

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第12期

Vol.37 No.12

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(卷终)

基于数值计算的细颗粒物采样管路传输损失评估 罗李娜,程真,朱雯斐,张强,楼晟荣,乔利平,晏乃强(4457)

南京北郊重金属气溶胶粒子来源分析 秦鑫,张泽锋,李艳伟,沈艳,赵姝慧(4467)

南京青奥会期间不同天气条件下大气气溶胶中水溶性离子的分布特征 师远哲,安俊琳,王红磊,邹嘉南,王俊秀(4475)

苏州市 PM_{2.5} 中水溶性离子的季节变化及来源分析 王念飞,陈阳,郝庆菊,王欢博,杨复沫,赵晴,薄宇,贺克斌,姚玉刚(4482)

成都西南郊区春季 PM_{2.5} 中元素特征及重金属潜在生态风险评价 杨怀金,杨德容,叶芝祥,张恒德,马学款,汤志亚,毛冬艳(4490)

泉州市大气降尘中稀土元素地球化学特征及来源解析 张棕巍,于瑞莲,胡恭任,胡起超,王晓明(4504)

青奥会期间基于δ¹³C观测的大气 CO₂ 来源解析 徐家平,李旭辉,肖薇,次仁旺姆,温学发,刘寿东,杜雪婷,曹畅(4514)

民航飞机起飞过程气态污染物排放特征分析 韩博,黄佳敏,魏志强(4524)

畜禽养殖场空气中可培养抗生素耐药菌污染特点研究 张兰河,贺雨伟,陈默,高敏,仇天雷,王旭明(4531)

有序介孔材料过滤脱除纳米颗粒物 邢奕,王骢,路培,李子宜,刘应书,于晗(4538)

基于 DOC + CDPF 技术的公交车燃用生物柴油气态物道路排放特性 楼狄明,张允华,谭丕强,胡志远(4545)

亚热带浅水池塘水-气界面甲烷通量特征 龙丽,肖尚斌,张成,张文丽,谢恒,李迎春,雷丹,穆晓辉,张军伟(4552)

浙江汤浦水库浮游植物季节演替及其影响因子分析 马沛明,施练东,张俊芳,胡菊香,赵先富(4560)

太湖典型沉水植物生理指标对水质的响应 高敏,胡维平,邓建才,胡春华(4570)

利用 UV-vis 及 EEMs 对比冬季完全混合下两个不同特征水库溶解性有机物的光学特性 黄廷林,方开凯,张春华,周石磊,曾明正,龙圣海,李扬,夏超,从海兵(4577)

三峡前置库汉丰湖试运行年水体水质现状及控制效果评估 杨兵,何丙辉,王德宝(4586)

太湖贡湖湾水域抗生素污染特征分析与生态风险评价 武旭跃,邹华,朱荣,王靖国(4596)

滇池不同湖区沉积物正构烷烃的分布特征及其环境意义 余丽燕,韩秀秀,黄晓虎,吴亚林,杨浩,黄涛,余艳红,黄昌春(4605)

洱海入湖河口湿地干湿季沉积物氮、磷、有机质垂向分布特征及污染风险差异性 王书锦,刘云根,王妍,侯磊,张超(4615)

蠡湖表层沉积物氮矿化过程及其赋存形态变化 赵丽,王书航,姜霞,黄晓峰,陈俊伊(4626)

三峡库区表层沉积物重金属含量时空变化特征及潜在生态风险变化趋势研究 卓海华,孙志伟,谭凌智,吴云丽,兰静(4633)

模拟巢湖流域氯菊酯的迁移转化和生态风险 刘亚莉,王继忠,彭书传,陈天虎(4644)

有机质胶体对卡马西平在多孔介质中迁移影响模拟实验 张思,何江涛,朱晓婧(4651)

无机型城市景观水体表观污染的悬浮颗粒物粒度分布特征:以中国运河苏州段为例 李倩倩,潘杨,贡丹燕,黄勇,夏侯刚(4662)

清水江流域岩石风化特征及其碳汇效应 吕婕梅,安艳玲,吴起鑫,吴永贵(4671)

南方典型农田区浅层地下水污染特征 郭卉,虞敏达,何小松,罗岳平(4680)

水化学和环境同位素在示踪枣庄市南部地下水硫酸盐污染源中的应用 马燕华,苏春利,刘伟江,朱亚鹏,李俊霞(4690)

粗放型绿色屋顶对多环芳烃的控制效果 沈庆然,侯娟,李田(4700)

超滤的预处理工艺对比研究:化学混凝与电絮凝 赵凯,杨春风,孙境求,李静,胡承志(4706)

QCM-D 与 AFM 联用解析 EfOM 在 SiO₂ 改性 PVDF 超滤膜表面的吸附机制 姜家良,王磊,黄丹曦,黄松,朱振亚,徐亚伟,李青青(4712)

群体感应淬灭菌的分离及其膜污染控制性能 赵畅,王文昭,徐期勇(4720)

水力负荷对生物沉淀池污染物净化性能的影响特性 王文东,马翠,刘荟,范银萍,刘国旗,张珂(4727)

外加微量 N₂H₄ 下 SBR 中硝化微生物特性 肖芄颖,张代钧,卢培利(4734)

部分半硝化 AGS-SBR 工艺的启动及其种群结构分析 鲁航,信欣,管蕾,邹长武,余静(4741)

典型油田多环芳烃污染对土壤反硝化微生物群落结构的影响 姚炎红,王明霞,左小虎,李振轮,罗锋,周志峰(4750)

生物强化膜生物反应器(MBR)处理邻苯二甲酸二乙酯(DEP)效果及微生物群落结构分析 张可,关允,罗鸿兵,陈伟,陈佳,陈强(4760)

开闭路条件下沉积物微生物燃料电池阳极细菌群落差异解析 吴义诚,邓全鑫,王泽杰,郑越,李岱霖,赵峰(4768)

全氟辛酸(PFOA)厌氧生物可降解性 李飞,陈轶丹,周真明,廖晓斌,马红芳,苑宝玲(4773)

水肥用量对玉米季土壤 CO₂ 排放的综合影响 杨硕欢,张保成,王丽,胡田田(4780)

福建西部山地水土流失区土壤呼吸的空间异质性 姚雄,余坤勇,曾琪,杨玉洁,张今朝,刘健(4789)

基于不确定性分析的土壤-水稻系统镉污染综合风险评估 杨阳,陈卫平,李艳玲,王美娥,彭驰(4800)

北京市不同地区土壤中的球囊霉素荧光特征及其与土壤理化性质的关系 柴立伟,刘梦娇,蒋大林,樊灏,曹晓峰,黄艺(4806)

准东煤炭产业区周边土壤重金属污染与健康风险的空间分布特征 刘芳,塔西甫拉提·特依拜,依力亚斯江·努尔麦麦提,王楠,杨春,夏楠,高宇潇(4815)

河北平原潮土中微生物对氮降解特征 张灿灿,庞会从,高太忠,张静,李晓玉,付胜霞(4830)

砷-非对蜈蚣草根不同碳基团的影响 廖晓勇,龚雪刚,阎秀兰,马旭,吴泽赢(4841)

碱性固体对污泥的调质堆肥影响及产品对土壤的改良潜力 蔡函臻,宁西翠,王权,张增强,任秀娜,李荣华,王美净, Mukesh Kumar Awasthi(4848)

不同热解及来源生物炭对西北黄土吸附敌草隆的影响 孙航,蒋煜峰,石磊平,慕仲锋,展惠英(4857)

南丹矿业活动影响区人群头发中重金属含量特征 田美玲,钟雪梅,夏德尚,伏凤艳,陆素芬,李黎,宋波(4867)

Mg-Al-Me (Me = La, Ce, Zr) 复合氧化物制备及其除氟性能 汪爱河,周康根,刘行,陈泉州,刘芳(4874)

铁锰复合氧化物/壳聚糖珠:一种环境友好型除磷吸附剂 付军,范芳,李海宁,张高生(4882)

不同粒径垃圾焚烧飞灰重金属毒性浸出及生物可给性 王春峰,陈冠飞,朱艳臣,姚丹,皇晓晨,王连军(4891)

《环境科学》第37卷(2016年)总目录 (4899)

《环境科学》征稿简则(4466) 《环境科学》征订启事(4699) 信息(4489,4881)

南京北郊重金属气溶胶粒子来源分析

秦鑫¹, 张泽锋^{2*}, 李艳伟², 沈艳², 赵姝慧¹

(1. 辽宁省人工影响天气办公室, 沈阳 110016; 2. 南京信息工程大学, 中国气象局气溶胶-云-降水重点开放实验室, 南京 210044)

摘要: 通过 2013 年 1~12 月使用在线单颗粒气溶胶质谱仪 (SPAMS) 在南京北郊对含有 Cu、As、Pb、Cd、V、Co、Cr、Zn、Ni、Ba 和 Hg 这 11 种重金属气溶胶粒子进行连续观测, 并结合自适应共振理论神经网络算法 (ART-2a) 对其化学特征进行了分析, 结果表明, 南京北郊重金属气溶胶粒子来源按照化学组成特征可分为 5 类: 工业排放 (35.7%)、生物质燃烧 (34.45%)、交通排放 (13.6%)、化石燃料燃烧 (11.03%) 和矿尘 (4.07%), 其中, 含 Pb、Cd 和 Cr 气溶胶粒子主要来源于工业排放, 含 Cu、Co 和 Hg 气溶胶粒子主要来源于生物质燃烧, 含 V、Zn 和 Ba 气溶胶粒子主要来源于交通排放, 含 As 和 Ni 气溶胶粒子主要来源于化石燃料燃烧。

关键词: 重金属气溶胶; 源解析; SPAMS; 南京

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)12-4467-08 DOI: 10.13227/j.hj.kx.201605237

Sources Analysis of Heavy Metal Aerosol Particles in North Suburb of Nanjing

QIN Xin¹, ZHANG Ze-feng^{2*}, LI Yan-wei², SHEN Yan², ZHAO Shu-hui¹

(1. Weather Modification Office in Liaoning Province, Shenyang 110016, China; 2. Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China)

Abstract: Heavy metal aerosol particles were first measured with Single Particle Aerosol Mass Spectrometry (SPAMS) in north suburb of Nanjing from January to December, 2013. Using the ART-2a neural network algorithm, we studied the chemical characteristics of aerosol particles and found that the main sources of heavy metal aerosols in Nanjing were industrial emissions, biomass burning, traffic emissions, fuel combustion and dust, accounting for 35.7%, 34.45%, 13.6%, 11.03% and 4.07% respectively. Pb, Cd and Cr-containing aerosols mainly came from industrial emissions. Cu, Co and Hg-containing aerosols mainly came from biomass burning. V, Zn and Ba-containing aerosols mainly came from traffic emissions. As and Ni-containing aerosols mainly came from fuel combustion.

Key words: heavy metal aerosols; source apportionment; SPAMS; Nanjing

大气环境中常见的重金属元素有 Ba、Cd、Co、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb、V、Zn 等, 它们的来源并不完全相同^[1,2]。由于性质类似, 大气中主要来源于煤炭燃烧的金属 As 通常作为知名的有毒物质也常被拿来与重金属元素一起研究和讨论^[3]。重金属在大气气溶胶粒子中的重要性首先在于其大部分富集在细颗粒物上并通过呼吸作用进入人体, 从而对人体健康产生严重威胁, 其次由于重金属具有不可降解性, 因此一旦进入环境就会在自然界陆、水、气、和生物体系中一直循环下去, 很难移除。

国内外对重金属气溶胶粒子进行大量的研究, 总结归纳出重金属气溶胶粒子中主要来源为: 工业排放、化石燃料燃烧、汽车尾气、城市扬尘和垃圾焚烧等^[4~7]。目前大部分研究主要通过膜采样的方法研究重金属来源分析, 这种传统的离线分析方法的优势是定量较为准确, 但其时间分辨率较低并且识别不出重金属在气溶胶中的存在形态, 倾向于依赖模型, 因此具有很大的不确定性。由于 SPAMS 能够测量单个气溶胶粒子的粒径和化学组分信息, 通

过大量气溶胶粒子的统计分析能准确解析出气溶胶粒子的来源并可识别出各类重金属在气溶胶中的存在形态, 且时间分辨率较高, 有利于源解析分析研究, 是对传统分析方法的一种补充。SPAMS 已广泛应用于城市各类气溶胶来源研究中^[8,9], 如含碳气溶胶^[10]、有机气溶胶^[11,12]、生物质燃烧气溶胶等^[13,14]。目前使用该仪器进行重金属气溶胶来源的研究并不多, Li 等^[15]在 2011 年对北京气溶胶成分与来源进行分析, 发现 Fe-rich 源于附近钢铁厂、Pb-rich 源于钢铁熔炼厂; Dall 等^[16]在研究希腊气溶胶化学特征时将 Cr-Pb 归因于当地焊接、建筑活动; 张雅萍等^[17]对 2007 年上海重金属气溶胶来源进行解析, 发现同时含 Pb、Cu 的颗粒物归因于垃圾焚烧厂排放, 同时含 Pb、Zn 或 Mn 的颗粒物归因于金属

收稿日期: 2016-05-31; 修订日期: 2016-07-21

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41275152, 41005071); 江苏高校优势学科建设工程项目 (PAPD)

作者简介: 秦鑫 (1984~), 男, 硕士, 主要研究方向为大气气溶胶和人工影响天气, E-mail: qinxin024@163.com

* 通讯联系人, E-mail: zhangzf01@vip.163.com

冶炼和煤炭燃烧. 秦鑫等^[18]认为南京北郊春季含 Pb 气溶胶主要来源于钢铁冶炼和城市扬尘.

南京北郊是集化工、钢铁、能源等工业的重点地区之一,工业废气和烟尘以及大量汽车尾气的排放导致了南京北郊严重的重金属污染. 然而在南京几乎还没有使用 SPAMS 对多种重金属气溶胶进行源解析的研究. 因此,本研究采用 SPAMS 对 2013 年南京北郊重金属气溶胶进行持续一年在线观测,以得到此地重金属污染特征及来源解析,以期为今后南京北郊重金属气溶胶污染控制提供有效的决策依据^[19].

1 材料与方 法

1.1 观测时间和地点

本研究于 2013 年 1 月 2 日~12 月 29 日(其中 01-14~1-31、02-02~02-16、03-20~04-12、05-09~05-25、06-04~06-13、06-16、09-14~09-15、11-22~11-25、12-05 和 12-20~12-23 因仪器维护或故障而缺测,共观测 266d)在南京信息工程大学气象楼 12 楼(距地面约 30 m)设立采样点进行连续观测,该点位于南京主城区的北侧,其东侧是南钢,东北侧是扬子石化和南化,南侧受主城区影响,西侧毗邻国道,周边为居民区.

1.2 仪器和分析方法

SPAMS 是测量大气气溶胶粒子粒径和化学成分的仪器^[20],它由 3 个部分组成:气溶胶粒子采样部分、粒径测定部分和质谱分析部分. 气溶胶粒子通过聚焦喷嘴进入粒径测定部分,经过一个固定间距的飞行时间被两束连续激光(波长 532 nm)测量,通过聚苯乙烯胶乳(PSL)小球的粒径校正实验得到粒径与时间的标准曲线,从而计算出未知气溶胶粒子的空气动力学粒径. 最后气溶胶粒子到达质谱分析部分,紫外激光(波长 266 nm)解析并离子化气溶胶粒子中的化合物,形成的离子被双极时间飞行质谱进行分析,从而形成质谱信息. 由此可见,SPAMS 仪器可以得到每个被打击到的单个气溶胶粒子的粒径及其所含有离子的质荷比、峰高和峰面积等,其中峰面积是质谱峰与基线围成的面积,与物质的浓度的有关.

本实验采用 TSIMS-Analyze 软件和 YAADA 软件(version 2.0, www. Yaada. org)对监测数据进行采集、处理和分析,通过 SPAMS 仪器获得的单颗粒质谱信息由 TSIMS-Analyze 采集存储,基于 Matlab 程序语言的 YAADA 软件包用于对采集的数据进行质

谱学分析. 运用 ART-2a 算法,将气溶胶粒子进行自动分类,然后再通过质谱特征及示踪离子进行手动合并.

2 结果与讨论

2.1 重金属气溶胶粒子的定义

2013 年 1~12 月,在南京信息工程大学气象楼 12 楼设立采样点运用 SPAMS 仪器对大气气溶胶进行连续采样观测,采样期共采集到质谱粒子 15 106 192 个,打击率约为 29.4%,提取到其中含重金属气溶胶 1 476 434 个,占总气溶胶的 9.8%. 本研究分别对含有 Cu、As、Pb、Cd、V、Co、Cr、Zn、Ni、Ba、Hg 重金属气溶胶粒子进行特征研究以及来源分析. 为了更准确地筛选出含有特定重金属气溶胶,首先对以上 11 种重金属行定义,以 Cu 为例,气溶胶粒子中含有 Cu 并同时含有其同位素峰(即 $m/z = 63$ 和 $m/z = 65$),且峰信号大于总信号的 0.05% (质谱噪声的 2 倍),这样的粒子认为是含 Cu 气溶胶粒子,根据定义,观测期间共有 907 842 个含 Cu 气溶胶粒子,占总含重金属气溶胶粒子的 61.49%,含 Cu 气溶胶粒子个数与 Cu 的峰面积相关系数为 0.98,其他重金属气溶胶粒子的定义及数量的信息见表 1. 从中可以看出 11 种重金属气溶胶粒子中含 Cu 重金属气溶胶粒子最多,其次是含 As 重金属气溶胶粒子,含 Hg 重金属气溶胶粒子数量最少,这是由于 Hg 一般是以蒸气形式存在,因此在气溶胶粒子上富集较低. 另外各种重金属气溶胶粒子个数与其峰面积有较好的相关关系,下文将用各重金属的峰面积对重金属气溶胶粒子进行来源解析.

2.2 重金属气溶胶粒子分类

对以上定义过的 11 种重金属气溶胶进行 Art-2a 分类,其参数警戒因子设定为 0.9,学习率设定为 0.05,迭代次数设定 20,共得到 278 类,将其中前 159 类(占了总粒子的 96.07%)根据质谱特征手动合并成 11 类. 实际这里需要强调的是 Other Metal 1 类包括了 Cr、Mn、和 Bi 金属质谱特征,而 Other Metal 2 包括 Cu、Zn 和 Ba 金属质谱特征,之所以把这 6 种金属特征划分为 Other Metal 1 和 Other Metal 2 是由他们对应着不同来源考虑的,这部分详细内容将在下文中来源分析详细论述. 表 2 显示了各类重金属气溶胶粒子分类命名以及所占比例. 因为最后一类质谱图极为复杂,没有鲜明质谱特征,以及所占比例很少,因此本研究定义为 Undefined 类,下文

表 1 各重金属气溶胶粒子的判别条件及参数

Table 1 Discriminant conditions and parameters for all kinds of heavy metal aerosol particles

重金属	质核比(m/z)	逻辑关系	个数	所占重金属比例/%	个数与峰面积的相关系数
Cu	[63 65]	And	907 842	61.49	0.98
As	[75]		366 326	24.81	0.97
Pb	[206 207 208]	Or	362 489	24.55	0.82
Cd	[110 111 112 113 114]	Or	252 077	17.07	0.93
V	[51 67]	And	215 548	14.6	0.87
Co	[59]		90 185	6.11	0.89
Cr	[52 68]	And	66 801	4.52	0.93
Zn	[64 66]	And	66 358	4.49	0.87
Ni	[58 60]	And	61 400	4.16	0.99
Ba	[138]		24 114	1.63	0.89
Hg	[198 199 200 201 202 204]	Or	16 626	1.13	0.94

表 2 SPAMS 分类及个数百分比

Table 2 SPAMS classification number and percentage

序号	分类	个数	百分比/%
1	K-NO ₃	286 133	19.38
2	K-Biomass	210 414	14.25
3	K-aromatic	298 174	20.2
4	ECOC	162 875	11.03
5	EC	53 788	3.64
6	DUST	60 150	4.07
7	Pb-rich	123 876	8.39
8	V-rich	100 654	6.82
9	Fe-rich	52 687	3.57
10	Other Metal 1	64 434	4.36
11	Other Metal 2	46 231	3.13
	Undefined	17 018	1.15
	总数	1 476 434	100

对该类不加以论述. 从表 2 中看出 K-aromatic 比例最高, 达到 20.2%, 其次是 K-NO₃, 所占比例为 19.38%, 再次是 K-Biomass, 所占比例为 14.25%. 这 11 类十分重要, 接下来的来源解析都是依托着 11 类进行分析.

2.2.1 平均谱图描述

图 1(a) 和 1(b) 质谱图共同点是都含有明显的 ³⁹K⁺、³⁵Cl⁻、⁴⁶NO₂⁻、⁶²NO₃⁻、⁹⁶SO₄²⁻ 和 ⁹⁷HSO₄⁻ 峰. 不同之处在于图 1(b) 正谱含有一系列有机峰 ²⁷C₂H₃⁺、³⁶C₃⁺、³⁷C₃H⁺、⁴³C₂H₃O⁺ 和 ⁵¹C₄H₃, 负谱有显著的 ²⁶CN⁻、⁴²CNO⁻、⁴⁵CHO⁻、⁵⁹C₂H₃O₂⁻、⁷³C₃H₃O₂⁻、⁹⁶SO₄²⁻ 和 ⁹⁷HSO₄⁻ 及少量 ²⁴C₂⁻、³⁶C₃⁻、⁴⁸C₄⁻ 峰, 因此, 本研究将该类命名为 K-Biomass. 而图 1(a) 正谱图有弱的 ²³Na⁺、^{206,207,208}Pb⁺, 负谱图中的 ⁴⁶NO₂⁻ 和 ⁶²NO₃⁻ 峰要明显高于 ⁹⁶SO₄²⁻ 和 ⁹⁷HSO₄⁻ 峰, 并且有较弱的 ¹⁶O⁻、¹⁷OH⁻ 和 ²⁶C₂H₂/CN 峰, 本研究将该类命名为 K-NO₃.

图 1(c) 和 1(d) 的质谱图都含有丰富的有机物、⁹⁶SO₄²⁻ 和 ⁹⁷HSO₄⁻ 信号, 但其各自的有机物信号特点并不相同. 图 1(c) 正谱有强的 ²⁷C₂H₃⁺、⁴³(CH₃)CO⁺/C₂H₃N⁺、⁵¹C₄H₃⁺、⁶³C₅H₃⁺、⁷⁷C₆H₅⁺、⁹¹C₇H₇⁺ 峰, 其中 ²⁷C₂H₃⁺、⁴³(CH₃)CO⁺/C₂H₃N⁺ 通常认为是氧化二次有机气溶胶质谱特征, 而 ⁵¹C₄H₃⁺、⁶³C₅H₃⁺、⁷⁷C₆H₅⁺、⁹¹C₇H₇⁺ 是强芳香烃信号, ³⁹K⁺ 处是最强峰, 但它可能是 ³⁹K⁺ 也有可能是有机峰 ³⁹C₃H₃⁺, 负谱图是较强的 ⁹⁶SO₄²⁻ 和 ⁹⁷HSO₄⁻ 峰与 ⁴⁶NO₂⁻ 和 ⁶²NO₃⁻ 的内混合. 根据该类的质谱特征, 本研究将该类命名为 K-aromatic. 图 1(d) 正谱有很强的有机峰系列 ²⁷C₂H₃⁺、³⁷C₃H⁺、³⁹C₃H₃⁺/K⁺、⁵⁰C₄H₂⁺、⁵¹C₄H₃⁺、⁶¹C₅H、⁶³C₅H₃⁺、⁷⁴C₆H₂⁺/(CH₃)₄N⁺、⁸⁵C₇H⁺, 负谱内混合大量碳链 ²⁴C₂⁻、³⁶C₃⁻、⁴⁸C₄⁻、⁶⁰C₅⁻、⁷²C₆⁻、⁸⁴C₇⁻, 很明显, 将该类命名为 EC-OC. 图 1(e) 正谱有较强的 ³⁹K⁺ 峰, 且内混合碳簇离子峰碳链 ¹²C⁻、³⁶C₃⁻、⁴⁸C₄⁻、⁶⁰C₅⁻、²³Na⁺ 和 ⁴⁰Ca⁺, 负谱与 EC-OC 相似, 由于该类由 EC 作为主导, 本研究将该类命名为 EC.

图 1(f) 正谱图含有明显的矿尘离子峰如 ²³Na⁺、²⁷Al⁺、⁴⁰Ca⁺、⁵⁶Fe/CaO⁺ 及很强的硝酸盐 ⁴⁶NO₂⁻ 和 ⁶²NO₃⁻ 峰信号, 所以本研究将该类命名为 DUST.

图 1(g) 正谱图有强的 ³⁹K⁺ 及 ^{206,207,208}Pb⁺ 峰, 负谱由 ⁴⁶NO₂⁻ 和 ⁶²NO₃⁻、³⁵Cl⁻ 主导, 所以将该类命名为 Pb-rich. 图 1(h) 正谱图有较强的 ^{51,67}V⁺ 和 ²³Na⁺ 信号, 较弱的 ³⁹K⁺、⁵⁶Fe⁺ 峰, 负谱主要有 ⁴⁶NO₂⁻ 和 ⁶²NO₃⁻、以及较弱的 ⁹⁶SO₄²⁻ 和 ⁹⁷HSO₄⁻, 将该类命名为 V-rich. 图 1(i) 正谱有较强的 ⁵⁶Fe⁺ 信号以及较弱的 ²³Na⁺、³⁹K⁺, 负谱有较强的 ⁴⁶NO₂⁻ 和 ⁶²NO₃⁻. 由于这类粒子中 Fe 粒子非常丰富, 由此本研究将该类命名为 Fe-rich. 图 1(j) 和 1(k) 正谱图较为复杂, 没有

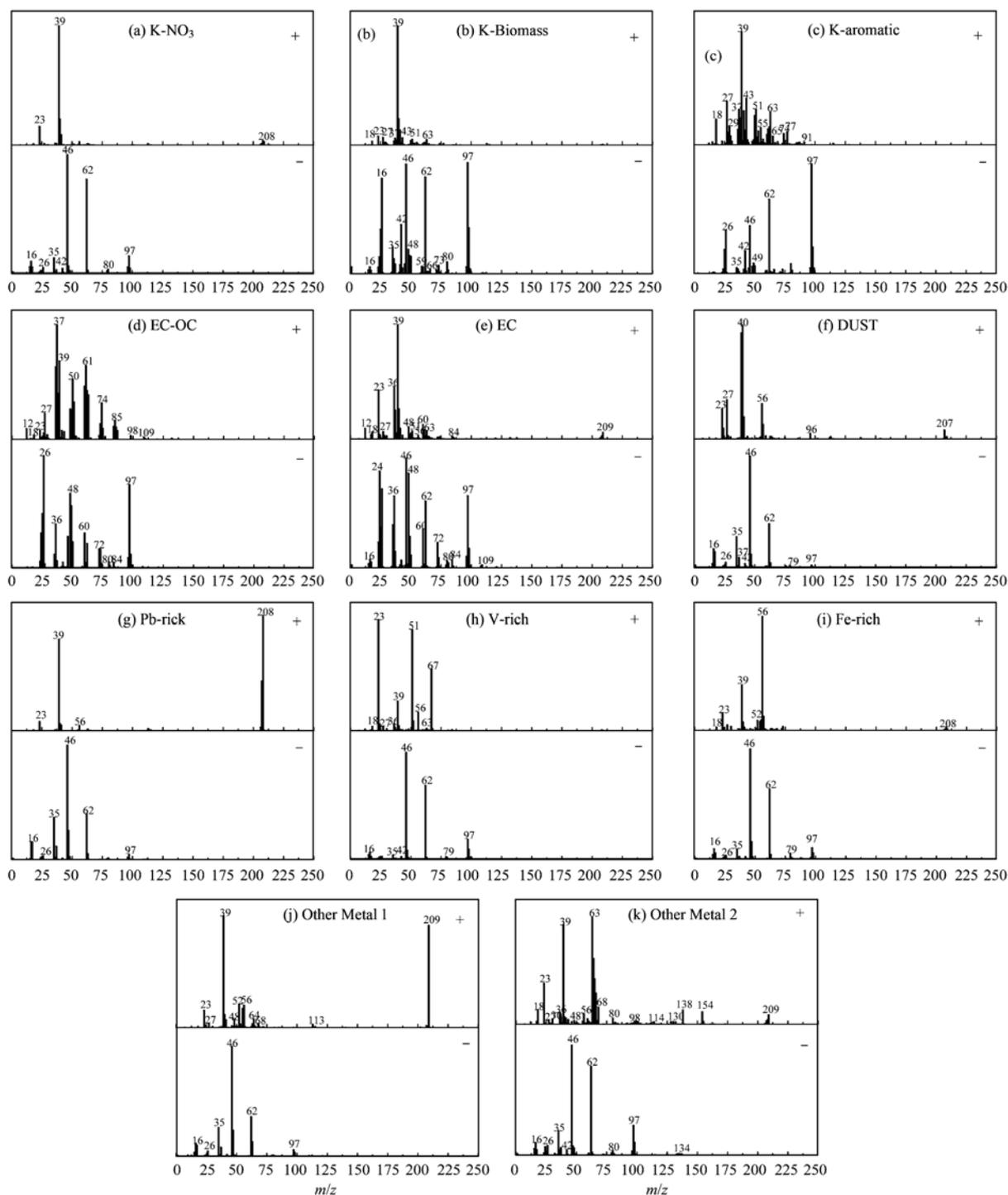


图 1 南京北郊重金属气溶胶粒子分类质谱图

Fig. 1 Average mass spectra for heavy metal aerosols in north suburb of Nanjing

较为突出的主导阳离子,而是由多个阳离子峰出现,其中 1(j) 有较明显的 $^{52,68}\text{Cr}^+$ 、 $^{55}\text{Mn}^+$ 和 $^{209}\text{Bi}^+$ 等峰出现,而图 1(k) 有较强的 $^{63,65}\text{Cu}^+$ 、 $^{63,65}\text{Cu}^+$ 和 $^{138}\text{Ba}^+$ 等,其负谱图比较相似,都有较丰富的 $^{46}\text{NO}_2^-$ 、 $^{62}\text{NO}_3^-$ 和 $^{97}\text{HSO}_4^-$ 等,因此本研究将图 1(j) 和 1(k) 分别命名

为 Other Metal 1 和 Other Metal 2,其中 Other Metal 1 包括: Cr、Mn 和 Bi, Other Metal 2 包括: Cu、Zn 和 Ba.

2.2.2 可能来源讨论

$^{39}\text{K}^+$ 通常作为生物质燃烧示踪离子,左旋葡聚

糖($^{45}\text{CHO}_2^-$ 、 $^{59}\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2^-$ 和 $^{73}\text{C}_3\text{H}_3\text{O}_2^-$) 是特殊的生物物质示踪物, 有机氮(CN/CNO)也是生物物质粒子的特殊离子峰之一^[21]. 从表3可看出 K-Biomass 含有左旋葡聚糖和 CN/CNO 分别为 27.9% 和 67.7%, 含有硝酸盐和硫酸盐分别为 84.4% 和 72.5%, 说明此生物物质粒子已经历了一定程度的老化过程. 尽管 K-NO₃ 类也含有丰富的 $^{39}\text{K}^+$, 但它的来源并不属于生物物质燃烧, 原因如下: 首先该类粒子质谱中有机离子

少, 尤其是作为生物示踪离子的左旋葡聚糖和 CN/CNO 含量较低, 这与生物物质燃烧粒子质谱特性不同; 其次, Pb 在 KNO₃ 中占了 54.2%, 而在 K-Biomass 中仅占了 8.1%, 根据国内外的一些研究发现, 含有较高 Pb 的气溶胶粒子主要来源于工业排放, 因此说明工业排放可能是 K-NO₃ 的主要来源^[22]. 因此, K-Biomass 可能主要源于生物物质燃烧, 而 K-NO₃ 主要来自附近工业排放.

表3 K-Biomass 和 K-NO₃ 类化学组分个数及百分比

Table 3 K-Biomass and K-NO₃ class number and percentage of chemical components

分类	个数	参数	Pb	左旋葡聚糖	CN/CNO	Nitrate	Sulfate
K-Biomass	21.04	数量 × 10 ⁴	1.70	5.86	14.24	17.76	15.26
		百分比/%	8.1	27.9	67.7	84.4	72.5
K-NO ₃	28.61	数量 × 10 ⁴	15.51	0.97	6.13	27.59	13.48
		百分比/%	54.2	3.4	21.4	96.4	47.1

有研究表明芳香烃是木材燃烧的主要成分^[23], 因此把 K-aromatic 类归为生物物质燃烧. 有机碳经常作为人为化石燃料燃烧示踪物, ECOC 负谱中 $^{96}\text{SO}_4^{2-}$ 和 $^{97}\text{HSO}_4^-$ 信号强度都高于 $^{46}\text{NO}_2^-$ 和 $^{62}\text{NO}_3^-$, 说明气态 SO₂ 容易与有机碳粒子结合, 并在气溶胶表面发生多相反应生成颗粒相硫酸盐^[24]. ECOC 的质谱特征与 Healy 等^[25] 在爱尔兰科克市的煤炭燃烧实验趋势相似, 而煤炭燃烧会产生大量的 SO₂ 气体, 因此认为 ECOC 可能是由于化石燃料燃烧产生(包括工业化化石燃料燃烧、家庭固态燃料燃烧). 大部分 EC 源于交通柴油排放^[26], 且在谱图中识别出明显的 $^{40}\text{Ca}^+$ 峰, Ca-EC 通常归因于交通燃油排放^[27,28].

DUST 有清晰的代表矿尘特征的典型离子 $^{27}\text{Al}^{3+}$ 、 $^{23}\text{Na}^+$ 、 $^{39}\text{K}^+$ 、 $^{40}\text{Ca}^{2+}$ 、 $^{56}\text{Fe}^{2+}$ 和 $^{63}\text{Cu}^{2+}$ 等, 其中 $^{40}\text{Ca}^{2+}$ 峰十分明显, 因此这可能归因于矿尘悬浮^[29]. Pb-rich 粒子先前在墨西哥、上海、北京观测到, 研究者们将该类归因于工业排放^[30,31], 内混合 Na⁺、K⁺、Cl⁻ 的 Pb-rich 相似类也在大量钢铁厂附近观测到^[32]. 综上所述, Pb-rich 可能来源于附近钢铁工业排放. V-rich 在很多 SPAMS 研究中观测到, 通常归因于重油燃烧^[33,34], 因此把这类归为交通排放. 在城市, 道路矿尘粒子是 Fe 的一个潜在源, 然而像这样 Fe 离子主导的气溶胶粒子不太可能来源于自然源^[35], 加之该质谱信息里没有 Al 离子, 说明这类不是来源于矿尘粒子^[36]. 本研究将 Fe-rich 类归因于钢铁工业排放. 为了尽可能多地识别出南京北郊重金属源贡献, 笔者结合先

前一些重金属相关研究将含有 Cr、Mn 和 Bi 的 Other Metal 1 类归为工业源^[37]; 含有 Cu、Zn 和 Ba 的 Other Metal 2 多为交通排放^[38,39], 因此将该类归为交通排放.

2.3 重金属气溶胶粒子来源讨论

通过对以上 11 类别来源的初步分析得出: K-NO₃、Pb-rich、Fe-rich 和 Other Metal 1 属于工业排放; ECOC 属于化石燃料燃烧; K-Biomass 和 K-aromatic 归为生物物质燃烧; V-rich、EC 和 Other Metal 2 归为交通排放; Dust 归为矿尘, 由此可见: 工业排放、化石燃料燃烧、生物物质燃烧、交通排放和矿尘是南京北郊 11 种重金属气溶胶粒子的重要来源. 由于每种重金属气溶胶的来源并不相同, 下文将对每种重金属气溶胶粒子的来源进行讨论.

表4给出了 11 种重金属气溶胶粒子不同类别峰面积及其百分比, 由此可以看出 11 类别所占各种重金属气溶胶粒子的比例差异较大, 这说明各种重金属气溶胶粒子的来源并不相同. 根据上文对各类别进行来源分析可知, 将 11 类归纳为 5 大类来源, 由此将表4归纳总结成表5. 表5表示 11 种重金属气溶胶粒子 5 类来源所占比例, 通过表5可以看出, 含 Pb、Cd 和 Cr 气溶胶粒子主要来源于工业排放, 含 Cu、Co 和 Hg 气溶胶粒子主要来源于生物物质燃烧, 含 V、Zn 和 Ba 气溶胶粒子主要来源于交通排放, 含 As 和 Ni 气溶胶粒子主要来源于化石燃料燃烧.

表 4 各种重金属气溶胶粒子峰面积和百分比

Table 4 Peak area and percentage for all kinds of heavy metal aerosol particles

来源	分类	参数	Cu	As	Pb	Cd	V	Co	Cr	Zn	Ni	Ba	Hg
工业排放	K-NO ₃	峰面积 × 10 ⁶	14.70	0.40	54.58	11.00	9.51	1.45	7.94	9.60	2.74	1.17	0.55
		百分比/%	4.97	1.22	11.62	29.23	2.70	14.99	6.93	15.08	1.78	17.69	3.01
	Pb-rich	峰面积 × 10 ⁶	4.37	0.03	387.00	6.09	0.19	0.09	0.46	1.14	0.33	0.11	0.11
		百分比/%	1.48	0.08	82.41	16.18	0.06	0.88	0.40	1.79	0.21	1.70	0.61
	Fe-rich	峰面积 × 10 ⁶	3.40	0.08	6.20	0.26	4.05	0.89	15.38	3.14	2.58	0.36	0.02
		百分比/%	1.15	0.24	1.32	0.70	1.15	9.23	13.42	4.94	1.68	5.38	0.11
	Other Metal 1	峰面积 × 10 ⁶	7.96	0.09	4.70	5.54	1.88	0.50	38.71	13.48	0.39	0.17	1.44
		百分比/%	2.69	0.27	1.00	14.73	0.53	5.17	33.77	21.18	0.25	2.53	7.91
化石燃料燃烧	ECOC	峰面积 × 10 ⁶	75.49	17.89	0.39	1.78	61.63	0.04	5.88	0.70	87.35	0.01	0.26
		百分比/%	25.54	54.53	0.08	4.74	17.50	0.42	5.13	1.10	56.77	0.15	1.44
生物质燃烧	K-Biomass	峰面积 × 10 ⁶	40.03	3.00	6.04	9.51	35.60	1.21	6.76	2.10	11.38	0.17	15.57
		百分比/%	13.54	9.14	1.29	25.27	10.11	12.54	5.90	3.30	7.40	2.54	85.77
	K-aromatic	峰面积 × 10 ⁶	95.69	10.27	0.44	0.60	86.69	2.33	19.13	2.65	28.09	0.02	0.10
		百分比/%	32.37	31.29	0.09	1.59	24.61	24.03	16.69	4.17	18.26	0.27	0.53
交通排放	V-rich	峰面积 × 10 ⁶	2.96	0.07	0.89	0.08	140.00	0.22	10.14	0.76	1.40	0.10	0.03
		百分比/%	1.00	0.20	0.19	0.21	39.75	2.23	8.85	1.19	0.91	1.55	0.16
	EC	峰面积 × 10 ⁶	10.69	0.73	5.21	0.51	9.31	0.23	1.68	3.70	14.77	0.63	0.03
		百分比/%	3.62	2.23	1.11	1.36	2.64	2.37	1.47	5.81	9.60	9.43	0.14
	Other Metal 2	峰面积 × 10 ⁶	38.20	0.02	2.06	1.37	1.12	1.39	4.39	24.28	1.13	3.55	0.01
		百分比/%	12.92	0.05	0.44	3.64	0.32	14.40	3.83	38.15	0.73	53.56	0.08
矿尘	Dust	峰面积 × 10 ⁶	0.54	0.21	1.63	0.59	0.17	0.44	0.16	0.43	0.04	0.18	0.00
		百分比/%	0.18	0.64	0.35	1.56	0.05	4.55	0.14	0.68	0.02	2.67	0.00
未定义	Undefined	峰面积 × 10 ⁶	1.60	0.04	0.49	0.30	2.07	0.89	3.98	1.67	3.69	0.17	0.04
		百分比/%	0.54	0.11	0.10	0.79	0.59	9.20	3.47	2.62	2.40	2.53	0.25

表 5 各种重金属气溶胶粒子来源分布/%

Table 5 Percentages of the various sources for all kinds of heavy metal aerosol particles/%

来源	Cu	As	Pb	Cd	V	Co	Cr	Zn	Ni	Ba	Hg
工业排放	10.29	1.81	96.35	60.84	4.44	30.27	54.52	42.99	3.92	27.3	11.64
化石燃料燃烧	25.54	54.53	0.08	4.74	17.50	0.42	5.13	1.1	56.77	0.15	1.44
生物质燃烧	45.91	40.43	1.38	26.86	34.72	36.57	22.59	7.47	25.66	2.81	86.3
交通排放	17.54	2.48	1.74	5.21	42.71	19	14.15	45.15	11.24	64.54	0.38
矿尘	0.18	0.64	0.35	1.56	0.05	4.55	0.14	0.68	0.02	2.67	0
未定义	0.54	0.11	0.1	0.79	0.59	9.2	3.47	2.62	2.4	2.53	0.25

3 结论

(1) 通过 2013 年 1~12 月使用在线单颗粒气溶胶质谱仪 (SPAMS) 对 11 种重金属气溶胶粒子进行连续观测, 南京北郊含 Cu 重金属气溶胶粒子数量最多, 剩下的依次是含 As、Pb、Cd、V、Co、Cr、Zn、Ni、Ba、Hg 重金属气溶胶粒子。

(2) 南京北郊重金属气溶胶粒子来源按照化学组成特征可分为 5 类: 工业排放 (35.7%)、生物质燃烧 (34.45%)、交通排放 (13.6%)、化石燃料燃烧 (11.03%) 和矿尘 (4.07%), 总贡献率达 98.85%, 含 Pb、Cd 和 Cr 重金属气溶胶粒子最主要

来源于工业排放, 含 Cu、Co 和 Hg 气溶胶粒子主要来源于生物质燃烧, 含 V、Zn 和 Ba 气溶胶粒子主要来源于交通排放, 含 As 和 Ni 气溶胶粒子主要来源于化石燃料燃烧。

(3) 这种利用峰面积计算推测各种重金属气溶胶来源的方法具有一定的不确定性。例如一些芳香烃类 (⁵C₄H³⁺、⁶C₅H³⁺ 和 ⁷C₆H⁴⁺ 等), 它们会强烈干扰 ⁷⁵As⁺、^{63,65}Cu²⁺ 和 ^{51,67}V⁺ 等重金属的峰面积结果, 从而影响到源贡献率的计算。因此, 本文中部分重金属对生物质燃烧的源贡献讨论存在一定的高估现象, 对南京北郊重金属来源解析的研究还有待进一步完善。

参考文献:

- [1] Chen P F, Bi X H, Zhang J Q, *et al.* Assessment of heavy metal pollution characteristics and human health risk of exposure to ambient PM_{2.5} in Tianjin, China[J]. *Particuology*, 2015, **20**: 104-109.
- [2] Chen B, Stein A F, Maldonado P G, *et al.* Size distribution and concentrations of heavy metals in atmospheric aerosols originating from industrial emissions as predicted by the HYSPLIT model [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **71**: 234-244.
- [3] 张晓茹, 孔少飞, 银燕, 等. 亚青会期间南京大气 PM_{2.5} 中重金属来源及风险[J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(1): 1-11.
Zhang X R, Kong S F, Yin Y, *et al.* Sources and risk assessment of heavy metals in ambient PM_{2.5} during Youth Asian Game period in Nanjing [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(1): 1-11.
- [4] Duan J C, Tan J H. Atmospheric heavy metals and arsenic in China: situation, sources and control policies[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **74**: 93-101.
- [5] Dai Q L, Bi X H, Wu J H, *et al.* Characterization and source identification of heavy metals in ambient PM₁₀ and PM_{2.5} in an integrated iron and steel industry zone compared with a background site[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2015, **15**: 875-887.
- [6] 陶俊, 张仁健, 段菁春, 等. 北京城区 PM_{2.5} 中致癌重金属季节变化特征及其来源分析[J]. *环境科学*, 2014, **35**(2): 411-417.
Tao J, Zhang R J, Duan J C, *et al.* Seasonal variation of carcinogenic heavy metals in PM_{2.5} and source analysis in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(2): 411-417.
- [7] 刘凤玲, 卢霞, 吴梦龙, 等. 南京大气细粒子中重金属污染特征及来源解析[J]. *环境工程学报*, 2014, **8**(2): 652-658.
Liu F L, Lu X, Wu M L, *et al.* Pollution characters and source apportionment of heavy metals in PM_{2.1} in Nanjing[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2014, **8**(2): 652-658.
- [8] 周静博, 任毅斌, 洪纲, 等. 利用 SPAMS 研究石家庄市冬季连续灰霾天气的污染特征及成因[J]. *环境科学*, 2015, **36**(11): 3972-3980.
Zhou J B, Ren Y B, Hong G, *et al.* Characteristics and formation mechanism of a multi-day haze in the winter of Shijiazhuang using a single particle aerosol mass spectrometer (SPAMS)[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(11): 3972-3980.
- [9] 刘慧琳, 宋红军, 陈志明, 等. 利用 SPAMS 研究南宁市冬季单颗粒气溶胶化学成分[J]. *环境科学*, 2016, **37**(2): 434-442.
Liu H L, Song H J, Chen Z M, *et al.* Chemical composition of the single particle aerosol in winter in Nanning using SPAMS[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(2): 434-442.
- [10] Zhang G, Bi X, Li L, *et al.* Mixing state of individual submicron carbon-containing particles during spring and fall seasons in urban Guangzhou, China; a case study [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(9): 4723-4735.
- [11] Chan A W H, Kautzman K E, Chhabra P S, *et al.* Secondary organic aerosol formation from photooxidation of naphthalene and alkylnaphthalenes: implications for oxidation of intermediate volatility organic compounds (IVOCs) [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(9): 3049-3060.
- [12] Dall'Osto M, Harrison R M. Urban organic aerosols measured by single particle mass spectrometry in the megacity of London[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(9): 4127-4142.
- [13] Bi X H, Zhang G H, Li L, *et al.* Mixing state of biomass burning particles by single particle aerosol mass spectrometer in the urban area of PRD, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(20): 3447-3453.
- [14] Chen K, Yin Y, Kong S F, *et al.* Size-resolved chemical composition of atmospheric particles during a straw burning period at Mt. Huang (the Yellow Mountain) of China[J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **84**: 380-389.
- [15] Li L, Li M, Huang Z X, *et al.* Ambient particle characterization by single particle aerosol mass spectrometry in an urban area of Beijing[J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **94**: 323-331.
- [16] Dall'Osto M, Harrison R M. Chemical characterisation of single airborne particles in Athens (Greece) by ATOFMS [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(39): 7614-7631.
- [17] 张雅萍, 杨帆, 汪明明, 等. 运用单颗粒气溶胶质谱技术研究上海大气重金属 (Zn, Cu) 污染[J]. *复旦学报(自然科学版)*, 2010, **49**(1): 51-59, 65.
Zhang Y P, Yang F, Wang M M, *et al.* Single particle mass spectrometry of zinc and copper-containing aerosols in Shanghai [J]. *Journal of Fudan University (Natural Science)*, 2010, **49**(1): 51-59, 65.
- [18] 秦鑫, 张泽锋, 李艳伟, 等. 南京北郊春季含 Pb 气溶胶粒子来源分析[J]. *环境科学学报*, 2015, **35**(3): 641-646.
Qin X, Zhang Z F, Li Y W, *et al.* Sources analysis of Pb-containing aerosols in north suburb of Nanjing in spring[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, **35**(3): 641-646.
- [19] 秦鑫. 南京北郊重金属气溶胶特征及来源分析[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2015. 1-60.
- [20] Li L, Huang Z X, Dong J G, *et al.* Real time bipolar time-of-flight mass spectrometer for analyzing single aerosol particles[J]. *International Journal of Mass Spectrometry*, 2011, **303**(2-3): 118-124.
- [21] 王鑫彤, 鞠法帅, 韩德文, 等. 大气颗粒物中生物质燃烧示踪化合物的研究进展[J]. *环境化学*, 2015, **34**(10): 1885-1894.
Wang X T, Ju F S, Han D W, *et al.* Research progress on the organic tracers of biomass burning in atmospheric aerosols[J]. *Environmental Chemistry*, 2015, **34**(10): 1885-1894.
- [22] Fernández-Camacho R, Rodríguez S, Rosa J D L, *et al.* Ultrafine particle and fine trace metal (As, Cd, Cu, Pb and Zn) pollution episodes induced by industrial emissions in Huelva, SW Spain[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **61**(12): 507-517.
- [23] Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, *et al.* Measurement of emissions from air pollution sources. 2. C₁ through C₃₀ organic compounds from medium duty diesel trucks[J]. *Environmental Science & Technology*, 1999, **33**(10): 1578-1587.
- [24] Steinfeld J I. Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change [J]. *Environment: Science and Policy for Sustainable Development*, 1998, **40**(7): 26.
- [25] Healy R M, Hellebust S, Kourtev I, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} in Cork Harbour, Ireland using a combination of single particle mass spectrometry and quantitative semi-continuous measurements[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(19): 9593-9613.

- [26] Chaloulakou A, Kassomenos P, Grivas G, *et al.* Particulate matter and black smoke concentration levels in central Athens, Greece [J]. *Environment International*, 2005, **31**(5): 651-659.
- [27] Spencer M T, Shields L G, Sodeman D A, *et al.* Comparison of oil and fuel particle chemical signatures with particle emissions from heavy and light duty vehicles [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(27): 5224-5235.
- [28] Shields L G, Suess D T, Prather K A. Determination of single particle mass spectral signatures from heavy - duty diesel vehicle emissions for PM_{2.5} source apportionment [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(18): 3841-3852.
- [29] Lee P K, Choi B Y, Kang M J. Assessment of mobility and bio-availability of heavy metals in dry depositions of Asian dust and implications for environmental risk [J]. *Chemosphere*, 2015, **119**: 1411-1421.
- [30] Moffet R C, De Foy B, Molina L T, *et al.* Measurement of ambient aerosols in northern Mexico City by single particle mass spectrometry [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, **8**(16): 4499-4516.
- [31] Ma L, Li M, Zhang H F, *et al.* Comparative analysis of chemical composition and sources of aerosol particles in urban Beijing during clear, hazy, and dusty days using single particle aerosol mass spectrometry [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2016, **112**: 1319-1329.
- [32] Dall'Osto M, Booth M J, Smith W, *et al.* A study of the size distributions and the chemical characterization of airborne particles in the vicinity of a large integrated steelworks [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2008, **42**(12): 981-991.
- [33] Healy R M, O'Connor I P, Hellebust S, *et al.* Characterisation of single particles from in-port ship emissions [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(40): 6408-6414.
- [34] Ault A P, Gaston C J, Wang Y, *et al.* Characterization of the single particle mixing state of individual ship plume events measured at the port of Los Angeles [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(6): 1954-1961.
- [35] McLennan S M. Relationships between the trace element composition of sedimentary rocks and upper continental crust [J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2001, **2**(4): 2000GC000109.
- [36] Silva P J, Carlin R A, Prather K A. Single particle analysis of suspended soil dust from Southern California [J]. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**(11): 1811-1820.
- [37] 银燕, 童尧青, 魏玉香, 等. 南京市大气细颗粒物化学成分分析 [J]. *大气科学学报*, 2009, **32**(6): 723-733.
Yin Y, Tong Y Q, Wei Y X, *et al.* The analysis of chemistry composition of fine-mode particles in Nanjing [J]. *Transactions of Atmospheric Sciences*, 2009, **32**(6): 723-733.
- [38] 谭吉华, 段菁春. 中国大气颗粒物重金属污染、来源及控制建议 [J]. *中国科学院研究生院学报*, 2013, **30**(2): 145-155.
Tan J H, Duan J C. Heavy metals in aerosol in China: pollution, sources, and control strategies [J]. *Journal of Graduate University of Chinese Academy of Sciences*, 2013, **30**(2): 145-155.
- [39] Toner S M, Shields L G, Sodeman D A, *et al.* Using mass spectral source signatures to apportion exhaust particles from gasoline and diesel powered vehicles in a freeway study using UF-ATOFMS [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(3): 568-581.

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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
赵进才 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12月15日 第37卷 第12期(卷终)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 12 Dec. 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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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	中国国际图书贸易集团有限公司 (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