ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第9期

Vol.39 No.9

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办

科学出版社 出版

中国期刊方阵 双奖期刊 中华人民共和国新闻出版总署

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第 39 卷 第 9 期
2018 年 9 月 15 日

目 次

长三角区域非道路移动机械排放清单及预测 …… 黄成, 安静宇, 鲁君(3965)
基于 COPERT 模型的江苏省机动车时空排放特征与分担率 …… 李荔, 张洁, 赵秋月, 李慧鹏, 韩军赞(3976)
上海典型燃烧源铅和汞大气排放趋势分析 …… 杨静, 陈龙, 刘敏, 孟祥周, 张希(3987)
广东省秸秆燃烧大气污染物及 VOCs 物种排放清单 …… 孙西勃, 廖程浩, 曾武涛, 张永波, 梁小明, 叶代启(3995)
重庆市北碚城区气溶胶中水溶性无机离子的质量浓度及其粒径分布 …… 李彦沛, 郝庆菊, 温天雪, 吉东生, 刘子锐, 王跃思, 江长胜(4002)
济南市夏、冬季 $PM_{2.5}$ 中化学组分的季节变化特征及来源解析 …… 刘晓迪, 孟静静, 侯战方, 李静, 邢继钊, 魏本杰, 张二勋, 刘加珍, 董杰(4014)
聊城冬季一重污染过程 $PM_{2.5}$ 污染特征及成因分析 …… 张敬巧, 吴亚君, 张萌, 王涵, 陈振兴, 胡君, 李慧, 范晓龙, 柴发合, 王淑兰(4026)
夏季青岛大气气溶胶中不同形态磷的浓度、来源及沉降通量 …… 王楠, 马淼, 石金辉, 高会旺, 姚小红(4034)
晋城市冬季环境空气中挥发性有机物的污染特征及来源解析 …… 杨帆, 闫雨龙, 戈云飞, 李如梅, 李颖慧, 余化龙, 彭林(4042)
北京冬季降尘重金属富集程度及综合污染评价 …… 熊秋林, 赵文吉, 李大军, 周涛(4051)
合肥市典型交通干道大气苯系物的特征分析 …… 孟凡昊, 秦敏, 梁帅西, 谢品华, 夏晖晖, 段俊, 方武, 唐科, 李昂, 魏桢, 王凤(4060)
填埋场作业面 NMOCs 臭氧生成潜势及高贡献物质 …… 李昊, 刘彦君, 陈坦, 闫秋鹤, 代辉祥, 王洪涛, 陆文静(4070)
北京市混凝土搅拌站风蚀扬尘排放特征 …… 李贝贝, 韩凯丽, 秦建平, 王鑫, 宋博, 黄玉虎, 张春来(4078)
基于源解析的傍河水源地污染风险季节性变化特征分析 …… 高翔, 左锐, 郭学茹, 孟利, 刘鑫, 王滨, 滕彦国, 王金生(4086)
透水路面-生物滞留池组合道路的城市面源污染控制效果评估 …… 宫曼莉, 左俊杰, 任心欣, 赵洪涛, 罗茜, 廖云杰, 李叙勇(4096)
黄河兰州段水体中有色溶解性有机质组成、空间分布特征及来源分析 …… 赵夏婷, 李珊, 王兆炜, 谢晓芸(4105)
黄河干流宁蒙段溶解性有机物组分特征及其与金属离子的相关性 …… 席玥, 王婷, 倪晋仁, 韩鹏, 仪马兰, 郑彤, 蒋咏, 马若绮, 崔锋(4114)
伊洛河和浑太河春季水体光学吸收特征的对比 …… 李柳阳, 邵田田, 张鑫, 宋炎炎, 苏东辉, 王涛(4122)
马莲河流域化学风化的季节变化和影响因素 …… 王雨山, 韩双宝, 邓启军, 祁晓凡(4132)
柳江盆地浅层地下水硝酸型水特征和成因分析 …… 徐进, 何江涛, 彭聪, 曾颖(4142)
地下水氮污染原位修复缓释碳源材料的研发与物化-生境协同特性 …… 张雯, 尹琳, 周念清(4150)
三峡水库干流沉积物及消落带土壤磷形态及其分布特征 …… 张志永, 万成炎, 胡红青, 彭建华, 侯娟, 丁庆秋, 袁玉洁(4161)
蓄水前后三峡库区香溪河沉积物磷形态分布特征及释放通量估算 …… 刘心愿, 宋林旭, 纪道斌, 刘德富, 李欣, 黄佳维, 赵冲, 唐咏春, 平明明(4169)
锆改性沸石添加对重污染河道底泥磷释放和钝化的影响 …… 何思琪, 张薇, 林建伟, 詹艳慧, 李娟英, 邢云青, 高春梅, 黄宏, 梁舒静(4179)
洱海流域乡镇尺度上人类活动对净氮输入量的影响 …… 李影, 刘宏斌, 雷秋良, 胡万里, 王洪媛, 翟丽梅, 任天志, 连慧姝(4189)
我国典型潮间带沉积物-水界面无机氮源汇效应 …… 聂家琴, 王东启, 陈杰, 李杨杰, 陈姝, 陈振楼(4199)
东太湖水产养殖对沉积物中氨氧化原核生物的影响 …… 储瑜, 何肖微, 曾巾, 赵大勇, 孙强, 曹萍, 吴庆龙(4206)
处理采矿废水湿地沉积物中厌氧氨氧化过程 …… 汪海波, 马丁, 岳正波, 陶巍, 陈天虎, 王进(4215)
华东地区某饮用水源地中磺胺类抗性基因的分布特征 …… 胡亚茹, 姜蕾, 张天阳, 雷丹丹, 姜巍巍, 张东, 林匡飞, 崔长征(4222)
制革废水处理过程中磺胺类抗生素和抗性细菌的分布特征 …… 花莉, 李璐, 杨春燕(4229)
人工湿地不同基质和粒径对污水净化效果的比较 …… 赵林丽, 邵学新, 吴明, 姜小三, 陆琳莹(4236)
城市污水管网中不同生化作用的基质流向 …… 姚翔译, 石烜, 桑浪涛, 金鹏康, 王晓昌(4242)
微絮凝对腐殖酸超滤过程膜污染的减缓特性 …… 王旭东, 石彩霞, 廖正伟, 贺酰淑, 王磊(4249)
UV 强化草酸络合 Fe^{3+} 活化过硫酸盐氧化降解苯胺 …… 韩东晖, 李瑛, 李开明, 应光国(4257)
焦化废水 A/O^2 和 A/O/H/O 处理工艺中多环芳烃的削减行为分析 …… 吴海珍, 孙胜利, 刘国新, 韦景悦, 吴超飞, 韦朝海, 钟练文, 彭亚环(4265)
长期侧流提取对 EBPR 系统除磷及其磷回收性能的影响 …… 俞小军, 李杰, 周猛, 宋璐, 李维维, 王亚娥, 马娟, 吕慧(4274)
NaCl 盐度对 A^2/O 工艺缺氧区胞外聚合物及生物絮凝性的影响 …… 张兰河, 田蕊, 郭静波, 贾艳萍, 张海丰, 李正, 陈子成(4281)
温度和 pH 值对铁盐型氨氧化过程氮素转化的影响 …… 陈方敏, 金润, 袁砚, 李祥, 黄勇, 顾澄伟(4289)
游离氨(FA)对氨氧化菌(AOB)活性抑制动力学试验 …… 孙洪伟, 于雪, 高宇学, 李维维, 祁国平, 许涓(4294)
HRT 对厌氧氨氧化协同异养反硝化脱氮的影响 …… 安芳娇, 赵智超, 黄利, 黄剑明, 邵兆伟, 陈永志(4302)
长期储存亚硝化絮状污泥活性的恢复 …… 李田, 魏凡凯, 汪裕昌, 沈耀良, 吴鹏, 宋吟玲(4310)
广西西江流域农田土壤重金属含量特征及来源解析 …… 宋波, 张云霞, 庞瑞, 杨子杰, 宾娟, 周子阳, 陈同斌(4317)
紫色土壤有机碳活性组分对生物炭施用量的响应 …… 罗梅, 田冬, 高明, 黄容(4327)
秸秆及生物炭还田对油菜/玉米轮作系统碳平衡和生态效益的影响 …… 李娇, 田冬, 黄容, 徐国鑫, 黎嘉成, 高明, 王子芳(4338)
低积累水稻品种联合腐殖酸、海泡石保障重镉污染稻田安全生产的潜力 …… 谢晓梅, 方至萍, 廖敏, 黄宇, 黄小辉(4348)
臭氧和干旱交互作用对杨树叶片抗氧化酶活性的影响 …… 周慧敏, 李品, 高峰, 冯兆忠, 张殷波(4359)
再生水不同灌水水平对土壤酶活性及耐热大肠菌群分布的影响 …… 韩洋, 李平, 齐学斌, 崔丙健, 常迪, 马欢欢(4366)
黄淮海地区鸡粪有机肥重金属含量特征及环境风险 …… 李发, 徐应明, 王林, 梁学峰, 孙约兵, 纪艺凝, 栾润宇(4375)
村镇生活垃圾重金属含量及其来源分析 …… 靳琪, 高红, 岳波, 黄启飞, 王瑜堂, 吴小卉, 於俊颖, 杨惠媛(4385)
《环境科学》征订启事(3986) 《环境科学》征稿简则(4050) 信息(4085, 4104, 4337)

晋城市冬季环境空气中挥发性有机物的污染特征及来源解析

杨帆, 闫雨龙, 戈云飞, 李如梅, 李颖慧, 余化龙, 彭林*
(华北电力大学环境科学与工程学院, 北京 102206)

摘要: 采集晋城市冬季环境空气样品, 利用色谱-质谱仪分析了其挥发性有机物(VOCs)的组份特征, 运用 PMF、特征比值、后向轨迹模型对其来源进行了研究, 并计算了臭氧和二次有机气溶胶的生成潜势, 探讨了其环境影响. 结果表明, 观测期间, 晋城市 VOCs 平均浓度为 93.35 μg·m^{-3}, 其中烷烃类化合物浓度为 52.91 μg·m^{-3}, 在 VOCs 中占比较高为 56.68%; PMF 分析 VOCs 排放源有工业排放源、燃烧源、机动车源、溶剂使用源和植物源, 贡献率分别为 33.71%、30.27%、26.28%、9.00% 和 0.74%; 特征比值法分析中, 苯/甲苯和异戊烷/正戊烷比值分别为 1.58 ±0.68 和 2.07 ±0.43, 介于道路来源与燃煤源之间, 为两者混合来源. 后向轨迹聚类 3 个代表性气团均来自西北方向, 分别占比 50%、25% 和 25%, 西北方向的工业污染可能会对晋城市 VOCs 造成影响; 观测期间, 晋城市空气质量指数、总 VOCs 浓度和机动车源贡献率在风速较小时(<3 m·s^{-1})分别为 143、162.48 μg·m^{-3}和 46.16%, 各数值均高于风速较大(3~6.9 m·s^{-1})时(60、35.72 μg·m^{-3}和 16.15%); 芳香烃类化合物的臭氧和二次有机气溶胶生成潜势分别为 98.89 μg·m^{-3}和 1.21 μg·m^{-3}, 占总生成潜势的 37.28% 和 97.01%, 是两种生成潜势最高的 VOCs 化合物种类. 因此, 控制工业、机动车和燃烧排放是控制晋城市环境空气中 VOCs 污染的主要途径.

关键词: 晋城; 挥发性有机物; 污染特征; 来源解析; 臭氧生成潜势; 二次有机气溶胶生产潜势
中图分类号: X511 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2018)09-4042-09 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.201801221

Characteristics and Source Apportionment of Ambient Volatile Organic Compounds in Winter in Jincheng

YANG Fan, YAN Yu-long, GE Yun-fei, LI Ru-mei, LI Ying-hui, YU Hua-long, PENG Lin*
(College of Environment Science and Engineering, North China Electric Power University, Beijing 102206, China)

Abstract: Air samples were collected and analyzed by GC-MS to investigate the component characteristics of volatile organic compounds (VOCs) in winter in Jincheng. PMF, ratio analysis, and the backward trajectory model were used to investigate sources of VOCs. Ozone formation potential and secondary organic aerosol formation potential were calculated, in order to analyze the environmental implications of detected VOCs. Results showed that the average concentration of VOCs was 93.35 μg·m^{-3} in Jincheng, with the most abundant component being alkane (52.91 μg·m^{-3} and 56.68% of total VOCs). Based on PMF analysis, five sources of ambient VOCs in Jincheng were identified, namely industrial emission sources (33.71%), fuel combustion sources (30.27%), vehicle emissions (26.28%), solvent evaporation sources (9.00%), and plant emission sources (0.74%). Ratios of B/T and *i*-pentane/*n*-pentane were 1.58 ± 0.68 and 2.07 ± 0.43, indicating that VOCs were derived from the mixture of road and coal combustion sources. Clustered analysis of the air mass backward trajectory showed that three air masses cluster, which were accounting for 50%, 25% and 25% of the total back trajectories respectively, all came from the northwest, and industrial pollution from the northwest might therefore significantly influence VOCs in Jincheng. With low wind speed (< 3 m·s^{-1}), the air quality index, concentration of total VOCs, and contribution rate of vehicle emissions were 143, 162.48 μg·m^{-3}, and 46.16%, respectively, higher than values at faster wind speeds (3-6.9 m·s^{-1}). Ozone formation potential and secondary organic aerosol formation potential of aromatic hydrocarbons, which had the highest formation potential, were 98.89 μg·m^{-3} and 1.21 μg·m^{-3}, respectively, accounting for 37.28% and 97.01% of total formation potential. To reduce the pollution of VOCs in Jincheng, it is important to control industrial emissions, vehicle emissions, and fuel combustion emissions.

Key words: Jincheng; volatile organic compounds(VOCs); pollution characteristics; source apportionment; ozone formation potential; secondary organic aerosol formation potential

挥发性有机物(volatile organic compounds, VOCs)是大气中普遍存在的一类有机化合物, 是形成二次有机物(SOA)和臭氧(O_3)的关键前体物[1], 对导致霾和光化学烟雾污染有重要影响[2]. 有研究显示, 环境空气中的 VOCs 成分复杂多变, 固定燃烧、工业排放、机动车、溶剂使用、植物等排放源

收稿日期: 2018-01-24; **修订日期**: 2018-03-13
基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFC0208500); 国家自然科学基金项目(41673004); 大气重污染成因与治理攻关项目(DQGG-05-13)
作者简介: 杨帆(1994~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为大气与污染源 VOCs 的监测分析, E-mail: yangf0814@163.com
* 通信作者, E-mail: penglin6611@163.com

都对环境空气中 VOCs 有贡献[3]. 随着经济和城市化发展速度的加快，我国臭氧污染水平在近些年呈上升趋势，光化学烟雾污染在各地出现的频率逐渐增高，臭氧已经成为影响我国许多地区环境空气质量的首要污染物，其前体物 VOCs 得到了越来越多的关注[4~6].

晋城市位于山西省东南部，是重要的无烟煤产地和煤化工基地，是我国 141 个成熟型资源型城市之一. 监测数据表明：近年来晋城市臭氧浓度逐年升高，2015、2016 和 2017 年臭氧全年平均浓度分别为 65.8、94.0 和 116.8 $\mu g \cdot m^{-3}$，11 ~ 12 月臭氧平均浓度分别为 42.2、56.2 和 74.6 $\mu g \cdot m^{-3}$，已经成为影响城市大气环境质量的主要污染物之一[7]，其增加的大气氧化性也是导致冬季 $PM_{2.5}$ 重污染的因素[2]. VOCs 作为 SOA 和 O_3 生成过程中的关键前体物，目前国内主要研究大多集中在长三角、珠三角和京津冀等地区[8~10]，但关于资源型城市的 VOCs 污染现状研究十分欠缺. 本研究于 2017 年 1 月选择在不同污染天气条件下，对我国典型资源型城市——晋城市冬季环境空气中的 VOCs 进行采样，分析其浓度特征、来源和影响因素，并研究其对环境造成的影响，以期为晋城市控制 VOCs 排放、改善环境空气质量提供科学依据.

1　材料与方法

1.1　样品采集

采样点位于晋城市自来水公司，采样口位于公司大楼顶部(距地面 15 m). 该站点位于晋城市中心城区，所在区域人口密集，周围分布着居民区、政府机关和商业区等，是典型城市区域. 采样采用 2 h 连续积分采样，采样时间为 2017 年的 1 月 10 ~ 12 日和 1 月 16 日的 06:00 ~ 20:00. 样品通过内表面经硅烷化处理的 3.2 L 苏玛罐(SUMMA canister)进行采集. 采样前，至少对采样罐重复清洗 3 次. 为保证清洁，每清洗 10 只至少应选取 1 只充高纯氮放置 24 h，作为样品进行分析，保证目标化合物未检出或低于检出限. 采样后的苏玛罐避光温室保存，且确保采样后 1 周之内进行分析.

1.2　样品分析

VOCs 样品分析由预浓缩仪(Entech 7100A，美国)-气相色谱/质谱联用仪(Agilent 7890/5975，美国)完成. 先抽取采样罐中的 300 mL 气体至预浓缩仪，再经三步预浓缩进样系统进样. 样品首先进入一级冷阱，冷冻温度为 -160℃，解吸温度 10℃. 一级冷阱解吸出的气体于 -40℃下再次浓缩于二级冷阱中，解吸温度 180℃. 之后在聚焦冷阱中冷冻样品，冷冻温度为 -170℃. 聚焦冷冻完毕后，聚焦冷阱利用加热的氮气快速升温使冷冻在毛细柱头的 VOCs 迅速气化，在氦气载气的推动下，解吸进入 GC 的毛细柱分离，随后进入检测器(GC-MSD/FID)检测. 色谱柱为 HP-PLOT/Q(30 m × 0.32 mm × 20 μm)和 DB-5MS(60 m × 0.32 mm × 1.0 μm). 升温程序为：起始 35℃，保持 3 min，以 5℃·min^{-1} 升至 120℃，然后 10℃·min^{-1} 升至 250℃，保留 20 min. 离子源为 EI，扫描方式为 SIM.

通过色谱保留时间和质谱图来鉴定目标化合物(表 1)，浓度则通过内标法计算，使用的标准样品为 PAMS 标准气体(Spectra Gases，美国). 每次进行样品分析前，先以高纯氮气进样，进行空白实验，以确保仪器系统不会带来污染；每日样品需随机选取 1 个样品进行重复实验，要求 2 次检测目标化合物浓度的 RSD≤15%，目标化合物检测限范围为 0.021 ~ 0.116 $\mu g \cdot m^{-3}$.

表 1　目标 VOCs 种类

Table 1　Target VOCs compounds

检测器	VOCs 化合物
FID[1)]	乙烷、乙烯、乙炔、丙烯、丙烷、异丁烷、正丁烷、1-丁烯、反式-2-丁烯、顺式-2-丁烯、异戊烷、正戊烷、环戊烷
MS[2)]	1-戊烯、异戊二烯、反式-2-戊烯、顺式-2-戊烯、2,2-二甲基丁烷、2,3-二甲基丁烷、2-甲基戊烷、3-甲基戊烷、1-己烯、正己烷、甲基环戊烷、2,4-二甲基戊烷、苯、环己烷、2-甲基己烷、2,3-二甲基戊烷、3-甲基己烷、2,2,4-三甲基戊烷、正庚烷、甲基环己烷、2,3,4-三甲基戊烷、甲苯、2-甲基庚烷、3-甲基庚烷、正辛烷、乙苯、间二甲苯、对二甲苯、邻二甲苯、苯乙烯、正壬烷、1,2,3-三甲基苯、1,2,4-三甲基苯、1,3,5-三甲基苯

1) FID：flame ionization detector(氢焰离子化检测器)；2) MS：mass spectrum(质谱检测器)

2　结果与讨论

2.1　晋城市环境 VOCs 浓度及组成特征

本研究共检测得到 47 种 VOCs 组分，包括烷烃 26 种、烯烃 10 种、芳香烃 10 种、炔烃 1 种. 晋城市冬季总 VOCs 浓度变化范围为 24.19 ~ 414.44 $\mu g \cdot m^{-3}$，平均质量浓度为(93.35 ± 89.10) $\mu g \cdot m^{-3}$，其中烷烃和芳香烃含量最高，分

别为(52.91 ±66.44) μg·m^{-3}和(26.29 ±25.56) μg·m^{-3}，各占总 VOCs 的 56.68% 和 28.17%；烯烃和炔烃的含量较低，分别为(9.28 ±6.83) μg·m^{-3}和(4.86 ±3.44) μg·m^{-3}，各占总 VOCs 的 9.95% 和 5.21%(图 1). 浓度较高的 VOCs 化合物包括苯、甲苯、正丁烷、异戊烷、丙烷、乙烷、正己烷、异丁烷、正戊烷等. 其中苯和甲苯的平均质量浓度最高，分别为 10.19 μg·m^{-3}和 6.97 μg·m^{-3}.

与国内其他城市相比(表 2)，晋城市冬季环境空气中总 VOCs 浓度(93.35 μg·m^{-3})高于济南(63.81 μg·m^{-3})，低于太原(137.42 μg·m^{-3})、朔州(102.93 μg·m^{-3})和广州(114.51 μg·m^{-3}). 这可能与不同城市间的能源结构、产业结构、地理条件和采样期间的气象条件存在差异有关. 其中，晋城市冬季环境空气中烷烃、炔烃的浓度在所列城市中处于较高水平. 研究表明，炔烃是燃烧源的典型排放物种[11]，在中国北方地区主要来源于生活燃煤源[12]. 晋城市冬季环境空气中高水平的炔烃浓度与冬季取暖消耗大量的煤炭相关，尤其是城区周围的老式居民区存在的分散式小锅炉取暖可能会对环境空气中的炔烃有较大贡献.

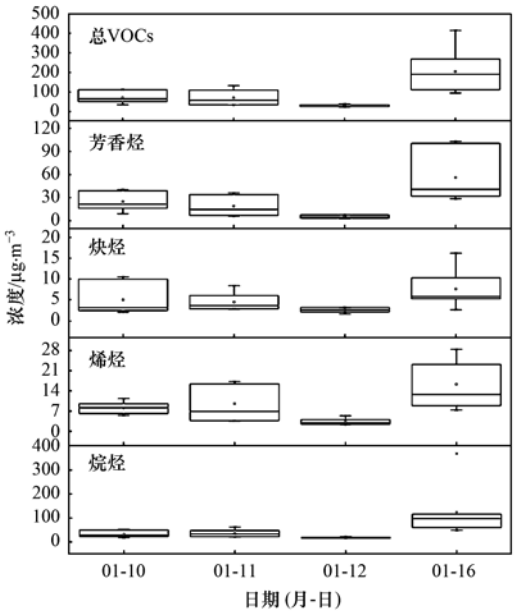

图 1 观测期间总 VOCs 与四类主要组分浓度

Fig. 1 Concentration of total VOCs and four groups of main components over observation period

表 2 晋城与国内其他城市各 VOCs 组分质量浓度/μg·m^{-3}

Table 2 Comparison of VOCs between Jincheng and other cities in China/μg·m^{-3}

组分	太原[13]	朔州[14]	广州[15]	济南[16]	晋城
烷烃	48.67	41.74	59.97	28.93	52.91
烯烃	16.07	6.53	15.18	16.35	9.28
炔烃	3.69	1.14	0.12	0.45	4.86
芳香烃	58.09	53.52	39.24	18.08	26.29
总 VOCs	137.42	102.93	114.51	63.81	93.35

2.2 VOCs 来源分析

2.2.1 特征比值分析

苯与甲苯比值(B/T)常用来判别环境空气中 VOCs 的污染来源特征[17]. B/T 接近 0.5 时，可判断 VOC 主要来自交通源[18,19]；若 B/T 值大于 0.5，VOCs 主要受燃烧源排放影响[20,21]，尤其是当 B/T 值大于 1 时，大气中 VOCs 主要来自煤燃烧[22~24]. 本研究中，B/T 比值变化范围为 0.72 ~ 3.17(图 2)，平均比值为 1.58 ±0.68，说明晋城市冬季的 VOCs 中苯和甲苯主要受燃煤源排放影响.

由于异戊烷与正戊烷具有相似的大气寿命[25]，通过异戊烷/正戊烷的比值可初步判断这两个物种的来源. 本研究异戊烷/正戊烷的变化范围为 1.17 ~2.76(图 2)，平均比值为 2.07 ±0.43，该比值处于我国隧道(2.93)与燃煤来源(0.56 ~ 0.8)之间[26]，说明异戊烷和正戊烷受到了机动车和燃煤的共同影响.

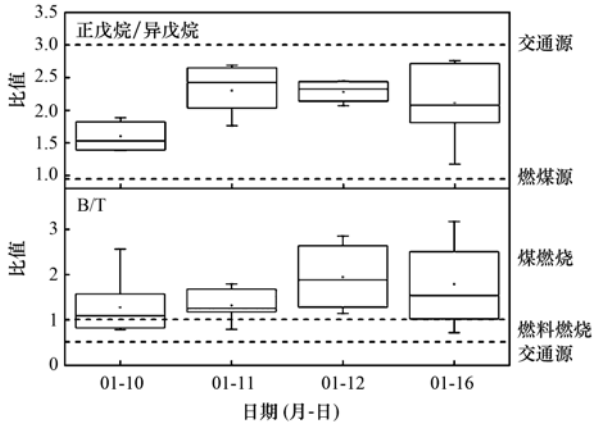

图 2 B/T 与异戊烷/正戊烷的比值

Fig. 2 Ratios of B/T and *i*-pentane/*n*-pentane

2.2.2 PMF 分析

本研究采用正定矩阵因子分析模型(positive

matrix factorization，PMF 模型）对晋城市冬季 VOCs 进行定量的源解析[27]．PMF 计算过程中的基本公式为：

$$E_{ik} = \sum_{j=1}^{p} A_{ij}B_{jk} + \varepsilon_{ik} \quad (i = 1,2, \cdots, n) \quad (1)$$

式中，E_{ik}为 k 次观测的污染物 i 的浓度；j 为因子，A_{ij}和 B_{jk}分别为污染源成分谱和污染源贡献得分；ε_{ik}为随机误差．PMF 模型主要是计算目标函数的最小值，目标函数为：

$$Q = \sum_{i=1}^{m}\sum_{k=1}^{n}\left(\frac{\varepsilon_{ik}}{\sigma_{ik}}\right)^2 \quad (2)$$

式中，σ_{ik}为 E_{ik}不确定性的标准偏差．PMF 模型运用最小二乘线性误差估计来有效地降低错误数据和丢失数据等的影响．按照标准方法要求，不确定度 U 的计算公式为：

$$U = \begin{cases} \sqrt{(E \cdot c)^2 + M^2} & (c > M) \\ \dfrac{5}{6}M & (c \leqslant M) \end{cases} \quad (3)$$

式中，E 为误差比例；M 为检测限；c 为污染物的浓度．

本研究选取较稳定 VOC 物种和特征 VOC 物种共 37 种参与 PMF 运算．多次运行分析后，使 Q 值收敛且趋向最小，Q（True）值收敛于6 989.5，Q（Robust）值收敛于6 938.9．当选取 5 个因子时，计算结果较为稳定，数据经过模型拟合效果较好，此时，多数化合物的观测值与模拟值的拟合相关性 R^2 >0.90，表明 5 个因子能较好地解释原始数据所包含的源信息．

图 3 是 PMF 解析的晋城市 VOCs 5 类排放源中化合物的贡献．因子 1 中贡献较大的物种有正己烷、乙苯、甲苯、间二甲苯、对二甲苯、邻二甲苯等物种，由于正己烷是溶剂使用源排放的特征物种，乙苯、甲苯、间二甲苯、对二甲苯、邻二甲苯等苯系物在溶剂使用（如喷涂、印刷等）过程中排放比例较大[28,29]，因子 1 可认为是溶剂使用源．因子 2 中，苯乙烯、苯、乙苯、间二甲苯、对二甲苯、邻二甲苯、甲苯、乙烯、1-丁烯等物种载荷贡献比较高，其中，苯乙烯、乙烯、1-丁烯、甲苯等物种是焦化行业排放的代表性物种[30]，乙烯、苯乙烯、乙苯、间二甲苯、对二甲苯、邻二甲苯等苯系物是工业工艺过程典型排放物种[3]，因子 2 可作为工业排放源．因子 3 中贡献最大的物种是异戊二烯，可认为是植物排放源[31~33]．乙烷、丙烷、丁烷、异丁烷、乙烯、

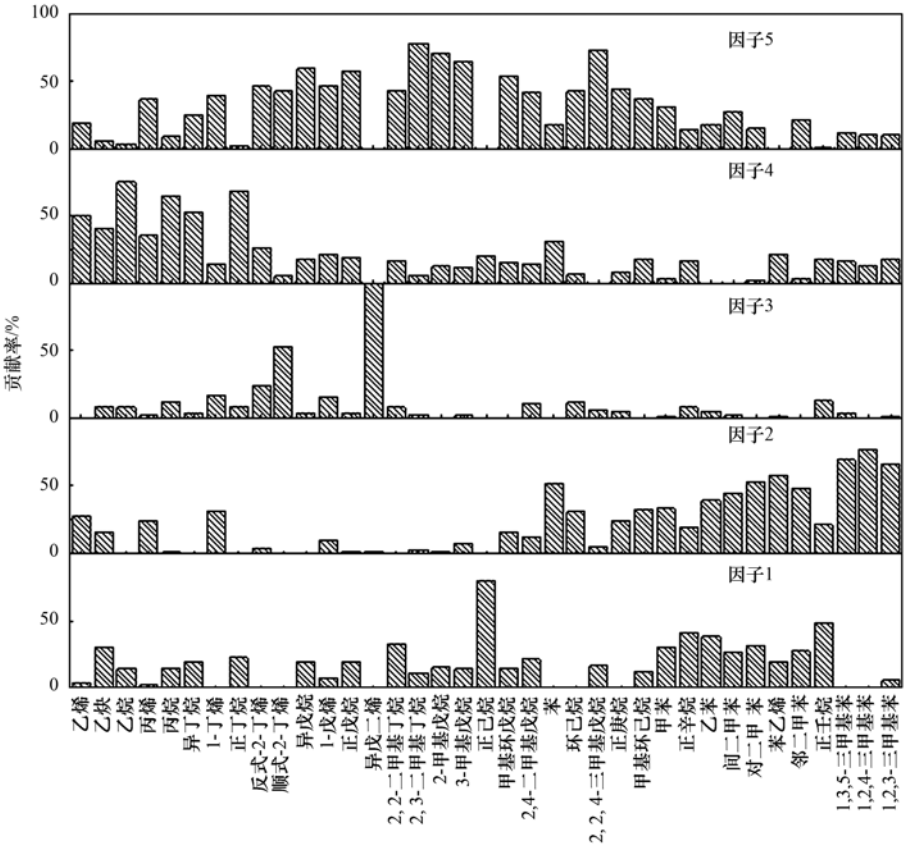

图 3　各因子中化合物的贡献

Fig. 3　Contribution of selected VOCs species to each factor

乙炔、丙烯、苯等物种在因子 4 中载荷贡献占比较大，乙炔、乙烯是化石燃料和生物质燃烧的重要指示物种[11,23]，C2 ~ C3 低碳类烷烃化合物、苯主要来源于居民燃煤[34]，故因子 4 可判断是燃烧源. 因子 5 中载荷贡献较大的物种有 2-甲基戊烷、3-甲基戊烷、2，2-二甲基丁烷、2，2，4-三甲基戊烷、异戊烷、戊烷、戊烯、丁烷、顺-二丁烯、反-二丁烯等，2-甲基戊烷、3-甲基戊烷、2，2-二甲基丁烷、C3 ~ C4 类烷烃化合物均为机动车尾气排放的主要物种，异戊烷是典型的汽油挥发示踪剂[26]，烯烃类与芳香烃类物种比例高也是我国油品的主要特点[35]. 因此，可确定因子 5 是机动车源.

经计算(图 4)，工业排放源、燃烧源和机动车源是晋城市冬季挥发性有机物的主要来源，对总 VOCs 的贡献分别为 33.71%、30.27% 和 26.28%，其次溶剂使用源和植物源分别为 9.00% 和 0.74%. 控制工业污染、燃煤燃烧和机动车排放是控制晋城市冬季 VOCs 污染的重要途径.

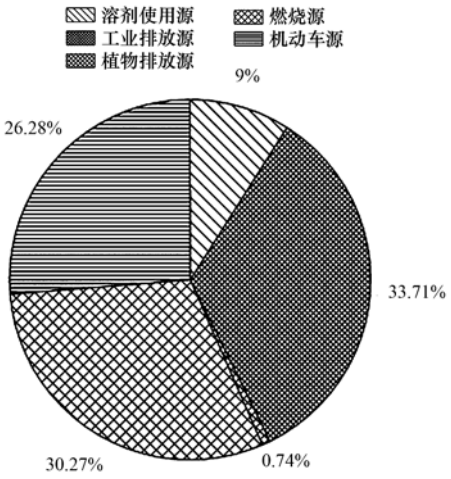

图 4 五类源对 VOCs 贡献

Fig. 4 Contributions of five sources of VOCs

2.2.3 传输路径分析

本研究选用 HYSPLIT-4(拉格朗日混合单粒子轨道模型，hybrid single particle lagrangian integrated trajectory)后向轨迹模型对观测期间晋城市大气气团的后向轨迹进行聚类分析[36,37]，分析不同区域排放的 VOCs 的来源、输送、扩散轨迹以研究风及大气扩散等引起的区域传输对晋城市大气 VOCs 的影响，尤其是反应活性较低的 VOCs 种类. 以晋城市(35°30′16.64″N，112°51′3.10″E)为模拟点，选用 NCEP/NCAR Reanalysis 为基础气象资料(空间分辨率 1° × 1°)，反演时间为 24 h. 由结果可知(图 5)，采样期间晋城市大气以西北方气团为主，聚类后气团的轨迹数占总轨迹数的比例分别为 50%、25% 和 25%. 晋城市西北方向气团主要经过山西省的介休市、孝义市、临汾市等地区. 气团经过的地区工业发达，是我国焦化主产区，工业过程产生的大量污染物经过气团传输可能会对晋城市 VOCs 产生影响.

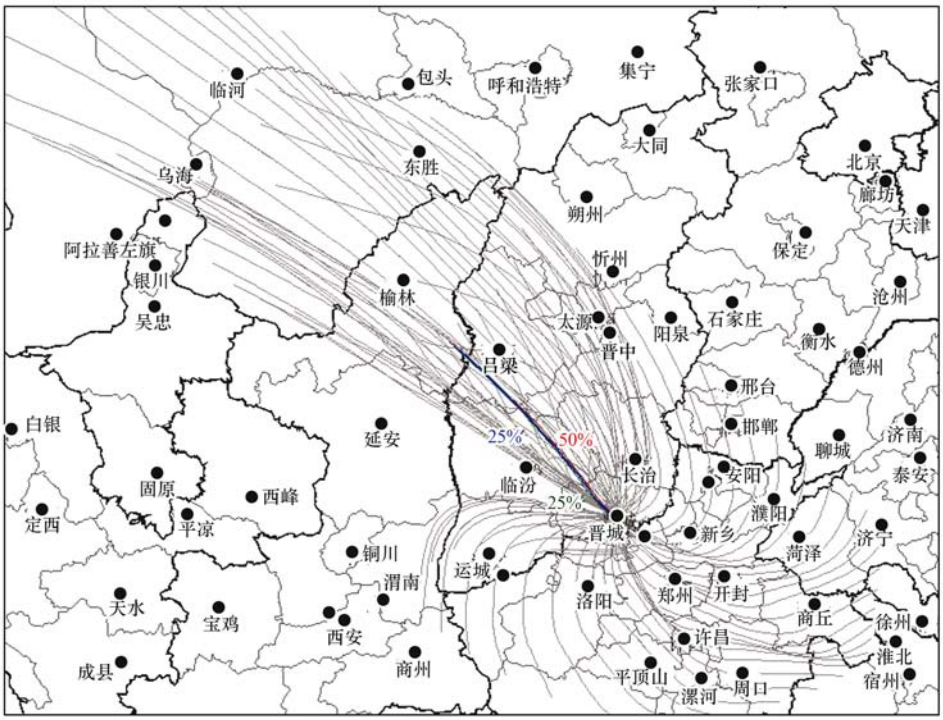

图 5 观测期间气团后向轨迹聚类分析

Fig. 5 Clustered analysis of the backward trajectory of air masses over the observation period

2.3　不同环境空气质量状况下 VOCs 变化情况及来源

针对不同风速下环境空气质量状况、VOCs 的浓度及来源变化进行研究结果表明(图 6)，空气质量指数 AQI(air quality index)与机动车源对环境空气中 VOCs 的贡献呈一定正相关关系，即当 AQI 较高时机动车源对环境空气中 VOCs 的贡献较高. 风速为 0 ~ 2.9 $m \cdot s^{-1}$ 时，总 VOCs 浓度为 162.48 $\mu g \cdot m^{-3}$，AQI 高达 143，机动车源贡献率为 46.16%；当风速增大至 3 ~ 6.9 $m \cdot s^{-1}$，VOCs 下降至 35.72 $\mu g \cdot m^{-3}$，AQI 为 60，机动车源贡献率为 16.15%. 尤其是 1 月 16 日发生了中度污染，AQI 达到 171，机动车对 VOCs 的贡献高达 47.75%，远高于平均值 26.28%. 这是由于采样点位于城市中心，当出现静稳天气时污染物扩散受到限制，环境空气中的污染物会发生累积，导致 AQI 值升高，机动车排放的尾气会对城市中心包括 VOCs 在内的污染物产生主要影响；而较高的风速则会加速空气流动，各源混合均匀，机动车对 VOCs 的贡献值较为稳定.

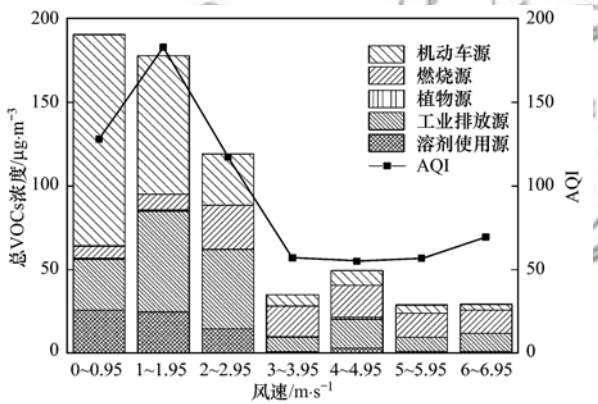

图 6　观测期间不同风速时总 VOCs 浓度、AQI 及 5 类源贡献率的变化情况

Fig. 6　Variations in total VOC concentrations, AQI, and 5 groups of sources at different wind speeds during the observation period

2.4　环境空气中 VOCs 的环境效应

2.4.1　臭氧生成潜势研究

臭氧生成潜势(OFP)一般被用来综合衡量理想条件下 VOC 物种通过化学反应产生 O_3 的能力，其大小主要取决于环境空气中 VOC 物种的浓度及物种的最大增量反应活性(MIR)，计算公式为：

$$OFP_i = [VOCs_i] \times MIR_i \quad (4)$$

式中，OFP_i 指第 i 个 VOC 物种的臭氧生产潜势($\mu g \cdot m^{-3}$)；MIR_i 指第 i 个 VOC 物种的最大增量反应活性系数，以 O_3/VOCs 计($g \cdot g^{-1}$)，可在文献[38]中查出. 烷烃、烯烃、芳香烃和炔烃对晋城市冬季空气中 VOCs 的臭氧生成潜势分别为 62.92、98.87、98.89 和 4.62 $\mu g \cdot m^{-3}$，分别占总 OFP 的比例为 23.72%、37.26%、37.28% 和 1.74%. 丙烯、甲苯、乙烯、间二甲苯、1-丁烯、顺式-2-丁烯、邻二甲苯、异戊烷、1,2,4-三甲基苯、对二甲苯等化合物是臭氧生成潜势较高的 VOCs 物种(图 7). 可见，芳香烃和烯烃类化合物对晋城市环境空气中 O_3 影响较大，虽然部分烷烃类化合物的浓度水平较高，但由于烷烃的光化学反应活性较低，其生成臭氧的能力也相对较弱. 因此，控制芳香烃和烯烃类物种的排放对改善晋城市 O_3 污染至关重要.

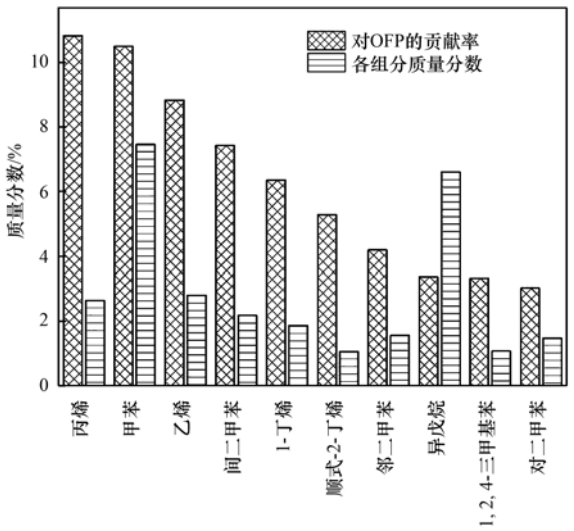

图 7　观测期间环境空气中对 OFP 贡献最大的前 10 种 VOCs 物种

Fig. 7　Species of VOCs, with top 10 contributors to OFP

2.4.2　二次有机气溶胶生成潜势研究

为了解 VOCs 对环境空气中 SOA 的影响，本研究采用气溶胶生成系数法(FAC 法)[38, 39]对晋城市环境空气中 VOCs 的二次有机气溶胶生成潜势进行估算，计算公式如下：

$$VOCs_t = VOCs_0 \times (1 - F_{VOCr}) \quad (5)$$

$$SOA_P = VOCs_0 \times FAC \quad (6)$$

式中，$VOCs_t$ 指经过氧化后的 VOC 物种浓度，本研究指环境空气中 VOC 物种浓度($\mu g \cdot m^{-3}$)；$VOCs_0$ 指氧化前 VOC 物种的初始浓度($\mu g \cdot m^{-3}$)；F_{VOCr} 指 VOC 物种中参与反应的分数(%)；FAC 指 SOA 的生成系数(%)；SOA_P 指 SOA 的生成潜势($\mu g \cdot m^{-3}$)；其中 F_{VOCr} 与 FAC 由烟雾箱实验获得[39, 40]. 计算结果显示，总 VOCs 的 SOA 生成潜势为 1.25 $\mu g \cdot m^{-3}$，其中，烷烃和芳香烃的 SOA 生成潜势分别为 0.33 $\mu g \cdot m^{-3}$ 和 1.21 $\mu g \cdot m^{-3}$，占总

VOCs 的 SOA 生成潜势比例分别为 2.66% 和 97.01%，是 SOA 生成潜势最主要的组成部分. 甲苯、苯、间二甲苯、对二甲苯、乙苯、邻二甲苯、1,2,4-三甲基苯、1,2,3-三甲基苯、1,3,5-三甲基苯、甲基环己烷等化合物是 SOA 生成潜势较高的 VOCs 物种(图8). 由此可见，控制芳香烃类物种排放不但可改善晋城市臭氧污染，还对控制晋城市霾污染也有一定作用.

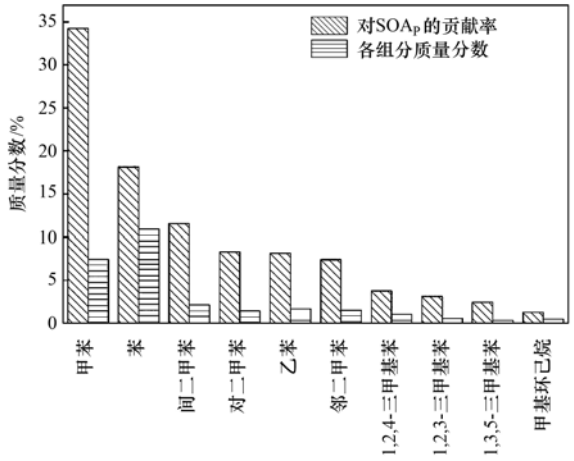

图 8 观测期间环境空气中对 SOA_P 贡献最大的前 10 种 VOCs 物种

Fig. 8 Species of VOCs, with top 10 contributors to the SOA_P

3 结论

(1)观测期间，晋城市冬季 VOCs 的总体平均浓度为 93.35 μg·m^{-3}，其中含量最高的化合物为烷烃和芳香烃分别为 52.91 μg·m^{-3}和 26.29 μg·m^{-3}. 苯 10.19 μg·m^{-3}、甲苯 6.97 μg·m^{-3}等芳香烃类物种是 VOCs 的主要物种.

(2)晋城市环境 VOCs 排放源主要有工业排放源、燃烧源、机动车源、溶剂使用源和植物源，贡献率分别为 33.71%、30.27%、26.28%、9.00% 和 0.74%；特征比值苯/甲苯为 1.58 ± 0.68，来源在燃煤源范围内，异戊烷/正戊烷为 2.07 ± 0.43，其来源介于道路来源和燃煤来源之间. 晋城市冬季环境空气中 VOCs 主要来源为：工业排放、机动车排放和燃烧排放等.

(3)较小风速和西北方向气团输送均会使晋城市 VOCs 浓度增高，并对 AQI 和各源贡献率产生影响. 风速 <3 m·s^{-1}时，总 VOCs 浓度、AQI 和机动车源贡献率可达 162.48 μg·m^{-3}、143 和 46.16%. 风速增大，各值均下降至较低水平.

(4)芳香烃类化合物的 OFP 和 SOA_P 分别为 98.89 μg·m^{-3}和 1.21 μg·m^{-3}，占二种总生成潜势的 37.28% 和 97.01%，是 OFP 和 SOA_P 最高的 VOCs 类化合物，控制芳香烃类物种排放可改善晋城市臭氧和霾等大气复合污染.

(5)控制工业、机动车和燃烧排放等措施是目前控制晋城市环境空气中 VOCs 污染的主要途径.

参考文献：

[1] 刘丹，解强，张鑫，等. 北京冬季雾霾频发期 VOCs 源解析及健康风险评价[J]. 环境科学，2016，**37**(10)：3693-3701.
Liu D, Xie Q, Zhang X, *et al*. Source apportionment and health risk assessment of VOCs during the haze period in the winter in Beijing[J]. Environmental Science, 2016, **37**(10): 3693-3701.

[2] Gee I L, Sollars C J. Ambient air levels of volatile organic compounds in Latin American and Asian cities [J]. Chemosphere, 1998, **36**(11): 2497-2506.

[3] 王铁宇，李奇锋，吕永龙. 我国 VOCs 的排放特征及控制对策研究[J]. 环境科学，2013，**34**(12)：4756-4763.
Wang T Y, Li Q F, Lü Y L. Characteristics and countermeasures of volatile organic compounds (VOCs) emission in China[J]. Environmental Science, 2013, **34**(12): 4756-4763.

[4] 王伯光，张远航，邵敏. 珠江三角洲大气环境 VOCs 的时空分布特征[J]. 环境科学，2004，**25**(S1)：7-15.
Wang B G, Zhang Y H, Shao M. Special and temporal distribution character of VOCs in the ambient air of Peal River Delta region[J]. Environmental Science, 2004, **25**(S1): 7-15.

[5] 吴方堃，王跃思，安俊琳，等. 北京奥运时段 VOCs 浓度变化、臭氧产生潜势及来源分析研究[J]. 环境科学，2010，**31**(1)：10-16.
Wu F K, Wang Y S, An J L, *et al*. Study on concentration, ozone production potential and sources of VOCs in the atmosphere of Beijing during Olympics period[J]. Environmental Science, 2010, **31**(1): 10-16.

[6] 王倩，陈长虹，王红丽，等. 上海市秋季大气 VOCs 对二次有机气溶胶的生成贡献及来源研究[J]. 环境科学，2013，**34**(2)：424-433.
Wang Q, Chen C H, Wang H L, *et al*. Forming potential of secondary organic aerosols and sources apportionment of VOCs in autumn of Shanghai, China[J]. Environmental Science, 2013, **34**(2): 424-433.

[7] 全国城市空气质量实时发布平台[EB/OL]. http://106.37.208.233:20035, 2018-01-01.

[8] Huang C, Chen C H, Li L, *et al*. The study of emission inventory on anthropogenic air pollutants and VOC species in the Yangtze River Delta region, China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2011, **11**(1): 951-983.

[9] 孙杰，王跃思，吴方堃，等. 唐山市和北京市夏秋季节大气 VOCs 组成及浓度变化[J]. 环境科学，2010，**31**(7)：1438-1443.
Sun J, Wang Y S, Wu F K, *et al*. Concentration and change of VOCs in summer and autumn in Tangshan[J]. Environmental Science, 2010, **31**(7): 1438-1443.

[10] 周裕敏，郝郑平，王海林. 北京城乡结合地空气中挥发性有机物健康风险评价[J]. 环境科学，2011，**32**(12)：3566-3570.
Zhou Y M, Hao Z P, Wang H L. Health risk assessment of

atmospheric volatile organic compounds in urban-rural juncture belt area[J]. Environmental Science, 2011, **32**(12): 3566-3570.

[11] Kim E, Hopke P K, Edgerton E S. Source identification of Atlanta aerosol by positive matrix factorization[J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2003, **53**(6): 731-739.

[12] 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.

[13] 温彦平, 闫雨龙, 李丽娟, 等. 太原市夏季挥发性有机物污染特征及来源分析[J]. 太原理工大学学报, 2016, **47**(3): 331-336.
Wen Y P, Yan Y L, Li L J, *et al*. Pollution characteristic and source analysis of volatile organic compounds in summer in Taiyuan[J]. Journal of Taiyuan University of Technology, 2016, **47**(3): 331-336.

[14] 李丽娟. 朔州市城区大气挥发性有机物的特征研究及来源分析[D]. 太原: 太原理工大学, 2015.
Li L J. A preliminary study on characteristics and source of volatile organic compounds in the urban area of Shuozhou[D]. Taiyuan: Taiyuan University of Technology, 2015.

[15] 李雷, 李红, 王学中, 等. 广州市中心城区环境空气中挥发性有机物的污染特征与健康风险评价[J]. 环境科学, 2013, **34**(12): 4558-4564.
Li L, Li H, Wang X Z, *et al*. Pollution characteristics and health risk assessment of atmospheric VOCs in the downtown area of Guangzhou, China[J]. Environmental Science, 2013, **34**(12): 4558-4564.

[16] 李娜. 济南市环境空气中 VOCs 组分特征及转化规律研究[D]. 济南: 山东建筑大学, 2014.

[17] Tang J H, Chan L Y, Chan C Y, *et al*. Characteristics and diurnal variations of NMHCs at urban, suburban, and rural sites in the Pearl River Delta and a remote site in South China[J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(38): 8620-8632.

[18] Perry R, Gee I L. Vehicle emissions in relation to fuel composition[J]. Science of the Total Environment, 1995, **169**(1-3): 149-156.

[19] Scheff P A, Wadden R A. Receptor modeling of volatile organic compounds. 1. Emission inventory and validation [J]. Environmental Science & Technology, 1993, **27**(4): 617-625.

[20] Andreae M O, Merlet P. Emission of trace gases and aerosols from biomass burning[J]. Global Biogeochemical Cycles, 2001, **15**(4): 955-966.

[21] Brocco D, Fratarcangeli R, Lepore L, *et al*. Determination of aromatic hydrocarbons in urban air of Rome[J]. Atmospheric Environment, 1997, **31**(4): 557-566.

[22] dos Santos C Y M, de Almeida Azevedo D, de Aquino Neto F R. Atmospheric distribution of organic compounds from urban areas near a coal-fired power station[J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(9): 1247-1257.

[23] Barletta B, Meinardi S, Rowland F S, *et al*. Volatile organic compounds in 43 Chinese cities[J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(32): 5979-5990.

[24] Liu Y, Shao M, Zhang J, *et al*. Distributions and source apportionment of ambient volatile organic compounds in Beijing city, China[J]. Journal of Environmental Science and Health, Part A: Toxic/hazardous Substances and Environmental Engineering, 2005, **40**(10): 1843-1860.

[25] Jobson B T, Parrish D D, Goldan P, *et al*. Spatial and temporal variability of nonmethane hydrocarbon mixing ratios and their relation to photochemical lifetime[J]. Journal of Geophysical Research, 1998, **103**(D11): 13557-13567.

[26] Liu Y, Shao M, Fu L L, *et al*. Source profiles of volatile organic compounds (VOCs) measured in China: Part I[J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(25): 6247-6260.

[27] Norris G, Vedantham R. EPA positive matrix factorization (PMF) 3.0 fundamentals and user guide[R]. USA: EPA, 2008.

[28] 魏巍, 王书肖, 郝吉明. 中国涂料应用过程挥发性有机物的排放计算及未来发展趋势预测[J]. 环境科学, 2009, **30**(10): 2809-2815.
Wei W, Wang S X, Hao J M. Estimation and forecast of volatile organic compounds emitted from paint uses in China[J]. Environmental Science, 2009, **30**(10): 2809-2815.

[29] Yuan B, Shao M, Lu S H, *et al*. Source profiles of volatile organic compounds associated with solvent use in Beijing, China[J]. Atmospheric Environment, 2010, **44**(15): 1919-1926.

[30] Yan Y L, Yang C, Peng L, *et al*. Emission characteristics of volatile organic compounds from coal-, coal gangue-, and biomass-fired power plants in China[J]. Atmospheric Environment, 2016, **143**: 261-269.

[31] 王志辉, 张树宇, 陆思华, 等. 北京地区植物 VOCs 排放速率的测定[J]. 环境科学, 2003, **24**(2): 7-12.
Wang Z H, Zhang S Y, Lu S H, *et al*. Screenings of 23 plant species in Beijing for volatile organic compound emissions[J]. Environmental Science, 2003, **24**(2): 7-12.

[32] 谢军飞, 李延明. 植物源挥发性有机化合物排放清单的研究进展[J]. 环境科学, 2013, **34**(12): 4779-4786.
Xie J F, Li Y M. Research advances on volatile organic compounds emission inventory of plants[J]. Environmental Science, 2013, **34**(12): 4779-4786.

[33] Guenther A, Geron C, Pierce T, *et al*. Natural emissions of non-methane volatile organic compounds, carbon monoxide, and oxides of nitrogen from North America[J]. Atmospheric Environment, 2000, **34**(12-14): 2205-2230.

[34] 张玉欣, 安俊琳, 林旭, 等. 南京北郊冬季挥发性有机物来源解析及苯系物健康评估[J]. 环境科学, 2017, **38**(1): 1-12.
Zhang Y X, An J L, Lin X, *et al*. Source apportionment of volatile organic compounds and health assessment of benzene series in northern suburb of Nanjing in winter[J]. Environmental Science, 2017, **38**(1): 1-12.

[35] Jorquera H, Rappenglück B. Receptor modeling of ambient VOC at Santiago, Chile[J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(25): 4243-4263.

[36] Draxler R R, Hess G D. An overview of the HYSPLIT-4 modelling system for trajectories, dispersion and deposition[J]. Australian Meteorological Magazine, 1998, **47**(4): 295-308.

[37] Yu S C, Mathur R, Kang D W, *et al*. A study of the ozone

formation by ensemble back trajectory-process analysis using the Eta-CMAQ forecast model over the northeastern U. S. during the 2004 ICARTT period[J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(2): 355-363.

[38] Carter W P L. Development of ozone reactivity scales for volatile organic compounds[J]. Air & Waste, 1994, **44**(7): 881-899.

[39] Grosjean D. *In situ* organic aerosol formation during a smog episode: Estimated production and chemical functionality[J]. Atmospheric Environment, 1992, **26**(6): 953-963.

[40] Grosjean D, Seinfeld J H. Parameterization of the formation potential of secondary organic aerosols [J]. Atmospheric Environment, 1989, **23**(8): 1733-1747.

《环境科学》征稿简则

1. 来稿报道成果要有创新性,论点明确,文字精炼,数据可靠. 全文不超过8 000字(含图、表、中英文摘要及参考文献). 国家自然科学基金项目、国家科技攻关项目、国际合作项目或其它项目请在来稿中注明(在首页以脚注表示). 作者投稿时请先登陆我刊网站(www. hjkx. ac. cn)进行注册,注册完毕后以作者身份登录,按照页面给出的提示信息投稿即可.

2. 稿件请按 GB 7713-87《科学技术报告、学位论文和学术论文的编写格式》中学术论文的规范撰写. 论文各部分的排列顺序为:题目;作者姓名;作者工作单位、地址、邮政编码;中文摘要;关键词;中图分类号;英文题目;作者姓名及单位的英译名;英文摘要;关键词;正文;致谢;参考文献.

3. 论文题目应简练并准确反映论文内容,一般不超过 20 字,少用副标题.

4. 中文摘要不少于 300 字,以第三人称写. 摘要内容包括研究工作的目的、方法、结果(包括主要数据)和结论,重点是结果和结论. 英文摘要与中文对应,注意人称、时态和语言习惯,以便准确表达内容.

5. 前言包括国内外前人相关工作(引文即可)和本工作的目的、特点和意义等. 科普知识不必赘述.

6. 文中图表应力求精简,同一内容不得用图表重复表达,要有中英文对照题目. 图应大小一致,曲线粗于图框,图中所有字母、文字字号大小要统一. 表用三线表. 图表中术语、符号、单位等应与正文一致.

7. 计量单位使用《中华人民共和国法定计量单位》(SI). 论文中物理计量单位用字母符号表示,如 mg(毫克),m(米),h(小时)等. 科技名词术语用国内通用写法,作者译的新名词术语,文中第一次出现时需注明原文.

8. 文中各级标题采用 1,1. 1,1. 1. 1 的形式,左起顶格书写, 3 级以下标题可用(1),(2)……表示,后缩 2 格书写.

9. 文中外文字母、符号应标明其大小写,正斜体. 生物的拉丁学名为斜体. 缩略语首次出现时应给出中文全称,括号内给出英文全称和缩略语.

10. 未公开发表资料不列入参考文献,可在出现页以脚注表示. 文献按文中出现的先后次序编排. 常见文献书写格式为:

期刊:作者(外文也要姓列名前). 论文名[J]. 期刊名,年,卷(期):起页-止页.

图书:作者. 书名[M]. 出版地:出版社,年. 起页-止页.

会议文集:作者. 论文名[A]. 见(In):编者. 文集名[C]. 出版地:出版社(单位),年. 起页-止页.

学位论文:作者. 论文名[D]. 保存地:保存单位,年份.

报告:作者. 论文名[R]. 出版地:出版单位,出版年.

专利:专利所有者. 专利题名[P]. 专利国别:专利号,出版日期.

11. 来稿文责自负,切勿一稿多投. 编辑对来稿可作文字上和编辑技术上的修改和删节. 在 3 个月内未收到本刊选用通知,可来电询问.

12. 投稿请附作者单位详细地址,邮编,电话号码,电子邮箱等. 编辑部邮政地址:北京市 2871 信箱;邮编:100085;电话:010-62941102,010-62849343;传真:010-62849343;E-mail:hjkx@ rcees. ac. cn;网址:www. hjkx. ac. cn

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 39 No. 9

Sep. 15, 2018

CONTENTS

Emission Inventory and Prediction of Non-road Machineries in the Yangtze River Delta Region, China ····· HUANG Cheng, AN Jing-yu, LU Jun (3965)

Vehicle Exhaust Emission Characteristics and Their Contributions in Jiangsu Province ····· LI Li, ZHANG Jie, ZHAO Qiu-yue, *et al.* (3976)

Historical Trends of Atmospheric Pb and Hg Emissions from Fossil Fuel Combustion in Shanghai ····· YANG Jing, CHEN Long, LIU Min, *et al.* (3987)

Emission Inventory of Atmospheric Pollutants and VOC Species from Crop Residue Burning in Guangdong Province ····· SUN Xi-bo, LIAO Cheng-hao, ZENG Wu-tao, *et al.* (3995)

Mass Concentrations and Size Distributions of Water-soluble Inorganic Ions in Atmospheric Aerosols in Beibei District, Chongqing ····· LI Yan-pei, HAO Qing-ju, WEN Tian-xue, *et al.* (4002)

Analysis of Seasonal Variations in Chemical Characteristics and Sources of $PM_{2.5}$ During Summer and Winter in Ji'nan City ····· LIU Xiao-di, MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, *et al.* (4014)

$PM_{2.5}$ Pollution Characterization and Cause Analysis of a Winter Heavy Pollution Event, Liaocheng City ····· ZHANG Jing-qiao, WU Ya-jun, ZHANG Meng, *et al.* (4026)

Concentrations, Sources, and Dry Deposition Fluxes of Different Forms of Phosphorus in Qingdao Aerosols in Summer ····· WANG Nan, MA Miao, SHI Jin-hui, *et al.* (4034)

Characteristics and Source Apportionment of Ambient Volatile Organic Compounds in Winter in Jincheng ····· YANG Fan, YAN Yu-long, GE Yun-fei, *et al.* (4042)

Enrichment Levels and Comprehensive Pollution Assessment of Dust Heavy Metals in Winter in Beijing ····· XIONG Qiu-lin, ZHAO Wen-ji, LI Da-jun, *et al.* (4051)

Characteristics of Atmospheric BTX near a Main Road in Hefei City ····· MENG Fan-hao, QIN Min, LIANG Shuai-xi, *et al.* (4060)

Ozone Generation Potential and Highly Contributing Substances of NMOCs from Landfill Working Face ····· LI Hao, LIU Yan-jun, CHEN Tan, *et al.* (4070)

Emission Characteristics of Wind-Eroded Dust from Concrete Batching Plants in Beijing ····· LI Bei-bei, HAN Kai-li, QIN Jian-ping, *et al.* (4078)

Seasonal Variation Characteristics of Pollution Risk in a Riverside Source Area Based on Source Apportionment ····· GAO Xiang, ZUO Rui, GUO Xue-ru, *et al.* (4086)

Evaluation of Effect of Urban Non-point Source Pollution Control on Porous Asphalt-Bio-retention Combined Roads ····· GONG Man-li, ZUO Jun-jie, REN Xin-xin, *et al.* (4096)

Composition, Spatial Distribution Characteristics and Source Analysis of Chromophoric Dissolved Organic Matter in the Lanzhou Reach of the Yellow River ····· ZHAO Xia-ting, LI Shan, WANG Zhao-wei, *et al.* (4105)

Characterization of Dissolved Organic Matter Fractions in the Ning-Meng Section of the Yellow River and Relationship with Metal Ions ····· XI Yue, WANG Ting, NI Jin-ren, *et al.* (4114)

Comparative Characteristics of Optical Absorption in Waters from Yiluo River and Huntai River in Spring ····· LI Liu-yang, SHAO Tian-tian, ZHANG Xin, *et al.* (4122)

Seasonal Variations in River Water Chemical Weathering and Its Influence Factors in the Malian River Basin ····· WANG Yu-shan, HAN Shuang-bao, DENG Qi-jun, *et al.* (4132)

Characteristics and Genesis of NO_3 Type Water in Shallow Groundwater in Liujiang Basin ····· XU Jin, HE Jiang-tao, PENG Cong, *et al.* (4142)

Development and Evaluation of a Sustainable Long-release Carbon Material Applied for In-Situ Remediation of Groundwater Nitrogen Pollution ····· ZHANG Wen, YIN Lin, ZHOU Nian-qing (4150)

Phosphorus Forms and Distribution Characteristics in the Sediment and Soil of the Water-Level-fluctuating Zone in the Main Stream of the Three Gorges Reservoir ····· ZHANG Zhi-yong, WAN Cheng-yan, HU Hong-qing, *et al.* (4161)

Distribution Characteristics and Release Fluxes of Phosphorus Forms in Xiangxi Bay Sediments in the Three Gorges Reservoir Before and After Impoundment ····· LIU Xin-yuan, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, *et al.* (4169)

Effect of Zirconium-modified Zeolite Addition on Phosphorus Release and Immobilization in Heavily Polluted River Sediment ····· HE Si-qi, ZHANG Wei, LIN Jian-wei, *et al.* (4179)

Impact of Human Activities on Net Anthropogenic Nitrogen Inputs (NANI) at Township Scale in Erhai Lake Basin ····· LI Ying, LIU Hong-bin, LEI Qiu-liang, *et al.* (4189)

Simulation of Inorganic Nitrogen Fluxes at the Sediment-water Interface in a Typical Intertidal Zone, Eastern China ····· NIE Jia-qin, WANG Dong-qi, CHEN Jie, *et al.* (4199)

Effects of Aquaculture on Ammonia-oxidizing Prokaryotes in Sediments of Eastern Lake Taihu ····· CHU Yu, HE Xiao-wei, ZENG Jin, *et al.* (4206)

Transformation of Ammonia in Wetland Sediments for Treatment of Mining Wastewater ····· WANG Hai-bo, MA Ding, YUE Zheng-bo, *et al.* (4215)

Distribution Characteristics of Sulfonamide Antibiotic Resistance Genes in a Drinking Water Source in East China ····· HU Ya-ru, JIANG Lei, ZHANG Tian-yang, *et al.* (4222)

Distribution Characteristics of Sulfonamides and Sulfamethoxazole-Resistant Bacteria in Tannery Wastewater Treatment Processes ····· HUA Li, LI Lu, YANG Chun-yan (4229)

Effects of Different Substrates and Particle Sizes on Wastewater Purification ····· ZHAO Lin-li, SHAO Xue-xin, WU Ming, *et al.* (4236)

Substrate Flow by Different Biochemical Activities in the Urban Sewage Network ····· YAO Xiang-yi, SHI Xuan, SANG Lang-tao, *et al.* (4242)

Reducing Membrane Fouling from Micro-Flocculation in a Humic Acid Ultrafiltration Process ····· WANG Xu-dong, SHI Cai-xia, LIAO Zheng-wei, *et al.* (4249)

Enhanced Degradation of Aniline by PS Oxidation in the Presence of UV and Ferric Oxalate ····· HAN Dong-hui, LI Ying, LI Kai-ming, *et al.* (4257)

Behavior and Degradation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Coking Wastewater of A/O^2 and A/O/H/O Processes ····· WU Hai-zhen, SUN Sheng-li, LIU Guo-xin, *et al.* (4265)

Effects of Long-term Side Stream Extracton on Phosphorus Removal and Recovery Performance of EBPR System ····· YU Xiao-jun, LI Jie, ZHOU Meng, *et al.* (4274)

Effect of NaCl Salinity on Extracellular Polymeric Substances and Bioflocculation of Anoxic Sludge in A^2/O Process ····· ZHANG Lan-he, TIAN Rui, GUO Jing-bo, *et al.* (4281)

Effect of Temperature and pH on Nitrogen Conversion in Feammox Process ····· CHEN Fang-min, JIN Run, YUAN Yan, *et al.* (4289)

Inhibitory Kinetics of Free Ammonia (FA) on Ammonia-oxidizing Bacteria (AOB) ····· SUN Hong-wei, YU Xue, GAO Yu-xue, *et al.* (4294)

Effect of HRT on Nitrogen Removal Using ANAMMOX and Heterotrophic Denitrification ····· AN Fang-jiao, ZHAO Zhi-chao, HUANG Li, *et al.* (4302)

Reactivation Performance of Nitrosation Flocculent Sludge After Long-term Storage ····· LI Tian, WEI Fan-kai, WANG Yu-chang, *et al.* (4310)

Analysis of Characteristics and Sources of Heavy Metals in Farmland Soils in the Xijiang River Draining of Guangxi ····· SONG Bo, ZHANG Yun-xia, PANG Rui, *et al.* (4317)

Soil Organic Carbon of Purple Soil as Affected by Different Application of Biochar ····· LUO Mei, TIAN Dong, GAO Ming, *et al.* (4327)

Effects of Straw and Biochar Addition on Soil Carbon Balance and Ecological Benefits in a Rape-maize Rotation Planting System ····· LI Jiao, TIAN Dong, HUANG Rong, *et al.* (4338)

Potential to Ensure Safe Production from Rice Fields Polluted with Heavy Cadmium by Combining a Rice Variety with Low Cadmium Accumulation, Humic Acid, and Sepiolite ····· XIE Xiao-mei, FANG Zhi-ping, LIAO Min, *et al.* (4348)

Interactive Effects of Ozone and Drought on Antioxidant Enzyme Activities of Poplar Leaves ····· ZHOU Hui-min, LI Pin, GAO Feng, *et al.* (4359)

Effects of Different Levels of Irrigation with Reclaimed Water on Soil Enzyme Activity and Distribution of Thermotolerant Coliforms ····· HAN Yang, LI Ping, QI Xue-bin, *et al.* (4366)

Characteristics of Heavy Metals in Chicken Manure Organic Fertilizers in the Huang-Huai-Hai Region and related Environmental Risk Assessment ····· LI Fa, XU Ying-ming, WANG Lin, *et al.* (4375)

Heavy Metal Content of Rural Living Solid Waste and Related Source and Distribution Analysis ····· JIN Qi, GAO Hong, YUE Bo, *et al.* (4385)