

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第5期

Vol.37 No.5

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

2015年12月北京市空气重污染过程分析及污染源排放变化	薛亦峰,周震,聂滕,潘涛,齐璐,聂磊,王占山,李云婷,李雪峰,田贺忠(1593)
北京 APEC 期间大气颗粒物中类腐殖酸的污染特征及来源	周雪明,仝雪娇,项萍,谭吉华,段菁春,何晓明,贺克斌,马永亮(1602)
利用 SPAMS 分析北京市硫酸盐、硝酸盐和铵盐季节变化特征及潜在源区分布	刘浪,张文杰,杜世勇,侯鲁健,韩斌,杨文,陈敏东,白志鹏(1609)
兰州城区大气 PM _{2.5} 污染特征及来源解析	王新,聂燕,陈红,王博,黄韬,夏敦胜(1619)
成都市西南郊区春季大气 PM _{2.5} 的污染水平及来源解析	林瑜,叶芝祥,杨怀金,张菊,殷蔚雯,李晚芬(1629)
中亚热带背景区重庆四面山大气气态总汞含量变化特征	刘伟明,马明,王定勇,孙涛,魏世强(1639)
固定源排放污染物健康风险评价方法的建立	陈强,吴焕波(1646)
北京市典型燃烧源颗粒物排放水平与特征测试	胡月琪,邬晓东,王琛,梁云平,马召辉(1653)
南京公园降尘中重金属污染水平及风险评价	王呈,钱新,李慧明,孙一轩,王金花(1662)
CoCuMnO ₂ 光催化氧化多组分 VOCs 特性及其动力学	孟海龙,卜龙利,刘嘉栋,高波,冯奇奇,谭娜,谢帅(1670)
大辽河感潮河段及近岸河口氮、磷的分布及潜在性富营养化	张雷,曹伟,马迎群,韩超南,秦延文,赵艳民,刘志超,杨晨晨(1677)
典型温冰川区湖泊的稳定同位素空间分布特征	史晓宜,蒲焘,何元庆,陆浩,牛贺文,夏敦胜(1685)
利用δ ¹⁵ N-NO ₃ ⁻ 和 δ ¹⁸ O-NO ₃ ⁻ 示踪北京城区河流硝酸盐来源	赵庆良,马慧雅,任玉芬,王效科,彭剑锋,贺成武,武俊良,刘梦贞,闫苗苗(1692)
柳江盆地浅层地下水硝酸盐分布特征及影响因素分析	王贺,谷洪彪,迟宝明,李海君,姜海宁(1699)
三峡库区小流域不同土地利用类型对氮素流失影响	陈成龙,高明,倪九派,谢德体,邓华(1707)
亚热带农区生态沟渠对农业径流中氮素迁移拦截效应研究	王迪,李红芳,刘锋,王毅,钟元春,何洋,肖润林,吴金水(1717)
平原河网典型污染物生物降解系数的研究	冯帅,李叙勇,邓建才(1724)
沉水植物对沉积物微生物群落结构影响:以洪泽湖湿地为例	张丁予,章婷曦,董丹萍,李德芳,王国祥(1734)
苏南水库硅藻群落结构特征及其控制因素	任杰,周涛,朱广伟,金颖薇,崔扬,许海,朱梦圆,夏明芳,陈伟民(1742)
河北衡水湖湿地汞污染现状及生态风险评价	王乃姗,张曼胤,崔丽娟,马牧源,颜亮,穆泳林,秦鹏(1754)
顺德水道土壤及沉积物中重金属分布及潜在生态风险评价	蔡怡敏,陈卫平,彭驰,王铁宇,肖荣波(1763)
台州电子垃圾拆解区水和沉积物中多溴联苯醚污染特征与生态风险	陈香平,彭宝琦,吕素平,陈强,张勇,黄长江,董巧香(1771)
乌江中上游段河水主要离子化学特征及控制因素	黄奇波,覃小群,刘朋雨,蓝芳宁,张连凯,苏春田(1779)
岩溶流域地下水 TOC 输出及影响因素分析:以重庆丰都雪玉洞地下河流域为例	王巧莲,蒋勇军,陈宇(1788)
广东英德宝晶宫洞穴滴水元素季节变化与影响因素	黄嘉仪,陈琳,陈琼,刘淑华,杨亮,童晓宁,贺海波,米小建,邓肖敏,彭小桃,李汉杰,杨琰,周厚云(1798)
基于 PCR-DGGE 和拟杆菌(<i>Bacteroides</i>) 16S rRNA 的岩溶地下水粪便污染源示踪研究:以重庆南山老龙洞地下河系统为例	张弘,蒋勇军,张远瞩,段逸凡,吕现福,贺秋芳(1805)
典型岩溶区地下河中溶解态脂类生物标志物来源解析及其变化特征	梁作兵,孙玉川,李建鸿,王尊波,谢正兰,张媚,廖昱,江泽利(1814)
钴活化过一硫酸盐氧化过程中卤代副产物的生成	刘阔,金浩,董为,季跃飞,陆隽鹤(1823)
天冬氨酸在氯化过程中生成消毒副产物二氯乙腈的研究	丁春生,李乃军,张涛,章梦青(1831)
臭氧氧化饮用水过程中可同化有机碳生成的影响因素	董秉直,张佳丽,何畅(1837)
污水管网典型混流制区域水量水质波动特征解析	程珣,张明凯,刘艳臣,施汉昌(1845)
HDTMA 改性沸石的制备及吸附废水中对硝基苯酚的性能和动力学	郭俊元,王彬(1852)
放射性废水处理中吸附铀的优势藻种筛选	李鑫,胡洪营,余骏一,赵文玉(1858)
微米 Fe ₃ O ₄ 磁粉调理-压力电场污泥脱水工艺过程研究	钱旭,王毅力,赵丽(1864)
间歇曝气 SBR 处理养猪沼液的短程脱氮性能	宋小燕,刘锐,税勇,川岸朋树,占新民,陈吕军(1873)
不同灌溉方式对华北平原冬小麦田土壤 CO ₂ 和 N ₂ O 排放通量的影响	郭树芳,齐玉春,尹飞虎,彭琴,董云社,贺云龙,闫钟清(1880)
卫河新乡市区段春季溶解 CH ₄ 与 N ₂ O 浓度特征	侯翠翠,张芳,李英臣,王奇博,刘赛(1891)
模拟氮沉降对内蒙古克氏针茅草原 N ₂ O 排放的影响	杨涵越,张婷,黄永梅,段雷(1900)
土壤呼吸与土壤有机碳对不同秸秆还田的响应及其机制	曹湛波,王磊,李凡,付小花,乐毅全,吴纪华,陆兵,徐殿胜(1908)
黑土丘陵区小流域土壤有机质空间变异及分布格局	高凤杰,马泉来,韩文文,单培明,周军,张少良,张志民,王宏燕(1915)
耕作方式对紫色水稻土团聚体中有机质及重金属的分布特征影响	史琼彬,赵秀兰,常同举,卢吉文(1923)
北京东南郊典型地层重金属分布特征与潜在生态风险	赵倩,马琳,刘翼飞,何江涛,李广贺(1931)
准东煤田露天矿区土壤重金属污染现状评价及来源分析	刘巍,杨建军,汪君,王果,曹月娥(1938)
纳米 TiO ₂ 对土壤重金属释放及形态变化的影响	张金洋,王定勇,梁丽,李楚娟,张成,周雄,刘娟(1946)
纳米零价铁铜双金属对铬污染土壤中 Cr(VI) 的还原动力学	马少云,祝方,商执峰(1953)
低分子有机酸对硫杆菌活性的抑制作用及对土壤重金属脱除的影响	宋永伟,王鹤茹,曹艳晓,李飞,崔春红,周立祥(1960)
粒径和包裹物对纳米银在海洋微藻中的毒性影响	黄俊,衣俊,强丽媛,程金平(1968)
萱草修复石油烃污染土壤的根际机制和根系代谢组学分析	王亚男,程立娟,周启星(1978)
高温堆肥过程对猪粪来源抗生素抗性基因的影响	郑宁国,黄南,王卫卫,喻曼,陈晓旻,姚燕来,王卫平,洪春来(1986)
磺胺抗性消长与堆肥进程交互特征	林辉,汪建妹,孙万春,符建荣,陈红金,马军伟(1993)
《环境科学》征订启事(1830) 《环境科学》征稿简则(1977) 信息(1698,1851,1992)	

成都市西南郊区春季大气 PM_{2.5} 的污染水平及来源解析

林瑜¹, 叶芝祥^{1,2*}, 杨怀金^{1,2}, 张菊^{1,2}, 殷蔚雯¹, 李晓芬¹

(1. 成都信息工程大学资源环境学院, 成都 610225; 2. 大气环境模拟与污染控制四川省高校重点实验室, 成都 610225)

摘要: 为了解成都市西南郊区大气中 PM_{2.5} 污染特征, 于 2015 年 3 月 1~31 日对成都西南郊区大气 PM_{2.5} 进行膜样品采集, 并分析其中的化学组分。结果表明, 3 月成都市西南郊区大气 PM_{2.5} 的日均质量浓度为 121.21 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 采集的 31 个有效 PM_{2.5} 样品中有 24 个样品日均浓度在 75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上, 日超标率为 77%, 该地区 3 月 PM_{2.5} 污染严重。在与大气气象要素的关系研究中发现, 大气颗粒物 PM_{2.5} 与大气能见度有着较好的指数关系, 与温度、湿度有一定的正相关关系, 但相关性并不明显。水溶性阴阳离子中 NH_4^+ (16.24%)、 SO_4^{2-} (12.58%)、 NO_3^- (9.91%) 占 PM_{2.5} 的主导地位, $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 的比值是 0.77, 表明成都西南郊区固定源的污染要大于移动源的污染, 燃煤排放的污染相对于汽车尾气较多。有机碳(OC)/元素碳(EC)比值均大于 2.0, 表明有二次有机碳(SOC)产生。利用 OC/EC 比值法估算 SOC 的质量浓度发现, 成都西南郊区 3 月 PM_{2.5} 中 SOC 的平均浓度水平为 3.49 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 对 OC 的贡献率达 20.6%, 说明成都市西南郊区的 OC 主要来源于一次排放, 且 OC 与 EC 的相关性分析显示, 其相关系数达 0.95, 说明 OC、EC 来源相似且相对稳定, 成都市西南郊区春季受局地源排放影响较大, 一次排放占主导地位, 二次有机碳对 OC 贡献相对较小, 与估算所得的 SOC 性质一致。利用主成分分析(PCA)方法对成都西南郊区大气中 PM_{2.5} 进行来源解析, 发现成都西南郊区 PM_{2.5} 的主要污染源为燃煤、生物质的燃烧、二次硝酸盐或硫酸盐、土壤和扬尘源、汽车尾气源、电子生产源以及机械加工源。

关键词: 成都; PM_{2.5}; 有机碳; 元素碳; 水溶性无机离子; 无机元素; 来源解析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)05-1629-10 DOI: 10.13227/j.hj.kx.2016.05.005

Pollution Level and Source Apportionment of Atmospheric Particles PM_{2.5} in Southwest Suburb of Chengdu in Spring

LIN Yu¹, YE Zhi-xiang^{1,2*}, YANG Huai-jin^{1,2}, ZHANG Ju^{1,2}, YIN Wei-wen¹, LI Xiao-fen¹

(1. College of Resources and Environment, Chengdu University of Information Technology, Chengdu 610225, China; 2. Air Environmental Modeling and Pollution Controlling Key Laboratory of Sichuan Higher Education Institutes, Chengdu 610225, China)

Abstract: In order to understand the characteristics of PM_{2.5} pollution in the atmosphere of Chengdu southwest suburb, PM_{2.5} particles in Chengdu southwest suburb were collected and analyzed from March 1st to March 31st, 2015. The results showed that the daily average concentration of PM_{2.5} in the southwest suburb of Chengdu reached 121.21 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, and the average daily concentration of 24 samples in 31 PM_{2.5} samples was over 75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, the daily excessive rate was 77%, indicating the PM_{2.5} pollution in the study area was serious in March. When studying the relationship between atmospheric and meteorological factors, it was found that there was a significant index correlation between PM_{2.5} concentration and atmospheric visibility, and it had a positive correlation with temperature and humidity, but the correlation was not obvious. NH_4^+ (16.24%), SO_4^{2-} (12.58%) and NO_3^- (9.91%) were dominant in PM_{2.5}. The ratio of $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ was 0.77, which indicated that the pollution of stationary sources in the southwest suburb was more severe than that of mobile sources. Organic carbon (OC)/elemental carbon (EC) ratios were higher than 2, which indicated the existence of second organic carbon (SOC). Using OC/EC ratio method to estimate the concentration of SOC, it was found that the average concentration of SOC in the southwest suburb of Chengdu in March was 3.49 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, and the contribution rate of OC was 20.6%, which showed that the main source of OC in the southwest suburb of Chengdu was primary discharge. The correlation analysis of OC and EC showed that the correlation coefficient reached 0.95, indicating that the OC and EC sources were similar and relatively stable, and there was a great impact of local source emissions on Chengdu southwest suburb in spring, and primary discharge played a dominant role, while the contribution of SOC to OC was relatively small, which was consistent with the SOC characteristics obtained by estimation. Using principal component analysis method to analyze the sources of PM_{2.5} in the southwest of Chengdu, it was found that the main pollution sources of PM_{2.5} in southwest suburb of Chengdu were coal burning and biomass burning, secondary nitrate/sulfate, soil and dust, vehicle emissions, electronic production source, and mechanical processing source.

Key words: Chengdu; PM_{2.5}; organic carbon; elemental carbon; water-soluble inorganic ions; inorganic elements; source apportionment

收稿日期: 2015-08-11; 修订日期: 2015-12-25

基金项目: 四川省社会科学规划重大项目(SC15ZD01); 四川省教育厅项目(14ZB0170); 成都信息工程大学项目(CRF201510)

作者简介: 林瑜(1989~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气环境监测与评价, E-mail: 540954930@qq.com

* 通讯联系人, E-mail: yzxiang@cuit.edu.cn

继黄淮海地区、长江河谷、珠江三角洲之后,四川盆地成为第4个全国灰霾严重地区。而成都位于四川盆地西部,被包围在龙泉山脉西部和邛崃山脉的东部,不利地形导致了其大气污染物难以扩散,而使成都遭受严重的空气污染。 $\text{PM}_{2.5}$ 是大气污染中危害最为严重的颗粒物,其主要影响在于能对大气能见度和人体健康产生重大影响。有相关研究表明, $\text{PM}_{2.5}$ 对可见光具有强烈的散射能力从而影响能见度,是导致灰霾天气的主要原因之一^[1]。更有研究表明,环境空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 的浓度每增加 $10\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,人群中患上心血管疾病并死亡的风险就增高12%^[2], $\text{PM}_{2.5}$ 可通过呼吸道进入肺泡并沉淀进而通过血液循环将导致心肺功能障碍性疾病,导致鼻炎、支气管炎的呼吸道疾病^[3],因其体积小,比表面积大, $\text{PM}_{2.5}$ 成为了人类排放的污染物的主要载体,其上吸附了大量的细菌、病毒、重金属等各类对人体健康有危害的污染物,因此实时地监测其浓度及组分,为有效降低其浓度提供基础数据,保障人群安全。

因 $\text{PM}_{2.5}$ 所具有的独特污染特点和巨大的危害作用,对 $\text{PM}_{2.5}$ 的研究已成为国内外研究学者的重点。余锡刚等^[4]研究发现可吸入颗粒物 $\text{PM}_{2.5}$ 能使城市上空的大气边界层乃至对流层的底层整体出现大气浑浊的现象,即灰霾天气。贾小花等^[5]研究发现, $\text{PM}_{2.5}$ 的质量浓度和大气条件之间有着一定的关系,与风速呈负相关,与湿度成正相关,而与温度的关系不明显。Rengarajan等^[6]研究发现印度西部的艾哈迈达巴德城区的 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 的质量浓度分别为 $32\sim 106\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $121\sim 327\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,EC和OC在 $\text{PM}_{2.5}$ 中所占的比例高于在 PM_{10} 中的比例,其主要来源于生物质的燃烧,而水溶性离子中 SO_4^{2-} 主要与 NH_4^+ 结合。成都市因其特殊的地理位置(位于四川盆地西部),研究其西南郊区 $\text{PM}_{2.5}$ 的组成、浓度水平以及来源迫在眉睫,通过本研究以期成都市以及四川盆地大气污染防治及灰霾天气成因提供基础数据以及理论支撑。

1 材料与方法

1.1 样品采集

采样点位于四川省成都信息工程大学资环楼楼顶。楼顶距离地面12 m左右,采样点距楼顶地面1.5 m以上。于2015年3月1~31日利用KS-306型颗粒物采样器(额定流量为 $2.3\text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$)进行样

品采集,采样期间每日(当日10:00~次日09:30)使用47 mm石英膜采集 $\text{PM}_{2.5}$ 样品,共采集了31个 $\text{PM}_{2.5}$ 样品,采样前将石英膜放于马弗炉于 800°C 下灼烧3 h以去除有机物。石英膜在采样前后于恒温恒湿箱($20\pm 1^\circ\text{C}$ 、 $(50\pm 5)\%$ 平衡24 h后,再用十万分之电子天平(Mettler Toledo)进行称量以确定 $\text{PM}_{2.5}$ 的质量浓度,所有样品均放入冷冻柜(-4°C)中保存至实验分析。

1.2 气象要素数据的获取

采样期间利用VFP能见度仪进行采样点大气能见度的同步观测,温度以及湿度采用TEOM 1405F型大气颗粒物连续监测仪获得。

1.3 样品处理及分析

首先用直径为8 mm的环刀切割石英膜样品,采用美国沙漠所DRI Model 2001A型有机碳元素碳分析仪对石英膜样品中碳组分进行测定。

剪取1/2石英膜加入10 mL超纯水($R=18.2\text{ M}\Omega\cdot\text{cm}$, Milli-Q Gradient, Millipore Company),超声提取1 h后转移至50 mL比色管,再向样品中加入10 mL超纯水,超声提取1 h后合并两次溶液定容至50 mL,用 $0.22\text{ }\mu\text{m}$ 微孔滤膜进行抽滤。处理后的石英膜样品使用阳离子色谱仪(ICS-90A型, Dionex company)对水溶性阳离子进行测定,阴离子色谱仪(IC-761型, Metrohm company)对水溶性阴离子进行测定。将剩下的1/2石英膜样品进行微波消解(消解酸用量:5 mL硝酸+4 mL氢氟酸),于 180°C 下消解30 min后定容至25 mL,消解后的样品利用ICP-OES(ICP-725型, Agilent company)进行无机元素的测定。

2 结果与讨论

2.1 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度与气象要素的关系

$\text{PM}_{2.5}$ 的质量浓度日变化范围为 $43.80\sim 181.52\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,平均而言,采样期间 $\text{PM}_{2.5}$ 的月均质量浓度为 $(121.21\pm 42.88)\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,相较中国其他城市,如南京 $81\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ^[7]、广州 $81.2\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ^[8]、厦门 $86\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ^[9]和重庆 $130\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ^[10],成都 $\text{PM}_{2.5}$ 的质量浓度相对较高,但与重庆浓度相当,且是国家环境空气质量二级标准的1.6倍,采集的31个有效 $\text{PM}_{2.5}$ 样品中有24个样品日均浓度在 $75\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上,日超标率为77%。

图1显示了采样期间 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度与大气能见度的变化关系。采样期间大气能见度的日均值变化范围为 $1.80\sim 10.87\text{ km}$,月平均值为

(5.63 ± 2.47) km. PM_{2.5} 的质量浓度在 3 月 7 ~ 16 日及 3 月 26 ~ 31 日保持较高水平,能见度低于 6 km,在 3 月 28 日低至 1.8 km,从图 1 中还发现 3 月 4 日的质量浓度明显最低,但是能见度却并不是最高,而且相对较低($Vis = 4.88$),结合当天的气象条件发现(见表 1),3 月 4 日当天有明显的降水,且降雨量较大,明显降低了大气能见度,因此在作 PM_{2.5} 的质量浓度与能见度之间的相关性分析时,剔除了由于降水对能见度有明显影响的 5 个样品,发现 PM_{2.5} 的质量浓度与能见度呈现较好的指数关系,相关系数为 $R = 0.82$. 由此进一步证明,大气能见度的确受 PM_{2.5} 的质量浓度的影响,且质量浓度越大能见度越低,与其他学者的研究是一致的.

中国气象局颁布的气象行业标准中,排除降水、沙尘暴、扬沙、浮尘、烟幕、吹雪、雪暴等天气外造成的障碍,将空气湿度 $< 80\%$ 且大气能见度低于

10km 的天气现象判定为霾,相对湿度在 $80\% \sim 95\%$ 时,则按照大气成分指标进一步判定^[11]. 根据采样期间能见度和相对湿度(见表 1)以及大气成分指标(PM_{2.5} 浓度限值 $75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)区分的霾日与非霾日,发现成都西南郊区整个 3 月(除去降水日)都是灰霾日,其中 3 月 28 日是重度霾天气(能见度 $Vis < 2$ km),中度霾天气($2 \text{ km} \leq Vis < 3 \text{ km}$)1 d(3 月 16 日),轻度霾天气($3 \text{ km} \leq Vis < 5 \text{ km}$)14 d,其余均是轻微霾天气. 从判定结果来看,成都西南郊区整个 3 月都遭受了或轻或重的霾污染,大大地威胁了人群健康.

在研究 PM_{2.5} 质量浓度与温度、湿度之间的关系时发现,PM_{2.5} 质量浓度与相对湿度和温度都呈一定的正相关,与相对湿度相关系数为 $R = 0.31$,与温度的相关系数为 $R = 0.21$,这与贾小花等^[5]的研究结果相似,但由于本研究的样本量有限,所以相关性还有待进一步研究.

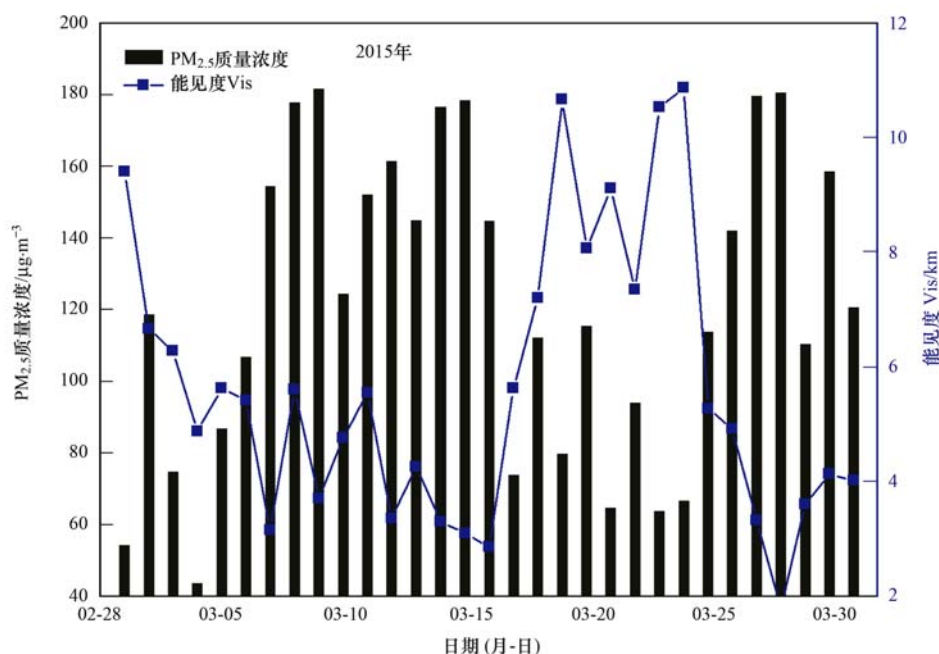


图 1 PM_{2.5} 质量浓度与大气能见度

Fig. 1 PM_{2.5} mass concentration and atmospheric visibility

2.2 PM_{2.5} 中水溶性无机离子浓度水平

采样期间水溶性离子总量(TWSI)质量浓度日变化范围为 $17.55 \sim 74.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,月平均浓度为 $(46.63 \pm 18.08) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,占总 PM_{2.5} 质量浓度的 38.47%,说明水溶性离子是 PM_{2.5} 的重要组成部分,与其他城市春季大气细粒子研究结果相比较,低于上海^[12](大于 60%),高于西安^[13](30.1%). 其中各离子平均浓度由大到小依次是 SO_4^{2-} [$(15.25 \pm 5.96) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (12.58% , 占 PM_{2.5} 质量分数) >

NO_3^- [$(12.02 \pm 6.32) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (9.91%) > NH_4^+ [$(10.12 \pm 4.77) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (8.35%) > Cl^- [$(3.29 \pm 1.70) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (2.71%) > Ca^{2+} [$(2.51 \pm 1.40) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (2.07%) > K^+ [$(1.96 \pm 0.74) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (1.62%) > Na^+ [$(0.79 \pm 0.42) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (0.65%) > Mg^{2+} [$(0.349 \pm 0.11) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (0.29%) > F^- [$(0.348 \pm 0.07) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (0.29%)],可见,水溶性二次离子 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 在 PM_{2.5} 中占主导地位,占 PM_{2.5} 质量分数为 30.84%.

SO_4^{2-} 和 NO_3^- 主要是经过前体物 SO_2 和 NO_x 在大气氧化剂作用下生成硫酸和硝酸, NH_4^+ 则通常被认为是由氨气与大气形成的二次污染物硫酸或硝酸反应生成^[14], 为了研究 SO_2 与硫酸盐和 NO_2 与硝酸盐之间的

转化率, 通常用 SOR [sulfur oxidation ratio, 硫的氧化率, 见公式(1)和(3)] 和 NOR [nitrogen oxidation ratio, 氮的氧化率, 见公式(2)] 来表示^[15]. SOR 和 NOR 越高, 说明大气中生成的二次污染物越多^[15].

表 1 采样期间采样点各气象要素¹⁾

Table 1 Meteorological elements at the sampling site during the sampling period									
采样时间	质量浓度 / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	降雨量/mm	湿度/%	温度/ $^{\circ}\text{C}$	采样时间	质量浓度 / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	降雨量/mm	湿度/%	温度/ $^{\circ}\text{C}$
03-01	54.25	0.0	63.58	10.84	03-17	73.97	0.0	63.40	21.57
03-02	118.64	0.0	77.59	9.31	03-18	112.17	0.0	70.71	18.27
03-03	74.76	0.3	61.64	11.21	03-19	79.81	0.0	75.26	15.82
03-04	43.80	1.9	96.10	7.15	03-20	115.48	0.3	71.15	17.01
03-05	86.90	0.0	83.04	8.60	03-21	64.76	0.3	62.24	19.59
03-06	106.76	0.0	79.77	10.77	03-22	94.00	0.0	71.72	17.18
03-07	154.48	0.0	82.23	10.68	03-23	63.88	0.0	69.33	17.60
03-08	177.71	0.0	65.23	14.50	03-24	66.67	0.0	72.63	18.28
03-09	181.52	0.0	66.76	15.94	03-25	113.71	0.0	73.51	18.76
03-10	124.46	0.3	78.16	12.66	03-26	142.09	0.0	66.76	20.97
03-11	152.04	0.0	74.50	12.94	03-27	179.57	0.0	83.83	18.06
03-12	161.45	0.0	72.65	12.79	03-28	180.43	1.3	88.81	17.58
03-13	144.89	0.0	66.51	16.82	03-29	110.41	0.0	75.44	21.36
03-14	176.58	0.0	67.74	18.27	03-30	158.57	0.0	67.48	24.19
03-15	178.37	0.0	77.16	17.75	03-31	120.64	0.0	82.00	21.09
03-16	144.73	0.0	81.45	17.17					

1) 采样时间是以当日 10:00 ~ 次日 09:30 为一个采样日, 如样品 03-01 是 2015 年 3 月 1 日 10:00 ~ 2015 年 3 月 2 日 09:30, 各气象要素也是相对应的这个时段的日均值

$$\text{SOR} = \frac{[\text{nss-SO}_4^{2-}]/96}{[\text{nss-SO}_4^{2-}]/96 + [\text{SO}_2]/64} \quad (1)$$

$$\text{NOR} = \frac{[\text{NO}_3^-]/62}{[\text{NO}_3^-]/62 + [\text{NO}_2]/46} \quad (2)$$

$$[\text{nss-SO}_4^{2-}] = [\text{SO}_4^{2-}] - 0.2517 \times [\text{Na}^+] \quad (3)$$

式中 nss-SO_4^{2-} (non-sea-salt sulfate, 非海盐 SO_4^{2-}) 含量由大气颗粒物里 SO_4^{2-} 总含量扣除海盐贡献量计算(海盐颗粒物中 $\text{SO}_4^{2-}/\text{Na}^+ = 0.2517$). 大气颗粒物中 Na^+ 假定全部来自海盐. 单位为 $\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$.

采样期间 $\text{PM}_{2.5}$ 中 SOR 和 NOR 的平均值分别为 0.42 和 0.16, SOR 高于 NOR, 说明成都市硫的转化比氮的转化要快很多, 虽然目前成都 SO_2 浓度低于国家环境空气质量二级标准, 而 NO_2 高于国家环境空气质量二级标准, 则理所应当要控制好 NO_2 的排放, 但在如此高的硫的转化率下, 控制好成都 NO_x 的同时也应控制 SO_2 的浓度, 减少二次污染. 与其他城市比较, SOR 高于重庆^[15] (0.26), 海西^[16] (0.32), NOR 高于重庆 (0.12), 低于海西 (0.18), 说明成都市西南郊区二次离子的污染较为严重, 这与成都市不利的大气扩散条件是分不开的.

$\text{PM}_{2.5}$ 中各无机水溶性离子之间的相关性能够反映各离子之间性质和来源的相似程度^[16], 采样期间二次离子 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 都有很好的相关性, 相关系数分别是 $R = 0.89$ 和 $R = 0.84$ (见图 2), 说明 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 主要以 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4NO_3 的形式存在^[17,16], 且 3 种离子主要为化学反应产生的二次离子, 而成都市西南郊区大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} ($[\text{SO}_4^{2-}] = 2 \times [\text{非海盐 } \text{SO}_4^{2-}]$) 和 NO_3^- 摩尔浓度的平均比值为 1.07, 进一步证明了成都市西南郊区大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 主要以 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4NO_3 的形式存在^[17].

大气颗粒物中 NO_3^- 与 SO_4^{2-} 的质量浓度比值用来比较移动源 (如汽车尾气) 和固定源 (如燃煤) 对大气污染的贡献大小^[18], 如果 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 的比值小于 1 则表明固定源的污染要大于移动源的污染, 即煤的燃烧是主要污染源, 如果 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 的比值大于 1 则表明移动源的污染要大于固定源的污染, 即汽车尾气是主要污染源. 采样期间研究区域 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 的比值是 0.77, 与国内其他城市研究结果相比较, 低于北京^[19] (0.88), 高于上海^[20] (0.43)、天津^[21] (0.65) 和台湾台中^[22] (0.2) 的观

测值. 由于 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 的比值小于 1, 说明成都西南郊区固定源的污染要大于移动源的污染, 因成都市自 2015 年 3 月 1 日起, 绕城高速路以内禁烧燃

煤, 而采样点位于绕城外, 其附近仍有燃煤燃烧, 因此成都市西南郊区燃煤排放的污染相对于汽车尾气较多.

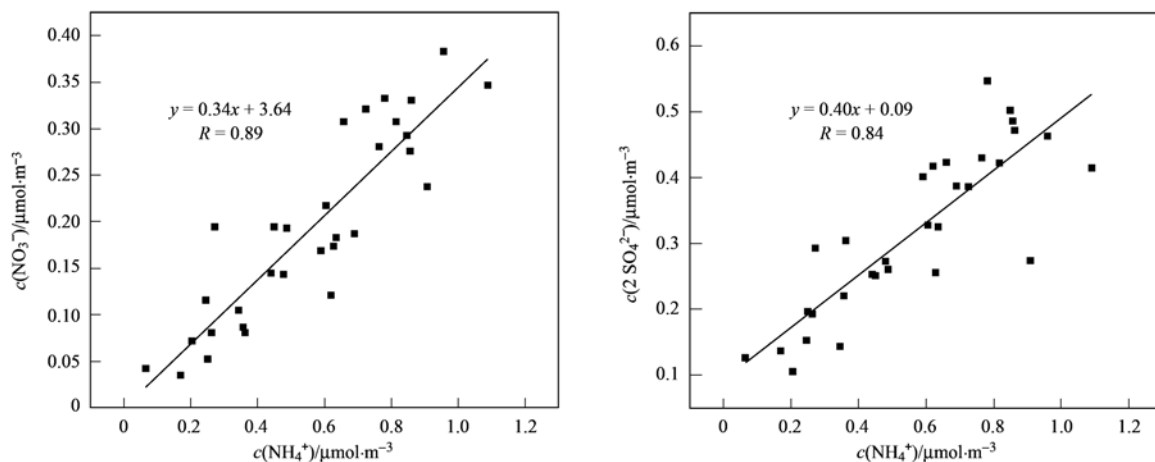


图2 PM_{2.5}中 NH_4^+ 和 NO_3^- 、 NH_4^+ 和 SO_4^{2-} 的相关性

Fig. 2 Correlation between NH_4^+ and NO_3^- , NH_4^+ and SO_4^{2-} in PM_{2.5}

大气颗粒物 PM_{2.5} 中的阴阳离子对颗粒物的酸碱性起着很大的作用. 本研究通过计算阴阳离子的平衡来分析阴阳离子对 PM_{2.5} 酸碱性的影响. 阴阳离子平衡公式见式(4)和(5):

$$\text{CE (Cation-equivalent)} = [\text{Na}^+]/23 + [\text{NH}_4^+]/18 + [\text{K}^+]/39 + [\text{Mg}^{2+}]/12 + [\text{Ca}^{2+}]/20 \quad (4)$$

$$\text{AE (Anion-equivalent)} = [\text{SO}_4^{2-}]/48 + [\text{NO}_3^-]/62 + [\text{F}^-]/19 + [\text{Cl}^-]/35.5 \quad (5)$$

阴阳离子平衡分析如图 3 所示, 相关方程斜率为 0.77 小于 1, 即 AE/CE 小于 1, 说明样品中阴离子相对亏损, 有部分阴离子未被检出, 可能是 CO_3^{2-} 和 HCO_3^- 等其他无机阴离子, 也可能与其他可溶性的有机酸有关^[17]. 成都市西南郊区大气中的阴阳离子为大气颗粒物 PM_{2.5} 提供碱性, 其颗粒物的 AE/CE 值低于上海^[12] 和西安^[13], 上海市以及西安市春季细颗粒物呈酸性.

2.3 PM_{2.5} 中有机碳(OC)和元素碳(EC)浓度水平

图 4 显示了 3 月 PM_{2.5} 中 OC、EC 以及 TC/PM_{2.5} 的日均变化情况. 从中可知, 成都西南郊区 PM_{2.5} 中 OC 和 EC 质量浓度的变化范围分别为 5.47 ~ 34.68 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 1.85 ~ 15.45 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 3 月 OC、EC 的平均值分别为 $(17.08 \pm 7.34) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(6.54 \pm 3.16) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别占 PM_{2.5} 质量浓度的 13.9% 和 5.4%, 总的碳组分 TC 占 PM_{2.5} 质量浓度的比值逐日变化范围为 12.32% ~ 29.39%, 平均而言, 占

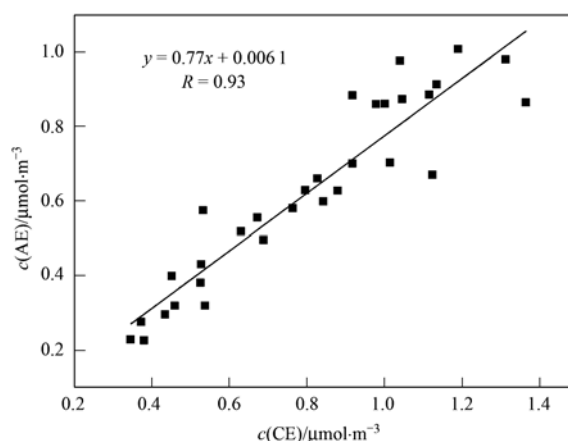


图3 阴阳离子相关性

Fig. 3 Correlation between cations and anions

19.3%, 可见碳组分是 PM_{2.5} 的重要组成成分. 从图 4 中发现, OC、EC、TC 的最高值在 3 月 8 日, 分别为 35.54、14.53、50.07 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 这一天 PM_{2.5} 质量浓度也相对较高 (177.71 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), 湿度较低 (65%), 霾污染比较严重, 初步判断主要是由于人为活动增加造成的. OC、TC 最低值在 3 月 4 日, 分别为 5.47 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、7.67 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 这一天 PM_{2.5} 的浓度最低 (43.80 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), 结合当天的气象条件发现 (见表 1), 3 月 4 日当天有明显的降水, 且降雨量较大, 明显降低了大气中 PM_{2.5} 的质量浓度.

采样期间 OC/EC 比值变化范围为 2.06 ~ 3.99, 平均值为 2.68 ± 0.43 , 其比值大于 2, 说明成都西南郊区 PM_{2.5} 中有二次气溶胶(SOC)的存在.

与其他城市相比(见表2),成都西南郊区的 OC/EC 比值大于太原,小于北京、上海和武汉,与成都城区和西安相当. 从采样期间的气象情况看,导致二次污染的光化学反应并不活跃,且采样点附近排放源相对稳定,因此表明 OC/EC 比值主要与 OC、EC 清除有关.

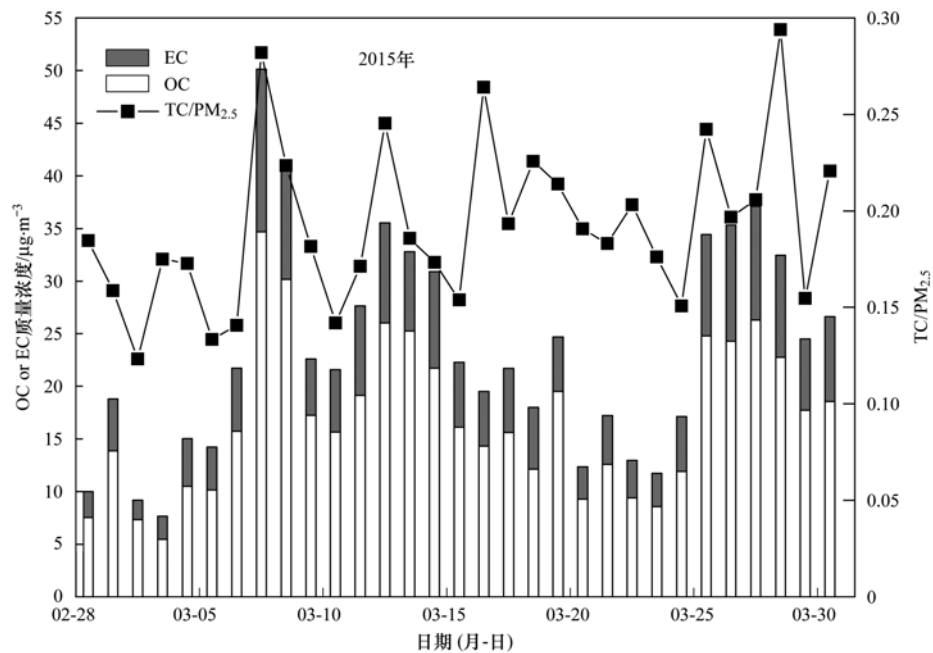


图4 OC、EC 质量浓度与 TC/PM_{2.5} 比值的日变化

Fig. 4 Daily variation of OC and EC mass concentration and the value of TC/PM_{2.5}

表2 成都市西南郊区 PM_{2.5} 中 OC/EC 比值与其他城市相比较

Table 2 Comparison of the value of OC/EC in PM _{2.5} in the southwest suburbs of Chengdu with those in other cities					
采样点	日期(年-月)	PM _{2.5}	OC	EC	OC/EC
本研究	2015-03	121.21	16.88	6.56	2.68
成都城区 ^[22]	2009-04 ~ 2010-01	165.10	22.60	9.00	2.51
北京 ^[23]	2011-12 ~ 2012-01	90.69	21.91	5.03	4.36
上海 ^[24]	2010-01 ~ 2011-01	60.01	10.48	2.63	3.98
西安 ^[25]	2011-01 ~ 2011-03	85.29	17.05	6.30	2.71
武汉 ^[26]	2011-07 ~ 2012-02	127.00	19.40	2.90	6.69
太原 ^[27]	2011-01 ~ 2011-03	248.60	29.70	20.20	1.47

SOC 质量浓度可以利用 OC/EC 比值法也称 EC 示踪法进行估算,其需要一次排放源的 OC 与 EC 存在一个相对稳定的比值作为假设前提. 它与排放源的种类有关,当大气颗粒物中 OC/EC 值超过此临界值时,表示有 SOC 的形成^[28]. Chow 等^[29]认为,当 OC/EC 超过 2.0,即表明有 SOC 存在. 为了定量描述 SOC 对 OC 的贡献率,Turpin 等^[30]提出经验公式(6):

$$\text{SOC} = \text{OC} - \text{EC} \times (\text{OC}/\text{EC})_{\min} \quad (6)$$

式中 $(\text{OC}/\text{EC})_{\min}$ 为所有样品中 OC/EC 比值的最小值. 本研究的 $(\text{OC}/\text{EC})_{\min}$ 为 2.06. 图 5 为 SOC 及一次有机碳(POC)质量浓度日变化. 从中可知,PM_{2.5}中 SOC 的月均浓度为 3.49 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,SOC 对 OC 的贡献率为 20.6%,说明只有少量的 SOC 生成,

PM_{2.5}中 OC 主要来源于一次排放.

大气颗粒物中的 EC 是由化石燃料或生物质等的不完全燃烧产生,只存在于一次颗粒物中,在大气中很稳定;而化石燃料燃烧直接排放的一次有机碳和挥发性有机物经光化学反应而产生的二次有机碳,是 OC 两大主要来源. 一次排放的 OC 和 EC 在大气中所受的大气稳定度、风速等,决定其在大气中扩散稀释能力的影响相似,因而其浓度之间具有较好的相关性;而二次有机碳的浓度主要取决于前体物的浓度和影响其氧化过程的一些因素,如光化通量、温度和湿度等,其浓度的变化将影响 OC 和 EC 的相对含量以及相关性^[31]. 因此利用 OC 和 EC 的相关性研究可以在一定程度上区分含碳颗粒的来源^[32]. Turpin 等^[30]认为,若 OC 与 EC 的相关性很

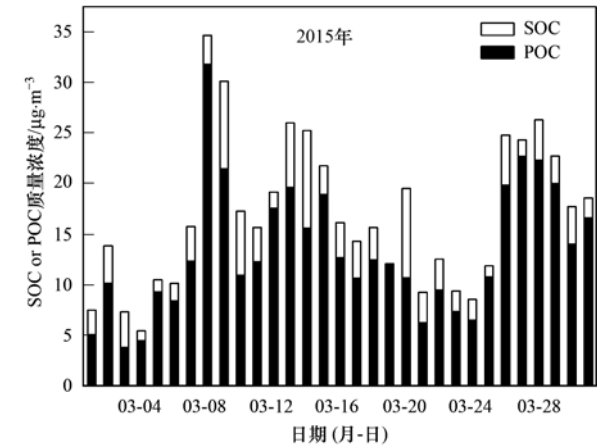


图 5 SOC 及 POC 质量浓度变化

Fig. 5 Daily variation of SOC and POC concentrations

好,则说明 OC 主要为一次有机碳,二次有机碳对 OC 贡献相对较小,或者 OC、EC 来自于相同的污染源. 图 6 显示了成都市西南郊区 OC 与 EC 的相关关系,从中可见,OC 与 EC 呈显著线性相关,相关系数为 0.95,说明 OC、EC 来源相似且相对稳定^[31],成都市西南郊区受局地源排放影响较大,一次排放占主导地位,二次有机碳对 OC 贡献相对较小,与估算所得的 SOC 一致.

2.4 PM_{2.5} 中无机元素浓度水平

图 7 为成都西南郊区 PM_{2.5} 中无机元素的日平均浓度变化. 从中可知,采样期间元素的浓度变化范围为 0.05 ~ 4.72 μg·m⁻³,平均而言,变化范围浮动较小,但就单个元素的日均变化而言,K 元素变化范围最大,在采样期间日均浓度变化范围可在 1.44 ~ 16.38 μg·m⁻³之间变化. 而 Pb 的日均变化较小,在 0.06 ~ 0.47 之间变动. 由于无机元素在颗粒物中的浓度相对较低,因此仪器只检出了以下 9 种无机元素.

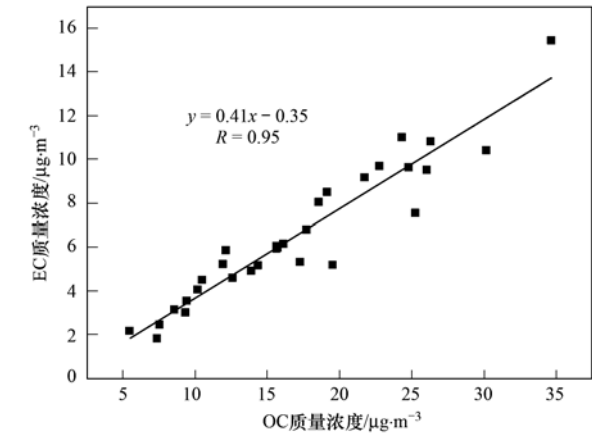
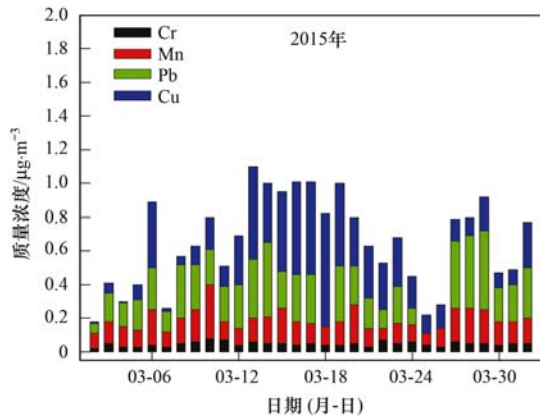


图 6 OC 与 EC 的相关性

Fig. 6 Correlation between OC and EC

该研究区域 PM_{2.5} 中各无机元素平均质量浓度和占 PM_{2.5} 的质量分数为:K(4.72 μg·m⁻³, 3.9%) > Al(3.57 μg·m⁻³, 2.9%) > Zn(2.53 μg·m⁻³, 2.1%) > Ba(2.35 μg·m⁻³, 1.9%) > Mo(0.28 μg·m⁻³) > Pb(0.25 μg·m⁻³) > Cu(0.24 μg·m⁻³) > Mn(0.14 μg·m⁻³) > Cr(0.05 μg·m⁻³); 研究区域 9 种无机元素占总 PM_{2.5} 质量浓度的 11.6%.

2.5 成都西南郊区 PM_{2.5} 的来源解析

主成分分析(PCA)是对一组变量降维的统计学方法^[33],目前已广泛应用于大气环境的来源解析^[34,35]. 本研究应用 SPSS 17.0 软件对采样期间样品的各化学成分质量浓度数据进行最大方差旋转因子分析,为揭示其来源提供依据. 结果如表 3.

由表 3 可以看出,运用主成分分析可以将 PM_{2.5} 的主要来源归于 5 个因子,各个因子所占的方差分别是 39.4%、16.7%、10.7%、7.9% 和 6.2%,总方差是 80.9%. 总方差较大说明 5 个因子已将 PM_{2.5} 的主要来源归类.

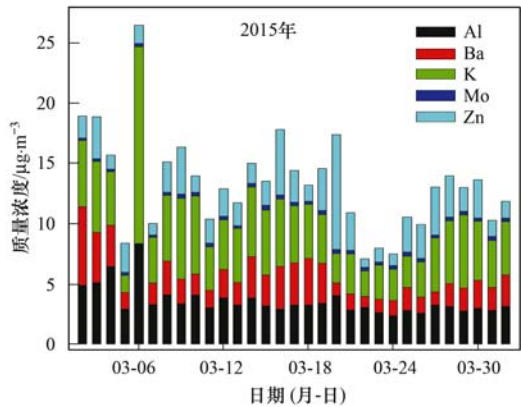


图 7 PM_{2.5} 中无机元素质量浓度的日变化特征

Fig. 7 Daily variation characteristics of inorganic elements concentration in PM_{2.5}

表 3 化学成分主成分分析¹⁾
Table 3 Principal component analysis of chemical constituents

化学成分	成分				
	1	2	3	4	5
Al	-0.262	0.769	0.394	0.082	0.134
Ba	-0.151	0.327	0.841	0.170	0.116
Cr	0.451	-0.038	-0.552	-0.179	0.549
Cu	0.344	-0.532	0.153	0.346	0.395
K	0.666	0.490	0.459	-0.099	0.122
Mn	0.761	0.389	-0.151	-0.238	0.190
Mo	0.504	-0.534	-0.086	-0.183	0.189
Pb	0.742	-0.222	0.184	-0.090	-0.116
Zn	0.396	-0.119	0.546	-0.317	-0.141
OC	0.909	0.088	-0.017	-0.303	0.065
EC	0.886	0.023	0.057	-0.387	-0.017
Na ⁺	0.494	0.131	-0.331	0.234	-0.627
NH ₄ ⁺	0.907	-0.227	0.123	0.175	0.016
K ⁺	0.856	0.239	-0.124	0.141	-0.268
Mg ²⁺	0.037	0.853	-0.232	0.018	0.012
Ca ²⁺	0.072	0.822	-0.333	0.054	0.252
F ⁻	0.497	0.185	-0.205	0.579	-0.048
Cl ⁻	0.776	0.117	0.027	-0.301	-0.253
NO ₃ ⁻	0.810	-0.016	0.109	0.461	0.097
SO ₄ ²⁻	0.744	-0.155	0.101	0.446	0.125
方差%	39.4	16.7	10.7	7.9	6.2

1) 黑字体表示在某一成分中具有更高载荷的元素

因子 1 中载荷较大的有 OC、NH₄⁺、EC、K⁺、NO₃⁻、Cl⁻、Mn、SO₄²⁻ 和 Pb,其中 EC 是由化石燃料或生物质等的不完全燃烧产生,而化石燃料燃烧直接排放的一次有机碳和挥发性有机物经光化学反应而产生的二次有机碳,是 OC 两大主要来源;NH₄⁺、NO₃⁻ 和 SO₄²⁻ 主要来源于 NH₃、NO_x 和 SO₂ 在大气中的二次转化,NH₃ 主要来自人类和动物的粪便以及工业上化肥的生产排放,而且在采样期间,研究区域有建筑施工,虽施工已接近尾声,但施工建筑扬尘所带来的氨污染并不会在短期内完全消失,因此研究区域的 NH₃ 主要来源于人类和动物的粪便、工业上化肥的生产排放以及建筑扬尘,而 NO_x 和 SO₂ 主要来源于汽车尾气的排放,因此 NH₄⁺、NO₃⁻ 和 SO₄²⁻ 主要来源于二次污染;而 K⁺ 常被认为是生物质燃烧的代表性元素,因此其来源可能为生物质的燃烧,Cl⁻ 主要来源于工业排放;Mn 是重要的矿物,所以可以推断其主要来源于地壳,同时也有部分的人为来源,如冶炼、燃煤和汽车尾气的排放,故可以初步推断该地区的 Mn 主要来源于地壳、机械加工、燃煤以及汽车尾气;有研究表明^[36],成都大气尘中的 Pb 主要来源于燃煤飞灰、含铅汽油(原油里本身含有的铅)、工业排放及土壤、建筑扬尘等,因此因子 1 可以代表燃煤、生物质的燃烧、二次硝酸盐和

硫酸盐. 因子 2 中载荷较大的有 Mg²⁺、Ca²⁺ 和 Al,它们是典型的地壳元素,则推断因子 2 可以代表土壤和扬尘源. 因子 3 中载荷较大的是 Ba 和 Zn,这两种元素是微量重金属,查阅相关文献发现^[37],Zn 的排放源主要有金属冶炼、燃煤和垃圾焚烧,Ba 的排放源主要有汽车尾气,因此因子 3 可以代表汽车尾气源. 因子 4 中载荷较大的是 F⁻,而成都比较有集中的电子产业园(如中芯国际、英特尔)以及光伏产业园,有研究指出^[38~40],在芯片制造、光伏电池单晶硅生产时会广泛使用到氟化物(如氢氟酸、氟化铵),则因子 4 可以代表电子生产源. 因子 5 中载荷较大的是 Cr 和 Cu,Cu 常被认为是金属冶炼废气排放的标志性元素,已有研究发现^[37],Cu 的排放源主要有金属冶炼、燃煤、燃油和垃圾焚烧,Cr 的排放源有金属冶炼、燃煤,而研究区域附近有一些机械加工小作坊,因此因子 5 可能代表机械加工源. 综合发现研究区域 PM_{2.5} 主要来源为燃煤、生物质的燃烧、二次硝酸盐或硫酸盐、土壤和扬尘源、汽车尾气源、电子生产源以及机械加工源.

3 结论

(1) 成都西南郊区 PM_{2.5} 质量浓度达 121.21 μg·m⁻³,采集的 31 个有效 PM_{2.5} 样品中有 24 个样

品日均浓度在 $75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上,日超标率为 77%,表明该地区 3 月 PM_{2.5} 污染严重。

(2)在与大气气象要素的关系研究中,发现大气颗粒物 PM_{2.5} 与大气能见度有着显著的负相关关系,与温度、湿度有一定的正相关关系,但相关性并不明显。

(3)水溶性阴阳离子中 NH_4^+ (16.24%)、 SO_4^{2-} (12.58%)、 NO_3^- (9.91%) 占 PM_{2.5} 的主导地位,在大气 PM_{2.5} 中主要以 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4NO_3 的形式存在。 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 的质量浓度比值是 0.77,表明成都西南郊区固定源的污染要大于移动源的污染,燃煤排放的污染相对于汽车尾气较大。

(4)成都西南郊区 3 月 PM_{2.5} 样品中有 SOC 产生,SOC 对 OC 的贡献率较小(20.9%),说明成都市西南郊区的 OC 主要来源于一次排放。OC 与 EC 的相关性分析显示 OC、EC 来源相似且相对稳定,成都市西南郊区春季受局地源排放影响较大,一次排放占主导地位,二次有机碳对 OC 贡献相对较小,与估算所得的 SOC 一致。

(5)利用主成分分析对成都西南郊区 PM_{2.5} 进行来源解析,成都西南郊区 PM_{2.5} 的主要污染源为燃煤、生物质的燃烧、二次硝酸盐或硫酸盐、土壤和扬尘源、汽车尾气源、电子生产源以及机械加工源。

参考文献:

- [1] 边海,韩素芹,张裕芬,等.天津市大气能见度与颗粒物污染的关系[J].中国环境科学,2012,32(3):406-410.
- [2] 杨新兴,冯丽华,尉鹏.大气颗粒物 PM_{2.5} 及其危害[J].前沿科学,2012,6(1):22-31.
- [3] Andreae M O, Schmid O, Yang H, et al. Optical properties and chemical composition of the atmospheric aerosol in urban Guangzhou, China[J]. Atmospheric Environment, 2008, 42(25):6335-6350.
- [4] 余锡刚,吴建,郦颖,等.灰霾天气与大气颗粒物的相关性研究综述[J].环境污染与防治,2010,32(2):86-88,94.
- [5] 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.
- [6] Rengarajan R, Sudheer A K, Sarin M M. Wintertime PM_{2.5} and PM₁₀ carbonaceous and inorganic constituents from urban site in western India[J]. Atmospheric Research, 2011, 102(4):420-431.
- [7] Chow J C, Watson J G, Lowenthal D H, et al. PM₁₀ and PM_{2.5} compositions in California's San Joaquin Valley[J]. Aerosol Science and Technology, 1993, 18(2):105-128.
- [8] 杨卫芬,银燕,魏玉香,等.霾天气下南京 PM_{2.5} 中金属元素污染特征及来源分析[J].中国环境科学,2010,30(1):12-17.
- [9] 朱李华,陶俊,张仁健,等.冬夏季广州城区碳气溶胶特征及其与 O₃ 和气象条件的关联[J].环境科学学报,2010,30(10):1942-1949.
- [10] Zhang F W, Xu L L, Chen J S, et al. Chemical compositions and extinction coefficients of PM_{2.5} in peri-urban of Xiamen, China, during June 2009-May 2010[J]. Atmospheric Research, 2012, 106:150-158.
- [11] QX/T 113-2010, 霾的观测和预报等级[S].
- [12] 邹亚娟,金承钰,舒加乐,等.上海春季 PM_{2.5} 和 PM_{1.0} 水溶性无机离子含量特征[J].实验室研究与探索,2015,34(1):44-47.
- [13] 沈振兴,李丽珍,杜娜,等.西安市春季大气细粒子的质量浓度及其水溶性组分的特征[J].生态环境,2007,16(4):1193-1198.
- [14] 张智胜,陶俊,谢绍东,等.成都城区 PM_{2.5} 季节污染特征及来源解析[J].环境科学学报,2013,33(11):2947-2952.
- [15] 张丹,翟崇治,周志恩,等.重庆市主城区不同粒径颗粒物水溶性无机组分特征[J].环境科学研究,2012,25(10):1099-1106.
- [16] 陈晓秋,陈进生,吴水平,等.海峡西岸城市群大气复合污染成因与调控机制[M].北京:科学出版社,2014.64.
- [17] 赵亚南,王跃思,温天雪,等.长白山 PM_{2.5} 中水溶性离子季节变化特征研究[J].环境科学,2014,35(1):9-14.
- [18] Arimoto R, Duce R A, Savoie D L, et al. Relationships among aerosol constituents from Asia and the North Pacific during PEM-West A[J]. Journal of Geophysical Research, 1996, 101(D1):2011-2023.
- [19] 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.
- [20] Ye B M, Ji X L, Yang H Z, et al. Concentration and chemical composition of PM_{2.5} in Shanghai for a 1-year period[J]. Atmospheric Environment, 2003, 37(4):499-510.
- [21] 古金霞,吴丽萍,霍光耀,等.天津市 PM_{2.5} 中水溶性无机离子污染特征及来源分析[J].中国环境监测,2013,29(3):30-34.
- [22] Fang G C, Chang C N, Wu Y S, et al. Ambient suspended particulate matters and related chemical species study in central Taiwan, Taichung during 1998-2001[J]. Atmospheric Environment, 2002, 36(12):1921-1928.
- [23] 程水源,刘超,韩力慧,等.北京市采暖期 PM_{2.5} 中有机碳和元素碳的污染特征与来源解析[J].北京工业大学学报,2014,40(4):586-591,597.
- [24] 李曼.上海市 PM_{2.5} 中水溶性有机组分的组成特征、季节变化及来源解析[D].上海:上海大学,2013.42-46.
- [25] 陶李.西安市大气中 PM_{2.5} 及其碳气溶胶污染特征研究[D].西安:西安建筑科技大学,2011.45-48.
- [26] 成海容,王祖武,冯家良,等.武汉市城区大气 PM_{2.5} 的碳组分与源解析[J].生态环境学报,2012,21(9):1574-1579.
- [27] 张桂香,闫雨龙,郭利利,等.太原市大气 PM_{2.5} 中碳质组成及变化特征[J].环境科学,2015,36(3):780-786.
- [28] 刘浩,张家泉,张勇,等.黄石市夏季昼间大气 PM₁₀ 与

- PM_{2.5} 中有机碳、元素碳污染特征[J]. 环境科学学报, 2014, **34**(1): 36-42.
- [29] Chow J C, Watson J G, Crow D, *et al.* Comparison of IMPROVE and NIOSH carbon measurements [J]. Aerosol Science and Technology, 2001, **34**(1): 23-34.
- [30] Turpin B J, Huntzicker J J. Identification of secondary organic aerosol episodes and quantitation of primary and secondary organic aerosol concentrations during SCAQS [J]. Atmospheric Environment, 1995, **29**(23): 3527-3544.
- [31] 王哲. 中国典型地区碳质气溶胶及二次有机气溶胶特征研究 [D]. 济南: 山东大学, 2011. 84-87.
- [32] 王杨君, 董亚萍, 冯加良, 等. 上海市 PM_{2.5} 中含碳物质的特征和影响因素分析 [J]. 环境科学, 2010, **31**(8): 1755-1761.
- [33] 安俊琳, 王跃思, 朱彬. 主成分和回归分析方法在大气臭氧预报的应用——以北京夏季为例 [J]. 环境科学学报, 2010, **30**(6): 1286-1294.
- [34] Morselli L, Olivieri P, Brusori B, *et al.* Soluble and insoluble fractions of heavy metals in wet and dry atmospheric depositions in Bologna, Italy [J]. Environmental Pollution, 2003, **124**(3): 457-469.
- [35] 李德禄, 张元勋, 李爱国, 等. 冬季上海吴淞地区大气颗粒物 PM₁₀ 的元素的主成分分析 [J]. 核技术, 2005, **28**(2): 109-112.
- [36] 尚英男, 杨波, 尹观, 等. 成都市近地表大气尘铅分布特征及源解析 [J]. 物探与化探, 2006, **30**(2): 104-107.
- [37] 汪林. 富集因子法判定大气中颗粒物来源 [A]. 见: 2008 中国环境科学学会学术年会优秀论文集(中卷) [C]. 北京: 中国环境科学出版社, 2008. 941-943.
- [38] 聂菲, 张卿川, 王辉民. 集成电路芯片生产的环境保护 [J]. 环境保护科学, 2006, **32**(3): 22-24, 27.
- [39] 周建民, 张国岭, 端木合顺, 等. 光伏电池单晶硅生产废水处理工程实例 [J]. 水处理技术, 2009, **35**(4): 116-119.
- [40] 孙白妮. 浅谈集成电路项目环评中应注意的环境风险——以电子集成电路芯片生产为例 [J]. 环境科学与管理, 2006, **31**(5): 189-192.

CONTENTS

Exploring the Severe Haze in Beijing During December, 2015; Pollution Process and Emissions Variation	XUE Yi-feng, ZHOU Zhen, NIE Teng, <i>et al.</i> (1593)
Pollution Characteristics and Source of HULIS in the Fine Particle During the Beijing APEC	ZHOU Xue-ming, QI Xue-jiao, XIANG Ping, <i>et al.</i> (1602)
Seasonal Variation Characteristics and Potential Source Contribution of Sulfate, Nitrate and Ammonium in Beijing by Using Single Particle Aerosol Mass Spectrometry	LIU Lang, ZHANG Wen-jie, DU Shi-yong, <i>et al.</i> (1609)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of PM _{2.5} in Lanzhou City	WANG Xin, NIE Yan, CHEN Hong, <i>et al.</i> (1619)
Pollution Level and Source Apportionment of Atmospheric Particles PM _{2.5} in Southwest Suburb of Chengdu in Spring	LIN Yu, YE Zhi-xiang, YANG Huai-jin, <i>et al.</i> (1629)
Variation Characteristics of Total Gaseous Mercury at Simian Mountain Background Station in Mid-subtropical Region	LIU Wei-ming, MA Ming, WANG Ding-yong, <i>et al.</i> (1639)
Establishment of Method for Health Risk Assessment of Pollutants from Fixed Sources	CHEN Qiang, WU Huan-bo (1646)
Testing of Concentration and Characteristics of Particulate Matters Emitted from Stationary Combustion Sources in Beijing	HU Yue-qi, WU Xiao-dong, WANG Chen, <i>et al.</i> (1653)
Pollution Evaluation and Risk Assessment of Heavy Metals from Atmospheric Deposition in the Parks of Nanjing	WANG Cheng, QIAN Xin, LI Hui-ming, <i>et al.</i> (1662)
CoCuMnO ₂ Photocatalyzed Oxidation of Multi-component VOCs and Kinetic Analysis	MENG Hai-long, BO Long-li, LIU Jia-dong, <i>et al.</i> (1670)
Distribution of Nitrogen and Phosphorus in the Tidal Reach and Estuary of the Daliao River and Analysis of Potential Eutrophication	ZHANG Lei, CAO Wei, MA Ying-qun, <i>et al.</i> (1677)
Spatial Distribution of Stable Isotope from the Lakes in Typical Temperate Glacier Region	SHI Xiao-yi, PU Tao, HE Yuan-qing, <i>et al.</i> (1685)
$\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ and $\delta^{18}\text{O-NO}_3^-$ Tracing of Nitrate Sources in Beijing Urban Rivers	ZHAO Qing-liang, MA Hui-ya, REN Yu-fen, <i>et al.</i> (1692)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Nitrate Pollution in Shallow Groundwater of Liujiang Basin	WANG He, GU Hong-biao, CHI Bao-ming, <i>et al.</i> (1699)
Nitrogen Losses Under the Action of Different Land Use Types of Small Catchment in Three Gorges Region	CHEN Cheng-long, GAO Ming, NI Jiu-pai, <i>et al.</i> (1707)
Interception Effect of Ecological Ditch on Nitrogen Transport in Agricultural Runoff in Subtropical China	WANG Di, LI Hong-fang, LIU Feng, <i>et al.</i> (1717)
Biodegradation Coefficients of Typical Pollutants in the Plain Rivers Network	FENG Shuai, LI Xu-yong, DENG Jian-cai (1724)
Influence of Submerged Plants on Microbial Community Structure in Sediment of Hongze Lake	ZHANG Ding-yu, ZHANG Ting-xi, DONG Dan-ping, <i>et al.</i> (1734)
Community Structure Characteristics of Diatom in Reservoirs Located in the South of Jiangsu Province, China and Its Control Factors	REN Jie, ZHOU Tao, ZHU Guang-wei, <i>et al.</i> (1742)
Contamination and Ecological Risk Assessment of Mercury in Hengshuihu Wetland, Hebei Province	WANG Nai-shan, ZHANG Man-yin, CUI Li-juan, <i>et al.</i> (1754)
Spatial Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Soils and Sediments in Shunde Waterway, Southern China	CAI Yi-min, CHEN Wei-ping, PENG Chi, <i>et al.</i> (1763)
Pollution Characteristics and Ecological Risk of PBDEs in Water and Sediment from an Electronic Waste Dismantling Area in Taizhou	CHEN Xiang-ping, PENG Bao-qi, LÜ Su-ping, <i>et al.</i> (1771)
Major Ionic Features and Their Controlling Factors in the Upper-Middle Reaches of Wujiang River	HUANG Qi-bo, QIN Xiao-qun, LIU Peng-yu, <i>et al.</i> (1779)
Export of Total Organic Carbon (TOC) from Karst Watershed and Its Influencing Factors; An Example from Xueyudong Underground River System, Chongqing	WANG Qiao-lian, JIANG Yong-jun, CHEN Yu (1788)
Seasonal Variations and Controlling Factors of the Element Contents in Drip Waters Collected from the Baojinggong Cave in Guangdong Province	HUANG Jia-yi, CHEN Lin, CHEN Qiong, <i>et al.</i> (1798)
Tracing the Fecal Contamination Sources Based on <i>Bacteroides</i> 16S rRNA PCR-DGGE in Karst Groundwater; Taking Laolongdong Underground River System, Nanshan, Chongqing as an Example	ZHANG Hong, JIANG Yong-jun, ZHANG Yuan-zhu, <i>et al.</i> (1805)
Sources and Variation Characteristics of Dissolved Lipid Biomarkers in a Typical Karst Underground River	LIANG Zuo-bing, SUN Yu-chuan, LI Jian-hong, <i>et al.</i> (1814)
Formation of Halogenated By-products in Co ²⁺ Activated Peroxymonosulfate Oxidation Process	LIU Kuo, JIN Hao, DONG Wei, <i>et al.</i> (1823)
Aspartic Acid Generated in the Process of Chlorination Disinfection By-product Dichloroacetonitrile	DING Chun-sheng, LI Nai-jun, ZHANG Tao, <i>et al.</i> (1831)
Influencing Factors of Assimilable Organic Carbon (AOC) Formation in Drinking Water During Ozonation Process	DONG Bing-zhi, ZHANG Jia-li, HE Chang (1837)
Wastewater Quantity and Quality Fluctuation Characteristics of Typical Area of Hybrid Sewage System	CHENG Xun, ZHANG Ming-kai, LIU Yan-chen, <i>et al.</i> (1845)
Preparation of HDTMA-modified Zeolite and Its Performance in Nitro-phenol Adsorption from Wastewaters	GUO Jun-yuan, WANG Bin (1852)
Selection of Suitable Microalgal Species for Sorption of Uranium in Radioactive Wastewater Treatment	LI Xin, HU Hong-ying, YU Jun-yi, <i>et al.</i> (1858)
Magnetic Fe ₃ O ₄ Microparticles Conditioning-Pressure Electro-osmotic Dewatering (MPEOD) of Sewage Sludge	QIAN Xu, WANG Yi-li, ZHAO Li (1864)
Stability of Short-cut Nitrification Nitrogen Removal in Digested Piggery Wastewater with an Intermittently Aerated Sequencing Batch Reactor	SONG Xiao-yan, LIU Rui, SHUI Yong, <i>et al.</i> (1873)
Effect of Irrigation Patterns on Soil CO ₂ and N ₂ O Emissions from Winter Wheat Field in North China Plain	GUO Shu-fang, QI Yu-chun, YIN Fei-hu, <i>et al.</i> (1880)
Characteristics of Dissolved CH ₄ and N ₂ O Concentrations of Weihe River in Xinxiang Section in Spring	HOU Cui-cui, ZHANG Fang, LI Ying-chen, <i>et al.</i> (1891)
Effect of Stimulated N Deposition on N ₂ O Emission from a <i>Stipa krylovii</i> Steppe in Inner Mongolia, China	YANG Han-yue, ZHANG Ting, HUANG Yong-mei, <i>et al.</i> (1900)
Response of Soil Respiration and Organic Carbon to Returning of Different Agricultural Straws and Its Mechanism	CAO Zhan-bo, WANG Lei, LI Fan, <i>et al.</i> (1908)
Spatial Variability and Distribution Pattern of Soil Organic Matter in a Mollisol Watershed of China	GAO Feng-jie, MA Quan-lai, HAN Wen-wen, <i>et al.</i> (1915)
Effects of Tillage on Distribution of Heavy Metals and Organic Matter Within Purple Paddy Soil Aggregates	SHI Qiong-bin, ZHAO Xiu-lan, CHANG Tong-ju, <i>et al.</i> (1923)
Distribution Characteristics and Potential Ecological Hazards Assessment of Soil Heavy Metals in Typical Soil Profiles in Southeast Suburb of Beijing	ZHAO Qian, MA Lin, LIU Yi-fei, <i>et al.</i> (1931)
Contamination Assessment and Sources Analysis of Soil Heavy Metals in Opencast Mine of East Junggar Basin in Xinjiang	LIU Wei, YANG Jian-jun, WANG Jun, <i>et al.</i> (1938)
Effect of Nano-TiO ₂ on Release and Speciation Changes of Heavy Metals in Soil	ZHANG Jin-yang, WANG Ding-yong, LIANG Li, <i>et al.</i> (1946)
Reduction Kinetics of Cr(VI) in Chromium Contaminated Soil by Nanoscale Zerovalent Iron-copper Bimetallic	MA Shao-yun, ZHU Fang, SHANG Zhi-feng (1953)
Inhibition of Low Molecular Organic Acids on the Activity of <i>Acidithiobacillus</i> Species and Its Effect on the Removal of Heavy Metals from Contaminated Soil	SONG Yong-wei, WANG He-ru, CAO Yan-xiao, <i>et al.</i> (1960)
Contribution of Particle Size and Surface Coating of Silver Nanoparticles to Its Toxicity in Marine Diatom <i>Skeletonema costatum</i>	HUANG Jun, YI Jun, QIANG Li-yuan, <i>et al.</i> (1968)
Rhizospheric Mechanisms of <i>Hemerocallis middendorffii</i> Trautv. et Mey. Remediating Petroleum-contaminated Soil and Metabonomic Analyses of the Root Systems	WANG Ya-nan, CHENG Li-juan, ZHOU Qi-xing (1978)
Effects of Thermophilic Composting on Antibiotic Resistance Genes (ARGs) of Swine Manure Source	ZHENG Ning-guo, HUANG Nan, WANG Wei-wei, <i>et al.</i> (1986)
Interaction Between Sulfonamide Antibiotics Fates and Chicken Manure Composting	LIN Hui, WANG Jian-mei, SUN Wan-chun, <i>et al.</i> (1993)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2016年5月15日 第37卷 第5期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 5 May 15, 2016

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧 阳 自 远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行人