORROPIA	
	干沉降参数化方案	ZHANG03	
	水平平流方案	PPM 方案	
	垂直扩散方案	标准 K 理论	

$$FE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{2 \times |C_i^{\text{sim}} - C_i^{\text{obs}}|}{C_i^{\text{sim}} + C_i^{\text{obs}}} \times 100\%$$

以上结果表明, 基于综合源解析方法 CTM-RM 的 PM_{2.5} 源解析结果比单一源解析方法 CAMx/PSAT 更准确。

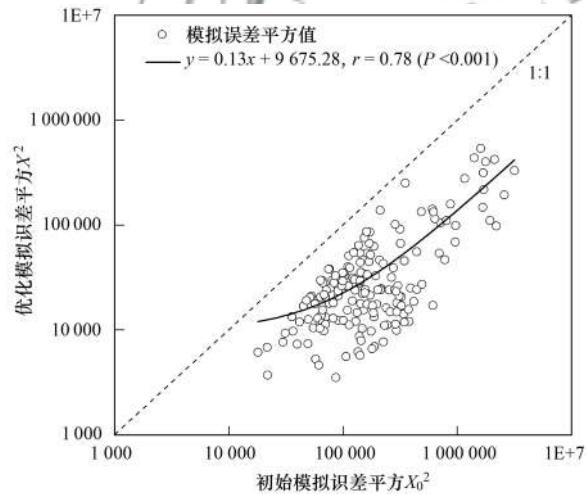


图 2 初始模拟误差平方 X_0^2 和优化模拟误差平方 X^2 的相关性

Fig. 2 Correlations between the refined X^2 and initial X_0^2

本研究期间, 主城区 PM_{2.5} 污染源调整因子 R 值分布如图 4 所示。当 R 大于 1 时, CTM-RM 的源解析结果高于初始模拟值, 反之则低于初始模拟值; 此外, 具有较高不确定性的污染源的 R 值偏离 1 越多^[37]。主城区 6 类 PM_{2.5} 污染源 R 值范围在 0.06 ~ 2.60 之间, 农业源、工业源、电力源、民用源、交通源和其他源的均值分别为 1.39 ± 0.38 、 1.54 ± 0.48 、 1.01 ± 0.13 、 1.02 ± 0.58 、 0.86 ± 0.59 和 0.58 ± 0.67 , 其中农业源、工业源、交通源和其他源的不确定性相对较高。值得注意的是, 不同污染源 R

值的累积分布函数明显不同(图4),这与污染物的排放不同有关^[47]. 农业源和工业源中分别有86.31%和89.88%的R值大于1,而交通源和其他源大于1的R值分别仅占36.90%和24.40%,表明

单一源解析方法CAMx/PSAT低估了重庆PM_{2.5}的农业源和工业源贡献,但对交通源和其他源的贡献存在高估,这可能与重庆复杂的污染源排放特征、地形地貌和气象条件等有关^[17,28].

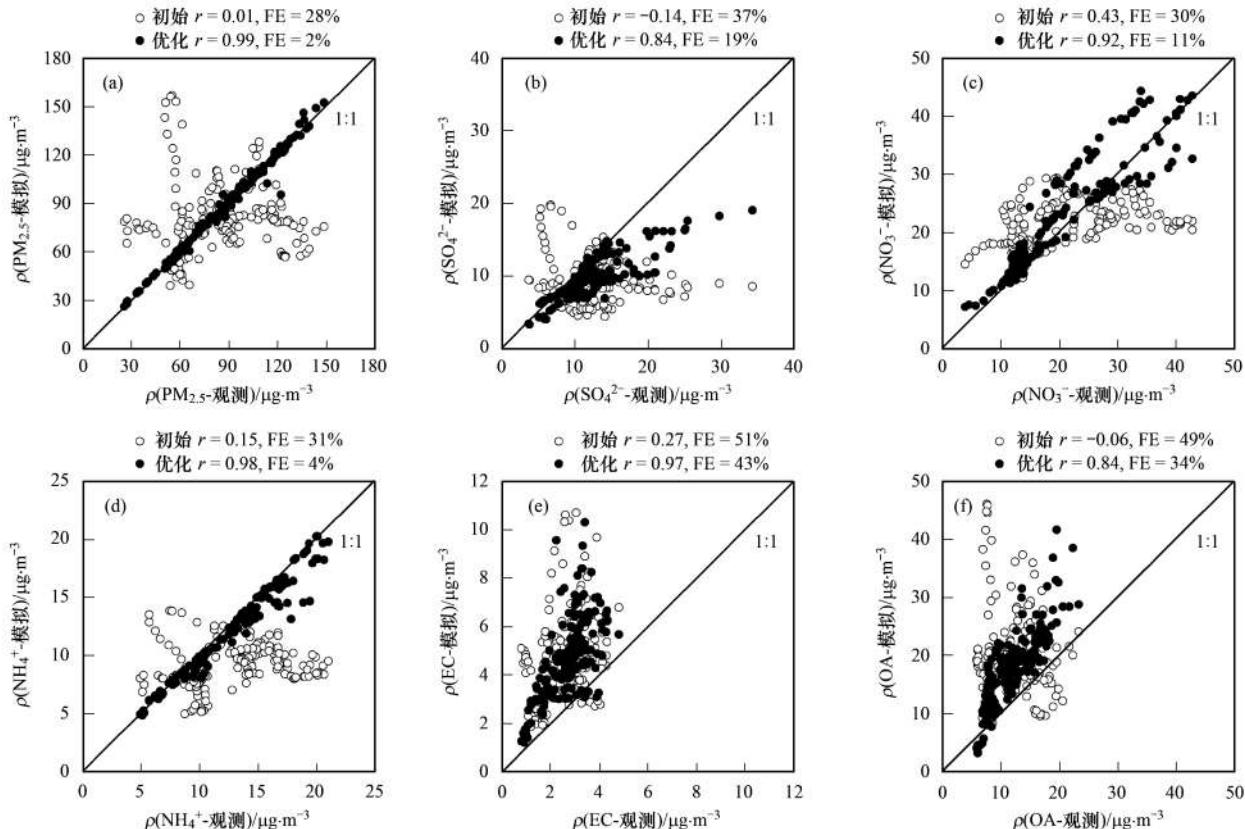


图3 渝北超级站PM_{2.5}及其组分观测与初始和优化模拟浓度的相关性比较

Fig. 3 Linear correlations of initial and refined concentration predictions against observations of PM_{2.5} and its components at CZ

表2 渝北超级站PM_{2.5}及其组分观测值、初始和优化模拟值/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

Table 2 Average observed, initial, and refined concentrations of PM_{2.5} and its components at CZ/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

物种	观测值		初始模拟值		优化模拟值	
	平均值	标准偏差	平均值	标准偏差	平均值	标准偏差
PM _{2.5}	84.88	28.01	81.22	22.86	85.41	28.07
SO ₄ ²⁻	12.45	4.73	9.19	3.08	9.87	2.95
NO ₃ ⁻	21.39	9.41	21.34	4.00	23.38	9.58
NH ₄ ⁺	12.88	3.84	9.32	1.84	12.25	3.59
EC	2.69	0.89	4.79	1.76	4.65	1.71
OA	11.84	4.05	19.49	7.88	17.51	6.83

2.2 PM_{2.5}污染源解析结果

本研究期间,基于初始和优化模型获得的PM_{2.5}污染源贡献如图5所示。初始模型(CAMx/PSAT)解析结果表明,民用源是PM_{2.5}的主要污染源(54.97%),其次是工业源和农业源(19.98%和9.01%),各污染源日贡献值随PM_{2.5}浓度升高的变化差异较大(图5)。与其他污染源不同,清洁日(1月21~23日)民用源贡献值随PM_{2.5}浓度升高呈缓慢上升趋势,而污染日(1月24~27日)呈明显下降趋势。如表3所示,基于优化模型(CTM-RM)解析的

民用源贡献值(46.23%)较CAMx/PSAT模拟结果下降15.90%,而工业源和农业源贡献值(28.23%和11.74%)分别上升41.29%和30.30%。与CAMx/PSAT不同,CTM-RM模拟结果表明,清洁日民用源贡献值随PM_{2.5}浓度升高呈明显上升趋势;污染日工业源等5类源贡献值的变化趋势不明显,但污染日交通源贡献率值(8.62%)显著上升($P < 0.001$,图5)。此外,与清洁日相比(r 为0.93、0.86、0.38、0.40、0.44和0.44),污染日PM_{2.5}与NH₄⁺、NO₃⁻、EC、Fe、Cu和Zn浓度的时间变化趋势更一

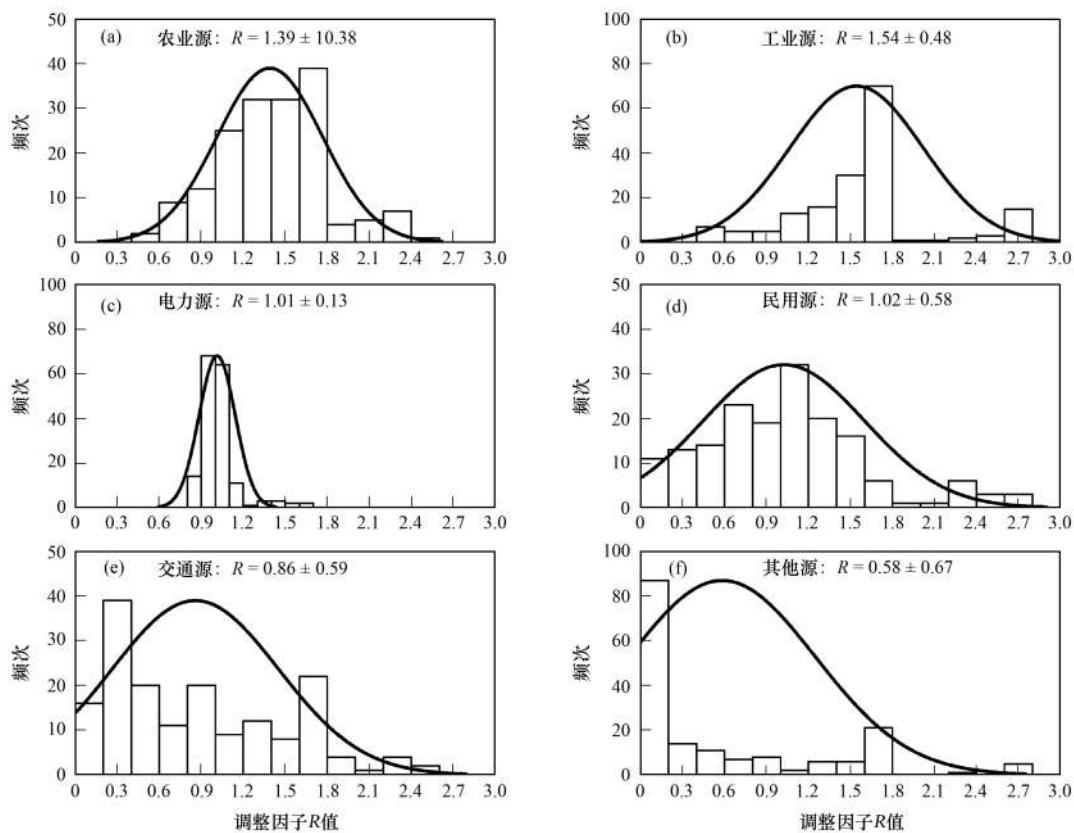


Fig. 4 Distribution of the calculated source impact factors (R) of $\text{PM}_{2.5}$ at CZ

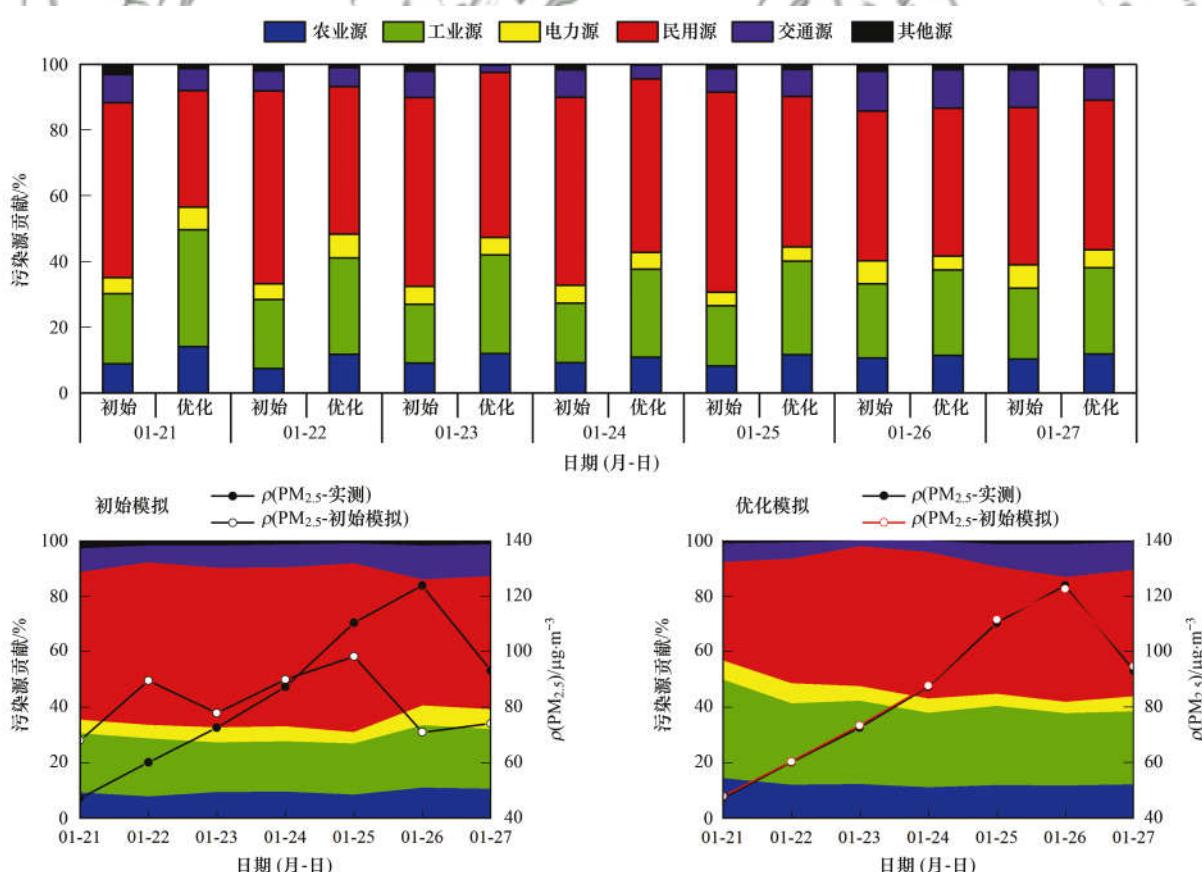


Fig. 5 Temporal variations in the initial and refined percentage source impacts of $\text{PM}_{2.5}$ at CZ

致,且具有较高的相关性(r 为0.97、0.87、0.65、0.61、0.73和0.70)(图6),表明机动车排放对污染日PM_{2.5}生成具有重要贡献。以上结果表明,PM_{2.5}浓度上升仍主要受民用源排放的影响,但交通源排放是污染日PM_{2.5}浓度持续上升的主要驱动因素,这与早期的研究结果一致^[28,30,34,48]。

本研究期间,基于不同源解析方法获得的PM_{2.5}污染源贡献值如表3所示。本研究采用的受体模型为化学质量平衡模型(CMB)和正定矩阵因子分解模型(PMF)^[8,49~52],并基于文献[53]和源排放清单

数据将受体模型解析结果划分为农业源、工业源、电力源、民用源、交通源和其他源。如表3所示,基于CAMx/PSAT和CTM-RM模拟的交通源贡献值均低于受体模型解析结果,这可能与MEIC清单以及化学传输模型对相对湿度较高的典型山地城市交通源的模拟偏差较大有关^[22,28,34,54]。与CAMx/PSAT模拟结果相比(54.97%和19.98%),CTM-RM模拟的前两类主要污染源(民用源和工业源)贡献值(46.23%和28.23%)与受体模拟结果更接近(CMB: 39.23%和25.47%, PMF: 35.66%和

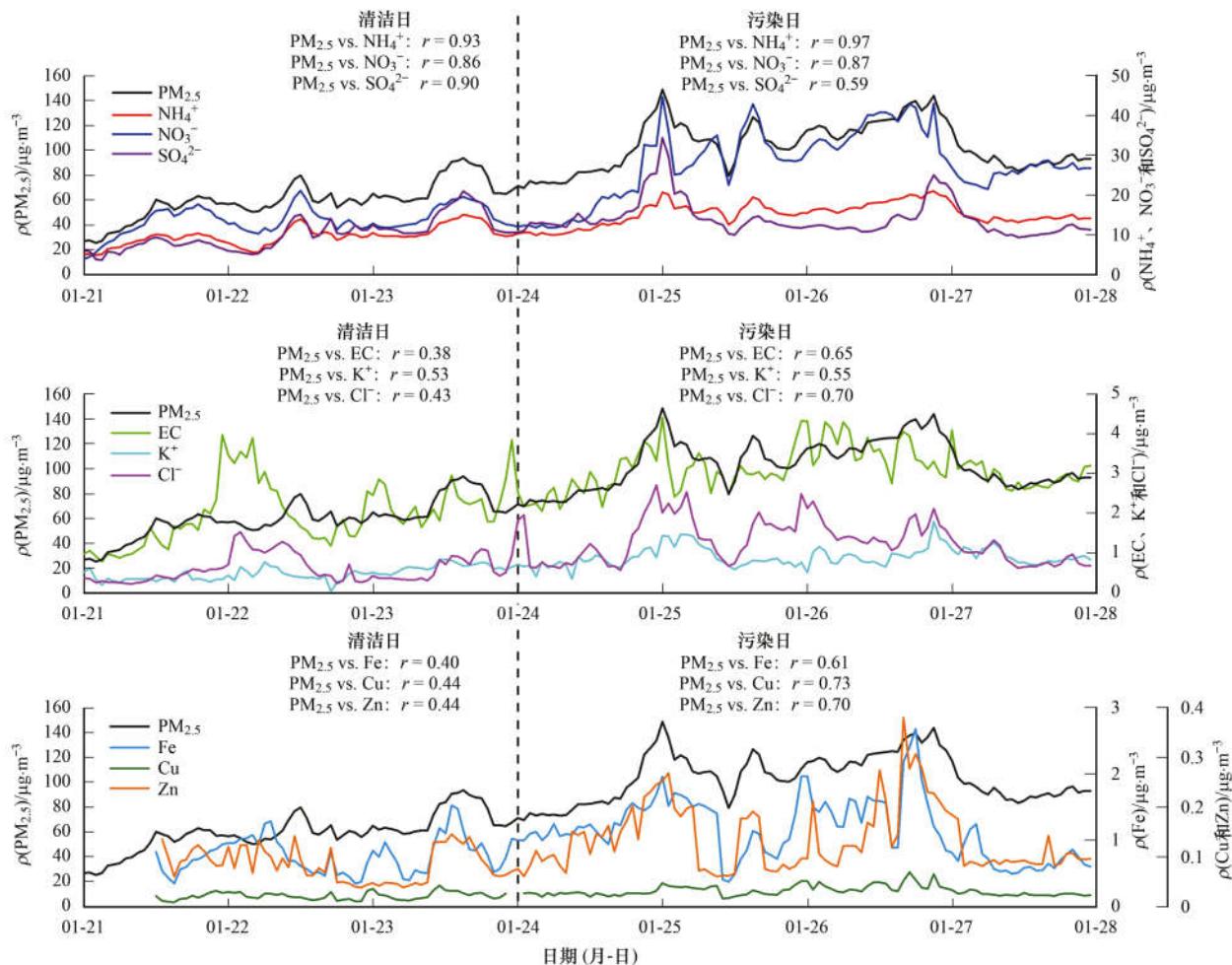


图6 渝北超级站PM_{2.5}及其化学组分浓度时间变化

Fig. 6 Temporal variations in PM_{2.5} and its species concentrations at CZ

表3 渝北超级站初始和优化模拟的PM_{2.5}源解析结果及其与受体模型结果对比¹⁾

Table 3 Initial and refined source impacts results and comparison to results from using RM methods of PM_{2.5} at CZ

污染源	CAMx/PSAT 模拟		CTM-RM 模拟		CMB 模拟		PMF 模拟	
	浓度/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	贡献/%						
农业源	7.32	9.01	10.03	11.74	3.86	4.55	6.55	7.75
工业源	16.22	19.98	24.11	28.23	21.62	25.47	23.28	27.54
电力源	4.43	5.46	4.46	5.22	6.15	7.25	6.95	8.22
民用源	44.65	54.97	39.49	46.23	33.30	39.23	30.14	35.66
交通源	7.03	8.65	6.48	7.59	19.03	22.42	16.72	19.78
其他	1.57	1.93	0.84	0.98	0.92	1.08	0.88	1.04
总贡献值	81.22	100.00	85.41	100.00	84.88	100.00	84.52	100.00

1) PM_{2.5}观测浓度为84.88 g·m⁻³

27.54%); 此外, CTM-RM 模拟获得的 PM_{2.5}浓度 (85.41 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 与受体模拟结果相近 (CMB: 84.88 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, PMF: 84.52 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). 整体来看, 基于 CTM-RM 模拟 PM_{2.5}浓度及其污染源贡献值与基于观测数据的模拟结果更相符.

2.3 PM_{2.5}污染源的时空分布特征

图 7 展示了 CZ 点位各污染源的 PM_{2.5}初始模拟浓度与调整因子 R 的相关性. 本研究以 PM_{2.5}实测小时浓度值 75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 为界限, 开展初始模拟浓度与 R 值的拟合分析, 其中, 农业源、工业源、电力源、民用源和交通源的初始模拟浓度值以 0.5 为间隔, 其他源以 0.1 为间隔. 本研究期间, 6 类污染源的 PM_{2.5}初始模拟浓度与 R 值均显著相关 ($P <$

0.001), 相关系数 r 的绝对值范围在 0.64 ~ 0.97 之间. 本研究基于各污染源 PM_{2.5}初始模拟浓度与 R 值的拟合函数, 开展了同时段重庆市 47 个空气质量监测站 PM_{2.5}浓度的优化模拟. 如图 8 所示, 47 个站点的观测浓度与初始模拟浓度不相关 ($P > 0.1$), 但与优化模拟浓度的时间变化高度一致 (相关系数 $r = 0.82$, $P < 0.001$). 此外, 与初始模拟浓度相比 ($\text{FE} = 35\%$), 优化模拟浓度与观测浓度值更接近, 且相对误差 FE 更低 (14%). 以上结果表明, 基于 CTM-RM 获得的 CZ 站点各污染源 PM_{2.5}初始模拟浓度与 R 值的拟合函数适用于重庆市 47 个空气质量监测站, 可用于进一步获得更准确的 PM_{2.5}污染源时空分布特征.

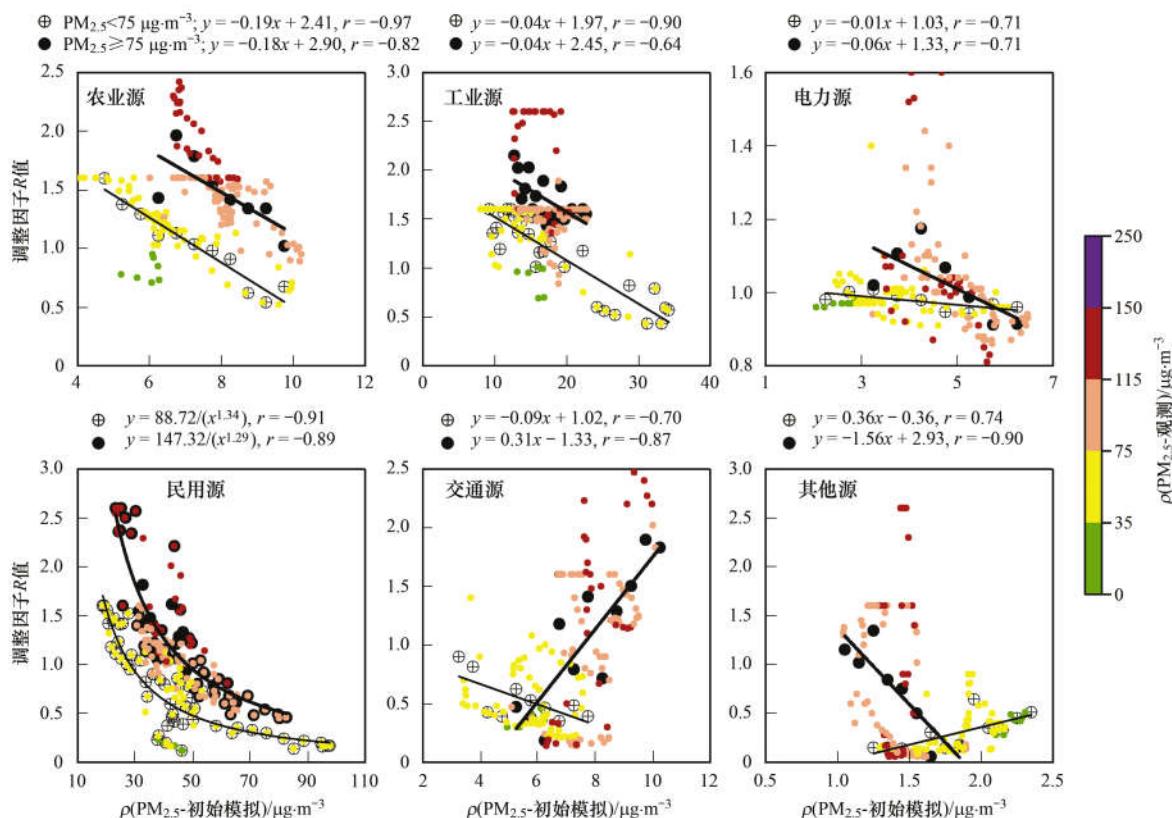
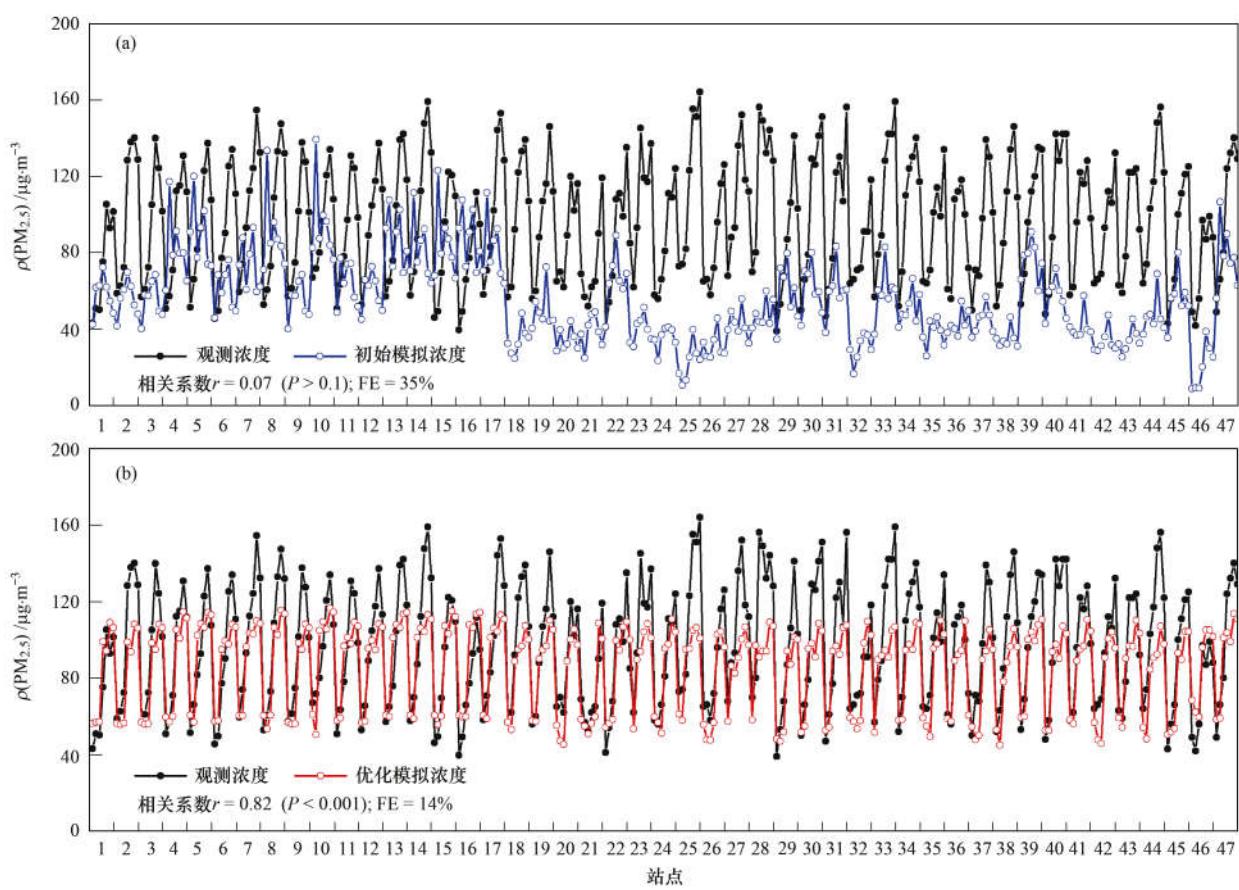


图 7 渝北超级站各污染源的 PM_{2.5}初始模拟浓度与调整因子 R 的相关性

Fig. 7 Correlations between the optimal R and initial concentrations source impacts of PM_{2.5} at CZ

观测期间, 基于 CAMx/PSAT 初始模型和 CTM-RM 优化模型模拟获得重庆市主城区、渝西地区、渝东北地区和渝东南地区 PM_{2.5}污染源贡献率的时间变化趋势如图 9 所示. 整体来看, 初始和优化模拟的 PM_{2.5}污染源贡献率及其时间变化具有较大差异性, 其中, 基于 CTM-RM 的模拟结果与重庆市工业、交通、农业等污染源实际分布情况较为一致. CTM-RM 优化模拟结果表明, 重庆各区域 PM_{2.5}主要污染源为民用源和工业源, 其源贡献率范围分别为 40.43% ~ 70.35% 和 13.23% ~ 35.75%. 民用源贡

献率随 PM_{2.5}浓度升高呈缓慢上升趋势, 其中主城区和渝东南地区上升幅度较大 (污染日同比清洁日上升 9.41% 和 9.15%). 与其他地区不同 (同比下降 9.78% ~ 15.79%), 污染日渝东北地区的工业源贡献率较清洁日上升 17.20%. 值得注意的是, 污染日主城区和渝西地区交通源贡献率分别为清洁日的 1.66 倍和 1.84 倍, 而渝东北和渝东南地区的变化趋势不明显 (1.02 和 0.86 倍). 以上结果表明, 交通源排放对主城区和渝西地区 PM_{2.5}污染形成有重要贡献, 而渝东北和渝东南地区 PM_{2.5}污染的形成分别



1. 镶云山, 2. 天生, 3. 两路口, 4. 虎溪, 5. 南坪, 6. 唐家沱, 7. 茶园, 8. 白市驿, 9. 空港, 10. 新山村, 11. 礼嘉, 12. 蔡家, 13. 鱼新街, 14. 歇台子, 15. 龙井湾, 16. 龙洲湾, 17. 上清寺, 18. 忠县, 19. 长寿, 20. 云阳, 21. 西阳, 22. 永川, 23. 秀山, 24. 武隆, 25. 巫溪, 26. 巫山, 27. 万州, 28. 万盛, 29. 潼南, 30. 铜梁, 31. 双桥, 32. 石柱, 33. 荣昌, 34. 綦江, 35. 彭水, 36. 南川, 37. 梁平, 38. 开州, 39. 江津, 40. 合川, 41. 涪陵, 42. 奉节, 43. 丰都, 44. 垫江, 45. 大足, 46. 城口, 47. 壁山

图8 观测期间重庆47个站点PM_{2.5}的观测浓度、初始和优化模拟浓度

Fig. 8 Observed, initial, and refined concentrations of PM_{2.5} at 47 sites in Chongqing during the observation period

受工业源和民用源的影响较大。

本研究通过R值优化各网格上PM_{2.5}污染源的初始模拟浓度,获得优化后各污染源贡献的空间分布。图10展示了1月26日(PM_{2.5}日均浓度最高)优化前后重庆市PM_{2.5}浓度及其各污染源贡献的空间分布。结果表明,CTM-RM模拟浓度符合重庆PM_{2.5}的空间分布结果,而CAMx/PSAT模型明显低估了主城区、渝西和渝东北地区PM_{2.5}浓度。与CAMx/PSAT相比,CTM-RM模拟的工业源贡献在主城区和渝西地区明显增加,而民用源排放对渝东北地区PM_{2.5}的贡献最大。受山地城市气象条件的影响,渝东北地区PM_{2.5}的交通源贡献值被低估;此外,受农业源排放不确定性等影响,CTM-RM模拟的农业源贡献值的准确度仍然有待提高。总体上看,CTM-RM模拟结果与重庆市污染源分布的实际情况更相符,民用源和工业源是重庆PM_{2.5}的主要污染源,其中民用源对渝东北地区PM_{2.5}的影响较大,工业源的贡献主要集中在主城区和渝西地区。

3 结论

(1)本研究提出了一种CTM-RM综合源解析方法,观测期间该方法的模拟误差平方值较单一化学传输模型CAMx/PSAT低84.58%;同时,该方法解决了受体模型法RM的一些局限性(如:未考虑化学反应、源排放强度和位置等)。CTM-RM方法适用于城市尺度PM_{2.5}污染来源解析,可用于获取城市PM_{2.5}污染源贡献的时空分布特征。

(2)主城区PM_{2.5}农业源、工业源、电力源、民用源、交通源和其他源的调整因子R值分别为 1.39 ± 0.38 、 1.54 ± 0.48 、 1.01 ± 0.13 、 1.02 ± 0.58 、 0.86 ± 0.59 和 0.58 ± 0.67 。各污染源R值的累积分布函数差异明显,其中农业源、工业源、交通源和其他源的不确定性相对较高。民用源是主城区PM_{2.5}的首要污染源(46.23%),而交通源排放是PM_{2.5}浓度持续上升的主要驱动因素。

(3)主城区各污染源初始模拟浓度与R值的拟合函数适用于重庆市47个空气质量监测站,基于该

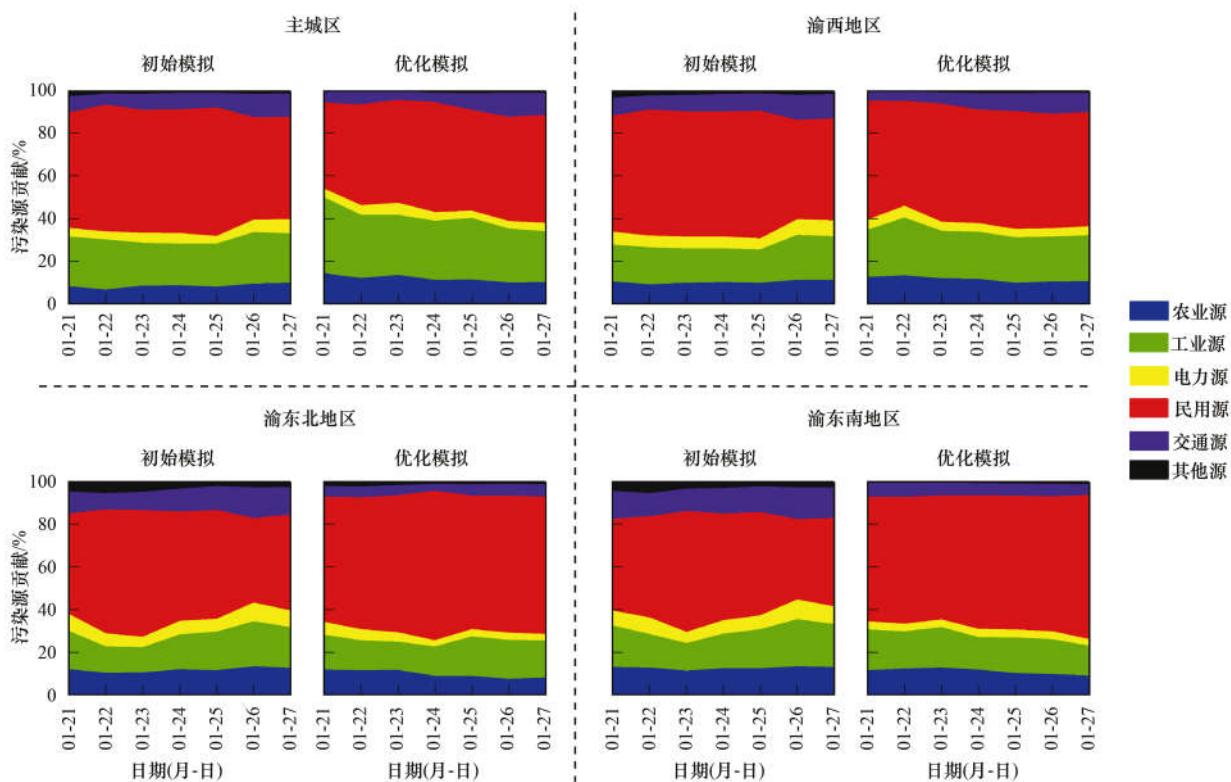
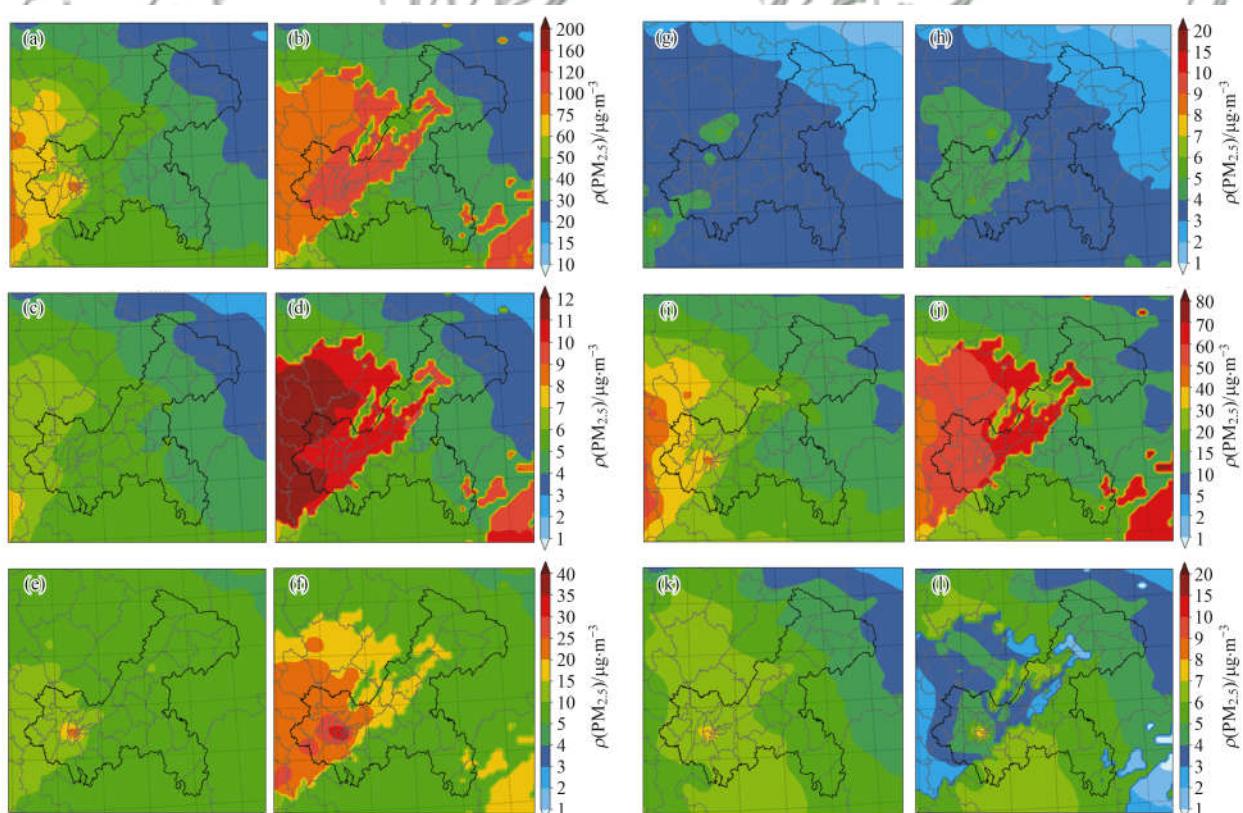
图9 观测期间重庆 PM_{2.5} 初始和优化污染源贡献率的时间变化

Fig. 9 Temporal variations in the initial and refined percentage source impacts of PM_{2.5} in Chongqing during the observation period



(a) 和 (b) 分别表示总 PM_{2.5} 初始和优化模拟浓度, (c) 和 (d) 分别表示农业源排放 PM_{2.5} 初始和优化模拟浓度, (e) 和 (f) 分别表示工业源排放 PM_{2.5} 初始和优化模拟浓度, (g) 和 (h) 分别表示电力源排放 PM_{2.5} 初始和优化模拟浓度, (i) 和 (j) 分别表示民用源排放 PM_{2.5} 初始和优化模拟浓度, (k) 和 (l) 分别表示交通源排放 PM_{2.5} 初始和优化模拟浓度

图10 重庆市 2019 年 1 月 26 日初始和优化模拟的 PM_{2.5} 浓度以及各污染源贡献

Fig. 10 Initial and refined concentrations of total PM_{2.5} and source impacts on PM_{2.5} on January 26, 2019 in Chongqing

拟合函数的优化模拟浓度与实际观测浓度高度一致($r=0.82$, $P<0.001$)。随着PM_{2.5}浓度升高,渝东北和渝东南地区污染源贡献率上升幅度较大的分别为工业源和民用源(污染日同比清洁日上升17.20%和9.15%),主城区和渝西地区为交通源(同比上升66.39%和84.16%)。1月26日,重庆市PM_{2.5}的主要污染源为民用源和工业源,其中渝东北地区民用源贡献的PM_{2.5}浓度较大,而工业源的PM_{2.5}浓度贡献值主要集中在主城区和渝西地区。

致谢:感谢重庆市生态环境监测中心蒋昌潭和刘姣姣两位老师对该研究工作的大力支持与帮助。

参考文献:

- [1] Zhai S X, Jacob D J, Wang X, et al. Fine particulate matter (PM_{2.5}) trends in China, 2013-2018: separating contributions from anthropogenic emissions and meteorology [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, **19**(16): 11031-11041.
- [2] Xiao Q Y, Geng G N, Liang F C, et al. Changes in spatial patterns of PM_{2.5} pollution in China 2000-2018: impact of clean air policies [J]. *Environment International*, 2020, **141**, doi: 10.1016/j.envint.2020.105776.
- [3] An Z S, Huang R J, Zhang R Y, et al. Severe haze in northern China: a synergy of anthropogenic emissions and atmospheric processes [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2019, **116**(18): 8657-8666.
- [4] Zou J N, Liu Z R, Hu B, et al. Aerosol chemical compositions in the North China Plain and the impact on the visibility in Beijing and Tianjin [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **201**: 235-246.
- [5] Kan H D, Chen R J, Tong S L. Ambient air pollution, climate change, and population health in China [J]. *Environment International*, 2012, **42**: 10-19.
- [6] Wang Y, Wan Q, Meng W, et al. Long-term impacts of aerosols on precipitation and lightning over the Pearl River Delta megacity area in China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(23): 12421-12436.
- [7] 郑攻, 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.
- [8] 张延君, 郑攻, 蔡靖, 等. PM_{2.5}源解析方法的比较与评述 [J]. 科学通报, 2015, **60**(2): 109-121.
- Zhang Y J, Zheng M, Cai J, et al. Comparison and overview of PM_{2.5} source apportionment methods [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2015, **60**(2): 109-121.
- [9] Zheng M, Salmon L G, Schauer J J, et al. Seasonal trends in PM_{2.5} source contributions in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(22): 3967-3976.
- [10] Huang R J, Zhang Y L, Bozzetti C, et al. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China [J]. *Nature*, 2014, **514**(7521): 218-222.
- [11] Tao J, Zhang L M, Zhang R J, et al. Uncertainty assessment of source attribution of PM_{2.5} and its water-soluble organic carbon content using different biomass burning tracers in positive matrix factorization analysis-a case study in Beijing, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **543**: 326-335.
- [12] Du W J, Hong Y W, Xiao H, et al. Chemical characterization and source apportionment of PM_{2.5} during spring and winter in the Yangtze River Delta, China [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2017, **17**(9): 2165-2180.
- [13] Zheng H, Kong S F, Yan Q, et al. The impacts of pollution control measures on PM_{2.5} reduction: insights of chemical composition, source variation and health risk [J]. *Atmospheric Environment*, 2019, **197**: 103-117.
- [14] Tan J H, Duan J C, Ma Y L, et al. Long-term trends of chemical characteristics and sources of fine particle in Foshan city, Pearl River Delta: 2008-2014 [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **565**: 519-528.
- [15] Huang X F, Yun H, Gong Z H, et al. Source apportionment and secondary organic aerosol estimation of PM_{2.5} in an urban atmosphere in China [J]. *Science China Earth Sciences*, 2014, **57**(6): 1352-1362.
- [16] Li L L, Tan Q W, Zhang Y H, et al. Characteristics and source apportionment of PM_{2.5} during persistent extreme haze events in Chengdu, southwest China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **230**: 718-729.
- [17] Chen Y, Xie S D, Luo B, et al. Particulate pollution in urban Chongqing of southwest China: historical trends of variation, chemical characteristics and source apportionment [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **584-585**: 523-534.
- [18] Tao J, Gao J, Zhang L B, 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.
- [19] Zhang Y J, Cai J, Wang S X, et al. Review of receptor-based source apportionment research of fine particulate matter and its challenges in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **586**: 917-929.
- [20] Burr M J, Zhang Y. Source apportionment of fine particulate matter over the eastern U. S. part II: source apportionment simulations using CAMx/PSAT and comparisons with CMAQ source sensitivity simulations [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2011, **2**(3): 318-336.
- [21] Itahashi S, Uno I, Kim S. Source contributions of sulfate aerosol over east Asia estimated by CMAQ-DDM [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(12): 6733-6741.
- [22] Belis C A, Pernigotti D, Pirovano G, et al. Evaluation of receptor and chemical transport models for PM₁₀ source apportionment [J]. *Atmospheric Environment*, 2020, **5**, doi: 10.1016/j.aeaoa.2019.100053.
- [23] Qiao X, Yuan Y P, Tang Y, et al. Revealing the origin of fine particulate matter in the Sichuan Basin from a source-oriented modeling perspective [J]. *Atmospheric Environment*, 2021, **244**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117896.
- [24] 曹云擎, 王体健, 韩军彩, 等.“2+26”城市一次污染过程PM_{2.5}化学组分和来源解析研究 [J]. 环境科学学报, 2020, **40**(2): 361-372.
- Cao Y Q, Wang T J, Han J C, et al. Study on chemical composition and source apportionment of PM_{2.5} during a pollution episode in “2+26” cities [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2020, **40**(2): 361-372.
- [25] 李珊珊, 程念亮, 徐峻, 等. 2014年京津冀地区PM_{2.5}浓度时空分布及来源模拟 [J]. 中国环境科学, 2015, **35**(10): 2908-2916.
- Li S S, Cheng N L, Xu J, et al. Spatial and temporal distributions and source simulation of PM_{2.5} in Beijing-Tianjin-Hebei region in 2014 [J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(10): 2908-

- 2916.
- [26] 钱骏, 冯小琼, 陈军辉, 等. 四川盆地典型城市PM_{2.5}污染过程组分特征和来源解析[J]. 环境科学学报, 2021, **41**(11): 4366-4376.
Qian J, Feng X Q, Chen J H, et al. Composition characteristics and source apportionment of PM_{2.5} pollution process in typical cities in the Sichuan Basin[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2021, **41**(11): 4366-4376.
- [27] 曹佳阳, 樊晋, 罗彬, 等. 川南四座城市PM_{2.5}化学组分污染特征及其源解析[J]. 环境化学, 2021, **40**(2): 559-570.
Cao J Y, Fan J, Luo B, et al. Pollution characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in four urban environment of Southern Sichuan[J]. Environmental Chemistry, 2021, **40**(2): 559-570.
- [28] Tian M, Liu Y, Yang F M, et al. Increasing importance of nitrate formation for heavy aerosol pollution in two megacities in Sichuan Basin, southwest China[J]. Environmental Pollution, 2019, **250**: 898-905.
- [29] 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.
- [30] 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.
- [31] Chen Y, Wenger J C, Yang F M, et al. Source characterization of urban particles from meat smoking activities in Chongqing, China using single particle aerosol mass spectrometry[J]. Environmental Pollution, 2017, **228**: 92-101.
- [32] Peng C, Tian M, Chen Y, et al. Characteristics, formation mechanisms and potential transport pathways of PM_{2.5} at a rural background site in Chongqing, Southwest China[J]. Aerosol and Air Quality Research, 2019, **19**(9): 1980-1992.
- [33] 任丽红, 周志恩, 赵雪艳, 等. 重庆主城区大气PM₁₀及PM_{2.5}来源解析[J]. 环境科学研究, 2014, **27**(12): 1387-1394.
Ren L H, Zhou Z E, Zhao X Y, et al. Source apportionment of PM₁₀ and PM_{2.5} in urban areas of Chongqing[J]. Research of Environmental Sciences, 2014, **27**(12): 1387-1394.
- [34] 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.
- [35] 余家燕, 刘芮伶, 翟崇治, 等. 重庆城区PM_{2.5}中金属浓度及其来源[J]. 中国环境监测, 2014, **30**(3): 37-42.
Yu J Y, Liu R L, Zhai C Z, et al. Concentration and source analysis of metals in PM_{2.5} in Chongqing urban[J]. Environmental Monitoring in China, 2014, **30**(3): 37-42.
- [36] 李礼, 余家燕. 重庆城区空气中有机碳和元素碳浓度水平的监测分析[J]. 三峡环境与生态, 2012, **34**(2): 41-43, 59.
Li L, Yu J Y. Concentration monitoring and analysis of air-borne organic and elemental carbons in Chongqing urban area[J]. Environment and Ecology in the Three Gorges, 2012, **34**(2): 41-43, 59.
- [37] Hu Y, Balachandran S, Pachon J E, et al. Fine particulate matter source apportionment using a hybrid chemical transport and receptor model approach[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014, **14**(11): 5415-5431.
- [38] Ivey C E, Holmes H A, Hu Y T, et al. Development of PM_{2.5} source impact spatial fields using a hybrid source apportionment air quality model[J]. Geoscientific Model Development, 2015, **8**(7): 2153-2165.
- [39] Zong Z, Wang X P, Tian C G, et al. PMF and PSCF based source apportionment of PM_{2.5} at a regional background site in north China[J]. Atmospheric Research, 2018, **203**: 207-215.
- [40] Hanna S R, Russell A G, Wilkinson J G, et al. Monte carlo estimation of uncertainties in BEIS3 emission outputs and their effects on uncertainties in chemical transport model predictions[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2005, **110**(D1), doi: 10.1029/2004jd004986.
- [41] Appel K W, Bhate P V, Gilliland A B, et al. Evaluation of the community multiscale air quality (CMAQ) model version 4.5: sensitivities impacting model performance; part II-particulate matter[J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(24): 6057-6066.
- [42] Simon H, Baker K R, Phillips S. Compilation and interpretation of photochemical model performance statistics published between 2006 and 2012[J]. Atmospheric Environment, 2012, **61**: 124-139.
- [43] Liu D C, Nocedal J. On the limited memory BFGS method for large scale optimization[J]. Mathematical Programming, 1989, **45**(1-3): 503-528.
- [44] Nocedal J. Updating Quasi-Newton matrices with limited storage[J]. Mathematics of Computation, 1980, **35**(151): 773-782.
- [45] Zheng B, Tong D, Li M, et al. Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, **18**(19): 14095-14111.
- [46] Li M, Liu H, Geng G N, et al. Anthropogenic emission inventories in China: a review[J]. National Science Review, 2017, **4**(6): 834-866.
- [47] Baek J. Assessing and improving emissions and secondary organic aerosol formation in air quality modeling[D]. Atlanta: Georgia Institute of Technology, 2009. 140.
- [48] 彭超, 张丹, 方维凯, 等. 重庆市不同粒径颗粒物中水溶性离子污染特征[J]. 中国环境科学, 2021, **41**(10): 4529-4540.
Peng C, Zhang D, Fang W K, et al. Characteristics of water-soluble ions in multi-size particles in Chongqing[J]. China Environmental Science, 2021, **41**(10): 4529-4540.
- [49] Amil N, Latif M T, Khan M F, et al. Seasonal variability of PM_{2.5} composition and sources in the Klang Valley urban-industrial environment[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, **16**(8): 5357-5381.
- [50] Hopke P K. Review of receptor modeling methods for source apportionment[J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2016, **66**(3): 237-259.
- [51] Watson J G, Chen L W A, Chow J C, et al. Source apportionment: findings from the U. S. supersites program[J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2008, **58**(2): 265-288.
- [52] Belis C A, Karagulian F, Larsen B R, et al. Critical review and meta-analysis of ambient particulate matter source apportionment using receptor models in Europe[J]. Atmospheric Environment, 2013, **69**: 94-108.
- [53] 贺克斌. 城市大气污染物排放清单编制技术手册[M]. 北京: 清华大学, 2015.
- [54] Pirovano G, Colombi C, Balzarini A, et al. PM_{2.5} source apportionment in Lombardy (Italy): comparison of receptor and chemistry-transport modelling results [J]. Atmospheric Environment, 2015, **106**: 56-70.

CONTENTS

Impacts of Changes in Meteorological Conditions During COVID-19 Lockdown on PM _{2.5} Concentrations over the Jing-Jin-Ji Region	QIU Yu-lu, CHEN Lei, ZHU Jia, et al. (2831)
Influence of COVID-19 Prevention and Control Measures on PM _{2.5} Concentration, Particle Size Distribution, Chemical Composition, and Source in Zhengzhou, China	HUANG Bing-yi, WANG Shen-bo, HE Bing, et al. (2840)
Concentration Variation and Source Analysis of Metal Elements in PM _{2.5} During COVID-19 Control in Suzhou	MIAO Qing, YANG Qian, WU Ye-zheng, et al. (2851)
Changes in Carbonaceous Aerosol in the Northern Suburbs of Nanjing from 2015 to 2019	XIE Tian, CAO Fang, ZHANG Yan-lin, et al. (2858)
Source Apportionment of PM _{2.5} Based on Hybrid Chemical Transport and Receptor Model in Chongqing	PENG Chao, LI Zhen-liang, CAO Yun-qing, et al. (2867)
Analysis on the Characteristics of Oxidation Potential and Influence Sources of PM _{2.5} in Baoding City in Winter	WU Ji-yan, YANG Chi, ZAHNG Chun-yan, et al. (2878)
Pollution Characteristics and Sources of Water-soluble Organic Nitrogen in PM _{2.5} in Jiangbei New Area, Nanjing	GUAN Lu, DING Cheng, ZHANG Yu-xiu, et al. (2888)
Organic Aerosols and Source Analysis of Fine Particles in the Background of Shiwanda Mountain, Guangxi	XING Jia-li, CAO Fang, WANG Qian, et al. (2895)
Comparison of Regional Transportation and Transformation Models of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Research on Key Influencing Factors: Take the Beijing-Tianjin-Hebei Region as Example	ZHANG Xin-lu, LIU Shi-jie, HAN Mei-li, et al. (2906)
Exploring Formation of Ozone in Typical Cities in Beijing-Tianjin-Hebei Region Using Process Analysis	TANG Ying-xiao, YAO Qing, CAI Zi-ying, et al. (2917)
Characteristics and Meteorological Factors of PM _{2.5} -O ₃ Compound Pollution in Tianjin	XIAO Zhi-mei, LI Yuan, KONG Jun, et al. (2928)
Spatio-temporal Characteristics of Air Quality and Influencing Factors in Shandong Province from 2016 to 2020	ZHOU Meng-ge, YANG Yi, SUN Yuan, et al. (2937)
Trend Changes in Ozone Pollution and Sensitivity Analysis of Ozone in Henan Province	YAN Yang-yang, YIN Sha-sha, HE Qin, et al. (2947)
Effects of Tropical Cyclones on Ozone Pollution in the Pearl River Delta in Autumn	ZHAO Wei, LÜ Meng-yao, LU Qing, et al. (2957)
Real-time Composition and Sources of VOCs in Summer in Wuhan	SU Wei-feng, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, et al. (2966)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Summer in Yuncheng City	WEN Xiao-yu, ZHAO Wen-ting, LUO Shu-zhen, et al. (2979)
Neonicotinoid Insecticides Threaten Surface Waters at the National Scale in China	FAN Dan-dan, LIU Hong-ling, YANG Liu-yan (2987)
Spatiotemporal Distribution and Risk Assessment of Pharmaceuticals in Typical Drinking Water Sources in the Middle Reaches of the Yangtze River	WU Jun-me, WEI Lin, PENG Jing-qian, et al. (2996)
Pollution Characteristics and Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Underground and Surface Drinking Water Sources in Northeast Inner Mongolia	ZHANG Kun-feng, CHANG Sheng, FU Qing, et al. (3005)
Impact of Land Use Types at Different Scales on Surface Water Environment Quality and Its Driving Mechanism	SONG Jing-wen, ZHANG Xue-xia, JIANG Dong-yang, et al. (3016)
Shallow Groundwater Around Plateau Lakes; Spatiotemporal Distribution of Nitrogen and Its Driving Factors	LI Gui-fang, YANG Heng, YE Yuan-hang, et al. (3027)
Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of Lake Qinghai	ZHANG Ya-ran, CHE Fei-fei, FU Zheng-hui, et al. (3037)
Analysis of Heavy Metal Pollution Characteristics and Potential Ecological Risks of Surface Sediments in Dongjiang Lake	ZHAO Xiao-liang, LI Xiang, LU Hong-bin, et al. (3048)
Kinetic Release Characteristics of Organic Phosphorus of Sediment-water and Water Quality Risks	LIU Zhe-zhe, NI Zhao-kui, LIU Si-ru, et al. (3058)
Distribution Characteristics, Source Analysis, and Pollution Evaluation of Organic Matter in Surface Sediments of Qingpu District, Yangtze River Delta Integration Demonstration Area	ZHANG Zhi-bo, DUAN Yan-ping, TU Yao-jen, et al. (3066)
Distribution Characteristics of Microplastics and Their Migration Patterns in Xiangxi River Basin	CHEN Sheng-sheng, LI Wei-ming, ZHANG Kun, et al. (3077)
Community Structure and Microbial Function Responses of Biofilms Colonizing on Microplastics with Vertical Distribution in Urban Water	CHEN Yu-fang, YAN Zhen-hua, ZHANG Yan, et al. (3088)
Community Structure of Phytoplankton and Environmental Impact Factors in Lake Hongze from 2015 to 2020	QU Ning, DENG Jian-ming, ZHANG Zhen, et al. (3097)
Structural Characteristics of Zooplankton and Phytoplankton Communities and Its Relationship with Environmental Factors in Different Regions of Nanhu Lake in Jiaxing City	WANG Ya-wen, LI Ying-he, ZHANG Bo, et al. (3106)
Temporal and Spatial Variation Characteristics and Source Analysis of Agricultural Non-point Source Pollution Load in Guangdong During the Past 20 Years	GE Xiao-jun, HUANG Bin, YUAN Zai-jian, et al. (3118)
Output Characteristics and Driving Mechanism of Agricultural Non-point Source (AGNPS) Pollutant in Plain and Valley Region of Upper Yangtze River, China	TAN Shao-jun, LIU Yang, ZHU Xiao-jie, et al. (3128)
Risk Assessment Method of Non-point Source Pollution Output for Watershed Using High Resolution Data	GU Jing-jing, YE Yun-tao, DONG Jia-ping, et al. (3140)
Spectral Characteristics Change in Dissolved Organic Matter in Urban River Under the Influences of Different Intensities of Non-point Source Pollution	CHEN Xu-dong, GAO Liang-min (3149)
Combination of Ecological Ditch and Bioretention Pond to Control Rural Runoff Pollution	SHI Lei, YANG Xiao-li, WU Qing-yu, et al. (3160)
Influence of Different Hydraulic Disturbance Intensities on the Migration of Aged PSMPs Between Sediment and Water	WU Xiang-xiang, AI Ping, LI Da-peng (3168)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of Rainfall Runoff from Roofs in the Central District of Beijing	XI Yue, GUO Jing, TAO Lei, TIAN Ying, et al. (3177)
Inter-annual Changes in Runoff Quality from Green Roofs with Different Vegetation	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, GE De, et al. (3187)
Effectivity of Multiphase Fenton-like System of Iron Reduction Induced by Bisphenol A Authigenic Photoelectron	CAO Si-yu, XU Lu, FU Quan-chao, et al. (3195)
Removal Characteristics of Four Typical Antibiotics in Denitrification System	TANG Jia, CHEN Xi, QIN Mu-chuan, et al. (3204)
Adsorption Capacity and Mechanism of Biochar Derived from Typical Agricultural Wastes for Cadmium in Aqueous Solutions	GONG Pei-yun, SUN Li-juan, SONG Ke, et al. (3211)
Effect of Humic Acid-Heavy Metals on the Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX Bacteria and Its Kinetic Analysis	LI Yun, CUI Nan, XIONG Xing-xing, et al. (3221)
Responding Mechanism of Vegetation Cover to Climate Change and Human Activities in Southwest China from 2000 to 2020	XU Yong, HUANG Wen-ting, DOU Shi-qing, et al. (3230)
Spatial Distribution and Eco-stoichiometric Characteristics of Soil Nutrient Elements Under Different Vegetation Types in the Yellow River Delta Wetland	SUN De-bin, LI Yun-zhao, YU Jun-bao, et al. (3241)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of Perfluoroalkyl Substances in Surface Soils of the Northeast Tibetan Plateau	WEN Xiang-jie, CHEN Zhao-hui, XU Wei-xin, et al. (3253)
Effect of Land Use/Land Cover Change on the Concentration of Se and Heavy Metals in Soils from a “Return Cropland to Forest” Area, Southwest China	LIU Yong-lin, LIU Shu-ling, WU Mei, et al. (3262)
Speciation Characteristics and Risk Assessment of Soil Heavy Metals from Puding Karst Critical Zone, Guizhou Province	ZHANG Qian, HAH Gui-lin (3269)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Germanium in Soil in the Eastern Mountainous Area of the Nanyang Basin	DONG Qiu-yao, LAI Shu-ya, SONG Chao, et al. (3278)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Risk Assessment of Golden Snub-nosed Monkey (<i>Rhinopithecus roxellana</i>) Habitat in Shennongjia Mountains	YAN Jia-li, YU Zi-ling, YU Hui-liang, et al. (3288)
Utilization and Remediation of Heavily Cadmium-Contaminated Agricultural Soils by Two Crop Rotation Patterns After Lime and Sepiolite Passivation	XU Lu, ZHOU Chun-hai, LIU Mei, et al. (3299)
Effects of Phosphorus Sufficiency and Deficiency on Cadmium Uptake and Transportation by Rice	TAN Wen-tao, HUO Yang, ZHOU Hang, et al. (3308)
Responses of Cd Accumulation in Rice and Spectral Characteristics of Soil Dissolved Organic Matter Regulated by Soil Amendments	LUO Hui-long, CHEN Juan, ZHANG Yun-hui, et al. (3315)
Responses of Soil Fungal Communities to Subalpine Meadow Degradation in Mount Wutai	LUO Zheng-ming, HE Lei, LIU Jin-xian, et al. (3328)
Response of Soil Fungal Communities in Diversified Rotations of Wheat and Different Crops	JIN Hai-yang, YUE Jun-qin, YAN Ya-qian, et al. (3338)
Spatial Characterization of Stable Isotope Composition of Organic Carbon from Farmland Soils in Chongqing	LIAO Yu-qin, LONG Juan, MU Zhi-jian, et al. (3348)
Characteristics of Soil NO Emissions in the Yangtze River Delta Region for Year 2018	LIAO Jia-qiang, XUE Jin, WANG Wen-jin, et al. (3357)
Thermal Environment Evolution and Response Mechanism of Urban Sprawl Based on Multi-source Data	LIANG Jian-she, BAI Yong-ping, YANG Xue-di, et al. (3365)