

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.4

第40卷 第4期

目次

南京江北新区大气单颗粒来源解析及混合状态	于兴娜, 时政, 马佳, 李梅, 龚克坚 (1521)
西安市 PM _{2.5} 中碳质气溶胶污染特征	牟臻, 陈庆彩, 王羽琴, 沈振兴, 华晓羽, 张梓萌, 孙浩堯, 王玛敏, 张立欣 (1529)
太原市冬季 PM _{2.5} 化学组分特征与来源解析	刘素, 马彤, 杨艳, 高健, 彭林, 曹力媛, 逢妮妮, 张浩杰 (1537)
郑州市大气细颗粒物中水溶性离子季节性变化特征及其源解析	闫广轩, 张靖雯, 雷豪杰, 黄海燕, 唐明双, 曹治国, 李云蓓, 樊静, 王跃思, 李怀刚 (1545)
珠海市郊区大气 PM _{2.5} 中元素特征及重金属健康风险评价	杨毅红, 贾燕, 卞国建, 于晓巍, 钟昌琴, 全鼎余 (1553)
一次沙尘事件对沿海及海洋大气气溶胶中金属粒径分布的影响	金同俊, 祁建华, 郝梓延, 林学辉 (1562)
基于 SOA 转化机制的沧州市重点企业秋冬季大气污染模拟	高爽, 伯鑫, 马岩, 雷团团, 王刚, 李时蓓, 陆朝阳, 毛娜, 郝明亮, 黄向峰 (1575)
京津冀大气污染变化规律及其与植被指数相关性分析	孙爽, 李令军, 赵文吉, 齐梦溪, 田欣, 李珊珊 (1585)
2015~2017年北京及近周边平房燃煤散烧及其污染排放遥感测算	赵文慧, 李令军, 鹿海峰, 姜磊, 张立坤, 王新辉, 邱昀 (1594)
基于地基遥感的杭州地区气溶胶光学特性	齐冰, 车慧正, 徐婷婷, 杜荣光, 胡德云, 梁卓然, 马千里, 姚杰 (1604)
四川省人为源挥发性有机物组分清单及其臭氧生成潜势	周子航, 邓也, 谭钦文, 吴柯颖, 宋丹林, 黄凤霞, 周小玲 (1613)
餐饮源挥发性有机物组成及排放特征	高雅琴, 王红丽, 许睿哲, 景盛翱, 刘跃辉, 彭亚荣 (1627)
广州番禺大气成分站一次典型光化学污染过程 PAN 和 O ₃ 分析	邹宇, 邓雪娇, 李菲, 殷长泰 (1634)
北京市典型道路扬尘化学组分特征及年际变化	胡月琪, 李萌, 颜旭, 张超 (1645)
南昌市扬尘 PM _{2.5} 中多环芳烃的来源解析及健康风险评价	于瑞莲, 郑权, 刘贤荣, 王珊珊, 赵莉斯, 胡恭任 (1656)
道路扬尘排放因子建立方法与应用	樊守彬, 杨涛, 王凯, 李雪峰 (1664)
现实工况下挖掘机电尾气排放特征分析	马帅, 张凯山, 王帆, 庞凯莉, 朱怡静, 李臻, 毛红梅, 胡宝梅, 杨锦锦, 王斌 (1670)
雾-霾天人体平均呼吸高度处不同粒径气溶胶的微生物特性	杨唐, 韩云平, 李琳, 刘俊新 (1680)
霾天能见度参数化方案改进及预报效果评估	赵秀娟, 李梓铭, 徐敬 (1688)
支持向量机回归在臭氧预报中的应用	苏筱倩, 安俊琳, 张玉欣, 梁静舒, 刘静达, 王鑫 (1697)
基于中国电网结构及一线典型城市车辆出行特征的 PHEV 二氧化碳排放分析	郝旭, 王贺武, 李伟峰, 欧阳明高 (1705)
岩溶槽谷区地下河硝酸盐来源及其环境效应: 以重庆龙凤槽谷地下河系统为例	段世辉, 蒋勇军, 张远瞩, 曾泽, 王正雄, 吴韦, 彭学义, 刘九缠 (1715)
胶州湾表层水体中邻苯二甲酸酯的污染特征和生态风险	刘成, 孙翠竹, 张智, 唐燎, 邹亚丹, 徐擎擎, 李锋民 (1726)
湛江湾沉积物中六六六 (HCHs)、滴滴涕 (DDTs) 有机氯农药的分布特征与风险评估	彭诗云, 彭平安, 孔德明, 陈法锦, 于赤灵, 李嘉诚, 梁宇钊, 宋建中 (1734)
生态净化系统中 DOM 光学特性及影响因素分析: 以盐龙湖春季为例	马睿, 李璇, 王莲, 王家新, 马卫星, 丁成, 吴向阳 (1742)
溶解性有机物 (DOM) 与区域土地利用的关系: 基于三维荧光-平行因子分析 (EEM-PARAFAC)	李昀, 魏鸿杰, 王侃, 张招招, 于旭彪 (1751)
汉丰湖流域农业面源污染氮磷排放特征分析	谢经朝, 赵秀兰, 何丙辉, 李章安 (1760)
基于 RZWQM 模型模拟太行山低山丘陵区农田土壤硝态氮迁移及淋溶规律	郑文波, 王仕琴, 刘丙霞, 雷玉平, 曹建生 (1770)
澜沧江流域梯级水库建设下水体营养盐和叶绿素 a 的空间分布特征	程豹, 望雪, 马金川, 杨正健, 刘德富, 马骏 (1779)
福州地区海湾和河口潮汐沼泽湿地秋季上覆水营养盐分布特征	何露露, 杨平, 谭立山, 仝川, 黄佳芳 (1788)
尾水受纳河流中 PhACs 在传统水相中的分布及环境风险	王硕, 刘建超, 郑超亚, 张吉琛, 许嘉诚, 徐莹莹, 陆光华 (1797)
绿色屋顶雨洪调控能力与效益评价	李俊生, 尹海伟, 孔繁花, 陈佳宇, 邓金玲 (1803)
超声活化过硫酸盐降解水中典型臭味	孙昕, 孙杰, 李鹏飞, 汤加刚, 杨晴, 唐晓 (1811)
金属有机框架 MIL-53 (Fe) 可见光催化还原水中 U (VI)	闫增元, 习海玲, 袁立永 (1819)
覆盖材料对洱海不同湖区沉积物溶解态有机磷和无机磷释放影响及差异	龚佳健, 倪兆奎, 肖尚斌, 赵海超, 席银, 王圣瑞 (1826)
氢氧化铜改性介孔稻壳生物炭除磷性能	许润, 石程好, 唐倩, 石稳民, 康建雄, 任拥政 (1834)
改性污泥基生物炭的性质与重金属吸附效果	陈坦, 周泽宇, 孟瑞红, 王洪廷, 陆文静, 金军, 刘颖 (1842)
纳米磁性磷酸二氢钙对 Cd 的吸附、回收与再生	李玉娇, 杨志敏, 陈玉成, 黄磊, 唐海燕 (1849)
赤铁矿抑制硫酸盐废水厌氧消化产甲烷过程中硫化氢形成与机制	黄绍福, 叶捷, 周顺桂 (1857)
微藻膜反应器处理海水养殖废水性能及膜污染特性	马航, 李之鹏, 柳峰, 徐仲, 尤宏, 王芳, 陈其伟 (1865)
生活污水预沉淀-SNAD 颗粒污泥工艺小试	李冬, 崔雅倩, 赵世勋, 刘志诚, 张杰 (1871)
生活污水与人工配水对好氧颗粒污泥系统的影响	李冬, 王樱桥, 李帅, 张杰, 王玉珊 (1878)
硫磺/硫铁矿自养反硝化系统脱氮性能	周娅, 买文宁, 梁家伟, 代吉华, 牛颖, 李伟利, 唐启 (1885)
异养硝化细菌 <i>Pseudomonas putida</i> YH 的脱氮特性及降解动力学	汪旭晖, 杨垒, 任勇翔, 陈宁, 肖倩, 崔坤, 鄯丹 (1892)
污泥龄及 pH 值对反硝化除磷工艺效能的影响	韦佳敏, 黄慧敏, 程诚, 蒋志云, 刘文如, 沈耀良 (1900)
盐度条件下 ANAMMOX-EGSB 反应器颗粒污泥微生物群落	王晗, 李瀚翔, 陈猷鹏, 郭劲松, 晏鹏, 方芳 (1906)
内源碳 PHA 的贮存对混合菌耐低温特性的影响	杨建鹏, 张健, 田晴, 朱艳彬, 李方, Wolfgang Sand (1914)
中国市政污泥中磷的含量与形态分布	王超, 刘清伟, 耿音, 程柳, 王宁, 李彩丹, 毛宇翔 (1922)
广州市售水产品中全氟烷基化合物的污染特征和安全风险评价	王旭峰, 王强, 黎智广, 黄珂, 李刘冬, 赵东豪 (1931)
长江上游典型农业源溪流溶存氧化亚氮 (N ₂ O) 浓度特征及影响因素	田琳琳, 王正, 胡磊, 任光前, 朱波 (1939)
内蒙古河套灌区不同盐碱程度土壤 CH ₄ 吸收规律	杨文柱, 焦燕, 杨铭德, 温慧洋 (1950)
水稻光合碳在植株-土壤系统中分配与稳定对施磷的响应	王莹莹, 肖谋良, 张昀, 袁红朝, 祝贞科, 葛体达, 吴金水, 张广才, 高晓丹 (1957)
土壤水分和温度对西南喀斯特棕色石灰土无机碳释放的影响	徐学池, 黄媛, 何寻阳, 王桂红, 苏以荣 (1965)
黄土丘陵区侵蚀坡面土壤微生物量碳时空动态及影响因素	覃乾, 朱世硕, 夏彬, 赵允格, 许明祥 (1973)
农用地土壤抗生素组成特征与积累规律	孔晨晨, 张世文, 聂超甲, 胡青青 (1981)
生物发酵制药 VOCs 与臭味治理技术研究与进展	王东升, 朱新梦, 杨晓芳, 焦茹媛, 赵珊, 宋荣娜, 吕明哈, 杨敏 (1990)
《环境科学》征订启事 (1612)	《环境科学》征稿简则 (1787)
信息 (1663, 1796, 1833)	

西安市 PM_{2.5} 中碳质气溶胶污染特征

牟臻¹, 陈庆彩^{1*}, 王羽琴¹, 沈振兴², 华晓羽¹, 张梓萌¹, 孙浩堯¹, 王玛敏¹, 张立欣¹

(1. 陕西科技大学环境科学与工程学院, 西安 710021; 2. 西安交通大学环境科学与工程系, 西安 710049)

摘要: 利用热光分析法探究了西安市 2017 年 353 个 PM_{2.5} 样品中的元素碳(EC)、有机碳(OC)、甲醇可萃取有机碳(MSOC)以及热-光分析法得到的 7 个碳组分(OC1~4、EC1~3)的质量浓度、季节变化趋势以及来源。结果表明, 西安市 2017 年 OC、EC 以及 MSOC 的平均质量浓度分别为(17.56 ± 11.83)、(4.08 ± 2.95)和(11.10 ± 6.77) μg·m⁻³。OC 质量浓度的季节性趋势为冬季 > 春季 > 夏季 > 秋季; EC 为冬季 > 春季 ≈ 秋季 > 夏季。MSOC/OC 比值年平均值为 0.64 ± 0.20, 冬季最高, 夏季最低。春季 OC 和 EC 相关性较好($r^2 = 0.76$), 而在冬季的相关性较差($r^2 = 0.43$), 说明碳气溶胶的来源不同。采用 EC 示踪法对二次气溶胶的含量进行估算, SOC 的平均含量分别占到了春、夏、秋、冬四季 OC 质量浓度的 51.9%、38.4%、37.3%、44.0%。采用主成分分析法得出西安市的碳质气溶胶主要来源于燃煤和机动车排放。

关键词: PM_{2.5}; 有机碳; 元素碳; 季节性变化; 来源解析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)04-1529-08 DOI: 10.13227/j.hjkk.201807135

Characteristics of Carbonaceous Aerosol Pollution in PM_{2.5} in Xi'an

MU Zhen¹, CHEN Qing-cai^{1*}, WANG Yu-qin¹, SHEN Zhen-xing², HUA Xiao-yu¹, ZHANG Zi-meng¹, SUN Hao-yao¹, WANG Ma-min¹, ZHANG Li-xin¹

(1. College of Environmental Science and Engineering, Shaanxi University of Science and Technology, Xi'an 710021, China; 2. Department of Environmental Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: Mass concentration, seasonal variation and sources of organic carbon (OC), element carbon (EC), methanol-soluble organic carbon (MSOC), and seven carbon components (OC1-4, EC1-3) were detected by thermal-optical analysis of 353 PM_{2.5} samples in Xi'an in 2017. The results show that the average mass concentrations of OC, EC, and MSOC were (17.56 ± 11.83), (4.08 ± 2.95) and (11.10 ± 6.77) μg·m⁻³, respectively. The seasonal trend of the OC concentration follows the order winter > spring > summer > autumn. The seasonal trend in EC concentration follows the order winter > spring ≈ autumn > summer. The average MSOC/OC value is 0.64 ± 0.20. The highest value is observed in winter and the lowest in summer. The correlation between OC and EC is good in spring ($r^2 = 0.76$), but the correlation is poor in winter ($r^2 = 0.43$). These results indicate that the source of the carbon aerosols was different. The content of secondary organic aerosols was estimated by the EC tracing method. The average mass concentration of SOC accounted for 51.9%, 38.4%, 37.3% and 44.0% of OC in spring, summer, autumn, and winter, respectively. The main sources of carbonaceous aerosols were analyzed by principal component analysis. The results show that carbonaceous aerosols originate mainly from coal and vehicle emissions in Xi'an.

Key words: PM_{2.5}; organic carbon; element carbon; seasonal change; source analysis

大气颗粒物(PM_{2.5})与人类身体健康以及全球气候变化都有着密切联系, PM_{2.5}颗粒可以深入肺部, 引起各种健康问题, 据估计每年有近 320 万人因 PM_{2.5} 导致死亡, 亚洲贫穷地区尤为严重^[1]。PM_{2.5} 中不仅含有硫酸盐、硝酸盐、铵盐等无机离子, 亦包含大量的碳质组分^[2]。碳质气溶胶主要由有机碳(OC)和元素碳(EC)组成^[3]。EC 主要来源于燃料不完全燃烧, 如机动车排放、木材燃烧、烹饪、森林大火等^[4]。有研究表明, EC 可对温度、辐射强迫、降水量等气候或气象要素产生影响^[5]。由于 EC 对紫外波长到红外波长范围内的光线具有强吸收作用, 与某些大气温室气体如 CO₂、CH₄、CFCs 等相比吸收波段更广, 对各波段的光线吸收系数更大^[6], 因此, 虽然 EC 在气溶胶含量中所占的比例较小(4.2%左右)^[7], 但却成为了全球气候

变暖的重要因子之一。相较于 EC, OC 的形成过程和来源更具有多样性, 可为一次有机气溶胶(primary organic carbon, POC)或是二次有机气溶胶(secondary organic carbon, SOC)。另外, OC 为成分复杂的混合物(烷烃、多环芳烃、羧酸类、酯类、醇类、醌类和含氮化合物等^[8]), Chen^[9]等的研究发现水不溶性有机碳气溶胶中以高分子脂肪族化合物为主(C₂₇~C₃₂), 且硝酸化合物含量相对较多。田鹏山等^[10]的研究报道, 西安市 OC 和 EC 浓度分别达到了(47.8 ± 26.2) μg·m⁻³ 和(8.5 ± 4.4)

收稿日期: 2018-07-17; 修订日期: 2018-10-30

基金项目: 国家自然科学基金项目(41703102); 陕西省自然科学基金项目(2018JM4011); 陕西省自然科学基金青年科学基金项目(2017JQ5115)

作者简介: 牟臻(1995~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为大气污染化学, E-mail: muzhen315@126.com

* 通信作者, E-mail: chenqingcai@sust.edu.cn

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. OC 和 EC 均含有大量对人类健康有害或者存在潜在危险的组分, Baumgartner 等^[11]的研究结果表明, EC 对人体的血压具有较为严重的负面影响; OC 中所含多环芳烃、多氯联苯和二噁英类物质等, 均为潜在的致癌物或诱因, 对人体健康具有潜在且强烈的风险^[12,13].

气溶胶中的有机组分所占比例约为 10% ~ 90%, 其中水溶性组分约为 10% ~ 70%, 水不溶性组分所占比例为 30% ~ 90%^[14-16], 因此, 对水不溶性有机物的研究具有重要意义. 溶剂萃取方法经常被用于气溶胶中有机化合物萃取以及进行后续的物理化学性质研究中, 常用的气溶胶萃取溶剂包括水、甲醇、二氯甲烷、正己烷等, Alves 等^[17]和 Willoughby 等^[18]分别利用了二氯甲烷和吡啶萃取气溶胶中的有机组分. 目前的大部分研究工作都集中在水溶性组分上, 关于水不溶性组分的研究相对较少, Chen 等^[19]的研究发现, 可萃取有机碳组分接近总悬浮颗粒物中的总有机碳; Sciare 等^[20]的研究表明, 水不溶性有机碳的主要组分是二次有机碳, 因此利用甲醇萃取水不溶性有机碳的研究对二次有机碳的研究具有重要作用.

本文利用热-光分析法研究了西安市 2017 全年 $\text{PM}_{2.5}$ 样品中的碳质组分, 包括 EC、OC 以及甲醇可萃取有机碳 (methanol-soluble organic carbon, MSOC) 的质量浓度和季节变化趋势, 探讨了碳质气溶胶的污染特征及其来源.

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究样品采集于陕西省西安市陕西科技大学逸夫楼楼顶 (北纬 $\text{N}34^{\circ}22'35.07''$, 东经 $\text{E}108^{\circ}58'34.58''$; 海拔 420 m), 采样仪器距离地面大约 30 m, 四周主要是居民区与城市交通道路, 无重大工业排放源.

本研究采用智能大流量空气颗粒物采样器 (新拓 XT-1025) 采集 2017-01-01 ~ 2017-12-31 的 $\text{PM}_{2.5}$ 颗粒物样品于事先在马弗炉 (合肥科晶材料技术有限公司, KXL-1200X) 中 450°C 下煅烧 4 h 的石英纤维滤膜 (PALL Life Science, TISSUQUARTZ 2500QAT-UP) 上, 采样时间为每日 07:00 ~ 次日 06:30, 时长 23 h 30 min. 所得样品置于 -20°C 的冰箱中密封保存. 本研究共采集样品 353 个 (8 个野外空白样). 根据西安的气候分布特征, 冬季为 12、1、2 月; 春季为 3 ~ 5 月; 夏季为 6 ~ 8 月; 秋季为 9 ~ 11 月.

1.2 样品分析

样品中所含 OC 和 EC 含量采用 DRI Model

2001A 碳素分析仪进行定量分析, 方法为 IMPROVE-A. OC 阶段通入高纯度 He, 程序升温, 对样品进行加热, 不同 OC 阶段分别对应不同的温度阶梯 (140°C -OC1、 280°C -OC2、 480°C -OC3、 580°C -OC4), 挥发出来的有机物进入催化氧化炉, 经过催化氧化后, 生成的 CO_2 进入 NDIR 检测器对二氧化碳浓度进行定量检测. OC 阶段结束之后, 进入 EC 阶段, 通入氧气 (2%) 与氦气 (98%) 的混合气, 并且继续加热升温, 不同的 EC 阶段分别对应不同的温度阶梯 (580°C -EC1、 740°C -EC2、 840°C -EC3), 氧化生成的 CO_2 进入 NDIR 检测器对二氧化碳浓度进行检测. 在 OC 阶段的升温加热过程中会存在一部分的 OC 发生焦化, 即为焦炭 (OPC). 为计算 OPC 的生成量, 利用波长 635 nm 的光源对样品的初始和测定过程中的透射光强度进行测定, 定义光强度返回至起始强度的时刻为 EC 的起始点, 即可从 EC1 中分离出 OPC. 因此, 总有机碳 OC 定义为: $\text{TOC} = \text{OC1} + \text{OC2} + \text{OC3} + \text{OC4} + \text{OPC}$; 总元素碳 EC 定义为 $\text{TEC} = \text{EC1} + \text{EC2} + \text{EC3} - \text{OPC}$; 总碳定义为: $\text{TC} = \text{TOC} + \text{TEC}$.

1.3 甲醇萃取和 MSOC 浓度测定

9 cm^2 石英纤维滤膜放入 30 mL 洁净玻璃瓶中, 然后加入 6 mL 甲醇 (色谱纯, Fisher Chemical) 超声 30 min. 萃取悬浮液用 PTFE 滤膜 (13 mm, $0.45\text{ }\mu\text{m}$) 过滤至洁净玻璃瓶中, 储存于 4°C 恒温箱中.

取 1 mL 甲醇萃取液于 1.5 mL 玻璃瓶中, 在稳定的 N_2 气体流下将甲醇溶剂吹至近干, 用微量注射器将浓缩液转移至洁净石英纤维滤膜上 (直径: 8 mm), 放置在 1.5 mL 玻璃瓶中继续氮吹, 将残余甲醇吹干, 对 OC 和 EC 质量浓度进行分析.

1.4 二次有机气溶胶浓度估算

EC 作为一次燃烧来源的示踪物, 假定一次来源 OC/EC 值不变的条件下, 可以用于计算二次 OC 对大气颗粒物中总 OC 的贡献量^[21].

二次有机碳的估算:

$$\text{OC}_{\text{pri}} = Z + (\text{OC}/\text{EC})_{\text{pri}} \times \text{EC} \quad (1)$$

$$\text{OC}_{\text{sec}} = \text{OC}_{\text{tot}} - \text{OC}_{\text{pri}} \quad (2)$$

式中, $(\text{OC}/\text{EC})_{\text{pri}}$ 表示一次源气溶胶的 OC/EC 值, OC 表示测量得到的颗粒物中的有机碳, Z 为非燃烧所产生 OC (视为 0). 不同来源的 OC/EC 值是不同的, 例如 2.0 左右代表汽油车排放, 因此, 利用 OC/EC 方法计算出的结果存在一定的不确定性, 受许多因素影响, 如气象条件、源排放的浮动等^[22]. 为了减小这种不确定性, 本研究选取了每个月的 OC/EC 值, 估算当月的 SOC.

1.5 碳气溶胶来源解析

本研究利用 OC/EC 比值以及 SPSS 23 解析西安市 PM_{2.5} 碳质气溶胶中碳质组分的主要来源。

2 结果与讨论

2.1 OC、EC 浓度水平以及时间变化特征

图 1(b) ~ 1(c) 分别给出了西安市 2017 年全年 OC 和 EC 的质量浓度变化。从中可以看到 OC 和 EC 具有相似的变化趋势。冬季的 OC 和 EC 的浓度最高, 分别达到了 $(29.02 \pm 14.01) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(6.96 \pm 4.16) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。1 月的 OC、EC 的浓度为全年月份的最高值, 分别达到了 $(36.65 \pm 12.71) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(9.91 \pm 5.46) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。OC、EC 浓度最低值分别出现在夏季和秋季, 分别为 $(10.60 \pm 6.06) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(2.57 \pm 0.92) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。10 月是一年中的 OC 质量浓度最低的月份, 为 $(7.37 \pm 4.75) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; 而 8 月是全年 EC 质量浓度最低的月份, 为 $(2.37 \pm 0.99) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。吕喆等^[23]的研究报道, 北京市冬季 OC 和 EC 质量浓度分别为 $(25.28 \pm 14.13) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(3.98 \pm 0.29) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 以上分析得出, 西安市碳质气溶胶污染程度高于北京, 且冬季碳气溶胶污染严重, 而夏、秋季节的碳气溶胶污染程度相对较轻。

西安属于暖温带半湿润大陆性季风气候, 秋季有风且降水天数增多, 对颗粒物湿沉降具有关键作用。因此, 8 ~ 10 月, OC 和 EC 浓度呈现梯度降低趋势。西安为典型北方城市, 冬季集中供暖, 时间为 1 ~ 3 月以及 11 ~ 12 月, 燃煤是集中供暖的主要方式, 该方式增加了 OC 和 EC 浓度的初次排放量, 导致冬季 OC 和 EC 浓度升高, 超过机动车排放和生物质燃烧的贡献^[24]。另一方面, 冬季逆温天气频发, 大气条件不利于污染物扩散, 也是冬季 PM_{2.5} 中 OC 和 EC 质量浓度较高的原因之一。

西安市不同季节 PM_{2.5} 中 OC 与 EC 的相关性如图 2 所示, OC 和 EC 相关性可表征二者同源性^[25,26]。夏季和秋季 OC、EC 具有一定相关性 ($r^2 > 0.6$, $P < 0.0001$), 且秋季相关性最好, 说明其来源于相同排放源, 例如夏秋农村的生物质燃烧排放^[27]。而在春季和冬季 OC、EC 相关程度较弱, 反映出春季和冬季 OC、EC 来源不同, 冬季含碳气溶胶来源较为复杂, 且受气团运输以及二次碳气溶胶形成的影响^[27], 导致 OC 与 EC 相关性较差, 并且西安在春季、冬季集中采用燃煤方式供暖, 导致 EC 排放量较多, 也是春季、冬季相关性较差的因素之一。

2.2 碳质气溶胶对 PM_{2.5} 的贡献

图 1(a) 给出了西安市 2017 年 PM_{2.5} 浓度随时

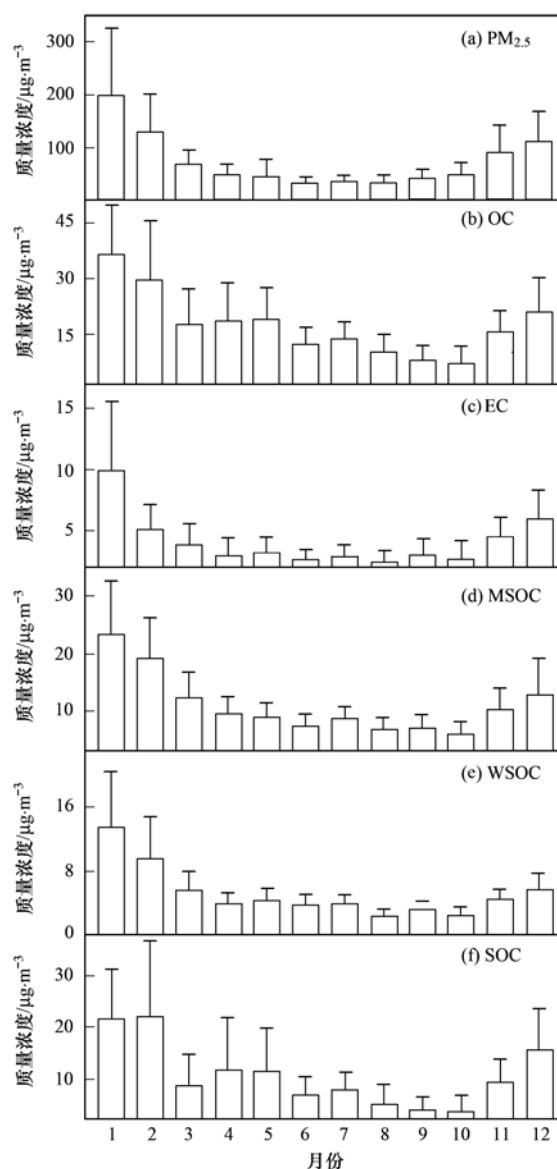


图 1 2017 年西安市 PM_{2.5} 及碳质气溶胶质量浓度时间(月份)分布

Fig. 1 Time distribution of the mass concentration of PM_{2.5} and carbonaceous aerosols in Xi'an in 2017

间的分布趋势, 呈现出“两头高, 中间低”的分布特征, 表现出了采暖时间与非采暖时间较为明显的变化特征, 并且季节性特征显著。冬季到春季, PM_{2.5} 表现出明显的阶梯式下降趋势; 夏季 PM_{2.5} 浓度降至全年最低; 进入秋冬季节, PM_{2.5} 浓度再次逐渐上升。PM_{2.5} 在冬季达到峰值, 质量浓度达到了 $(145.43 \pm 96.28) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 分别是春季、夏季和秋季的 2.7、4.3 和 2.3 倍。1 月为 PM_{2.5} 质量浓度最高的月份, 达到了 $(198.07 \pm 125.93) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 远高于其他月份。全年平均 PM_{2.5} 浓度为 $(73.94 \pm 69.00) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 达到优或良 ($< 75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) 的天数占全年的 70%, 严重污染 ($> 250 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) 占全年天数的 3.4%。

OC 和 EC 的季节变化趋势与 PM_{2.5} 相一致。冬

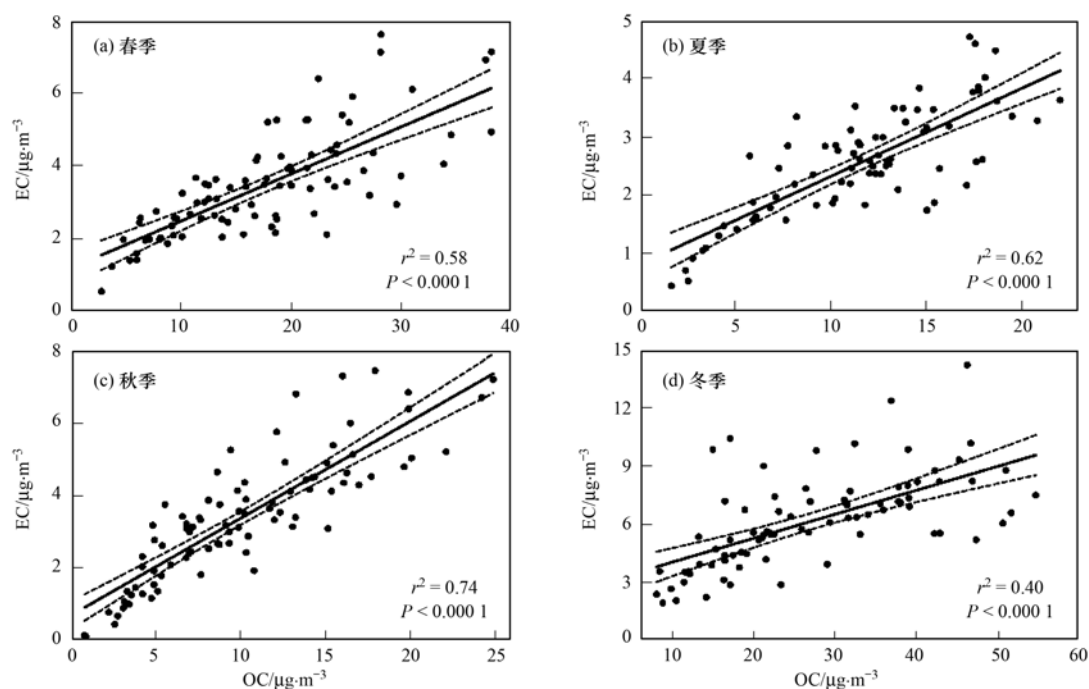


图2 OC和EC的相关性及季节性变化

Fig. 2 Correlation and seasonal changes in OC and EC

季 $PM_{2.5}$ 、OC 和 EC 的浓度均最高,是由于西安市区供暖以及不利气象条件导致的;而夏季均最低,是夏季大气对流活动旺盛,降雨量较大的缘故^[28]. 图3给出了OM($=OC \times 1.8$)^[29]以及EC组分对 $PM_{2.5}$ 的贡献及其季节性变化,OM和EC年平均占 $PM_{2.5}$ 质量比为56%和7%,春季、夏季的OM在 $PM_{2.5}$ 中的占比较高,而秋季、冬季相对较低,EC在 $PM_{2.5}$ 中的占比基本稳定,平均为7%左右,说明

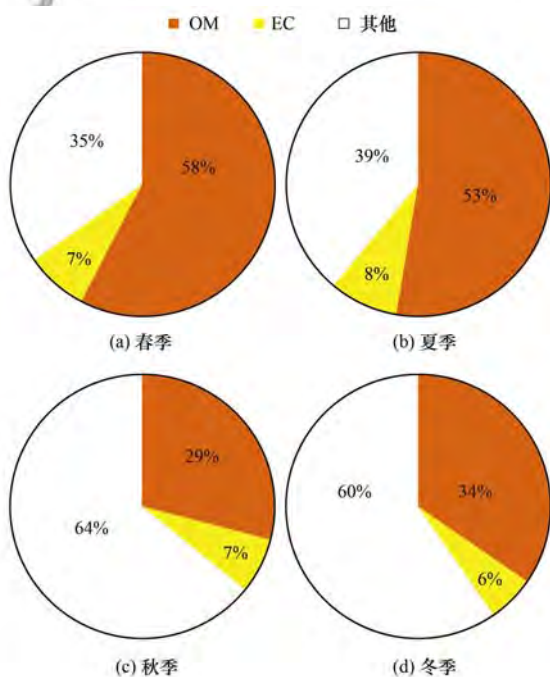
不同季节 $PM_{2.5}$ 的化学组分以及来源是不同的. 春、夏两季节 $PM_{2.5}$ 中有较高的OM,说明二次反应导致了OM的生成.

2.3 MSOC 的质量浓度分布特征

图4是MSOC与OC各组分之间的相关性比较. MSOC与OC1的相关程度最高($r^2 = 0.76$, $P < 0.0001$),MSOC与OC4的相关程度最低($r^2 = 0.41$, $P < 0.0001$). 因此,MSOC与OC1来源相同的可能性较大. OC4阶段的物质为低挥发性的的大分子物质,不易被甲醇萃取,因此与OC4相关性较低.

图1(d)、图5(b)给出了MSOC浓度以及MSOC在OC中的占比的月变化趋势. 结果表明,MSOC变化趋势与OC的变化趋势是相一致的,MSOC在冬季浓度最高,夏季最低. 据研究报道,甲醇可以萃取大气颗粒物中大部分的有机物,其不可萃取的有机物可能是分子量较大的聚合物. 本研究发现西安市 $PM_{2.5}$ 中OC的平均萃取率为63.7%,秋季最高,春季最低. 说明样品中化学组分在不同季节发生了变化^[30],并且可能存在较多大分子物质,可来源于一次源也可通过聚合反应生成.

图1(e)为水溶性有机碳(water-soluble organic carbon, WSOC)的质量浓度,春季、夏季、秋季和冬季依次为(4.65 ± 1.95)、(3.32 ± 1.29)、(3.36 ± 1.44)和(9.84 ± 6.02) $\mu g \cdot m^{-3}$,其趋势与甲醇可萃取有机碳相同,冬季较高,夏季较低;WSOC/OC的比值在春季、夏季、秋季和冬季依次为29.6%、

图3 有机质以及EC组分分别对 $PM_{2.5}$ 的贡献以及季节性变化Fig. 3 Seasonal changes in the contribution of organic matter and EC to $PM_{2.5}$

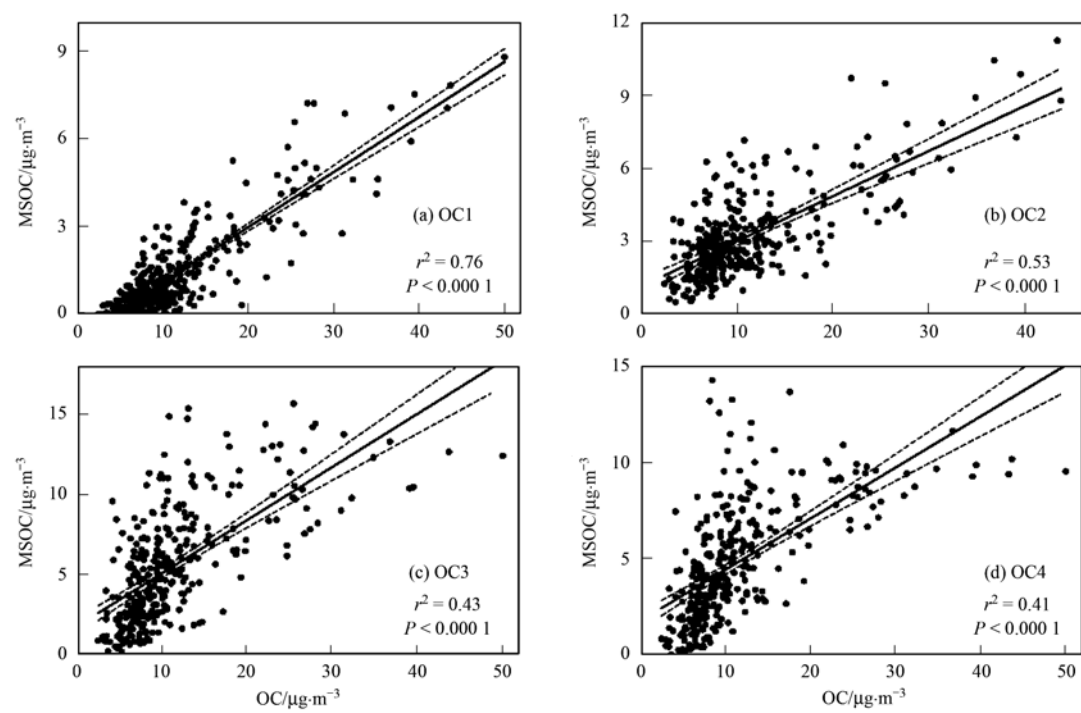


图4 MSOC 与 OC 各组分相关性
Fig. 4 Correlation between the MSOC and OC components

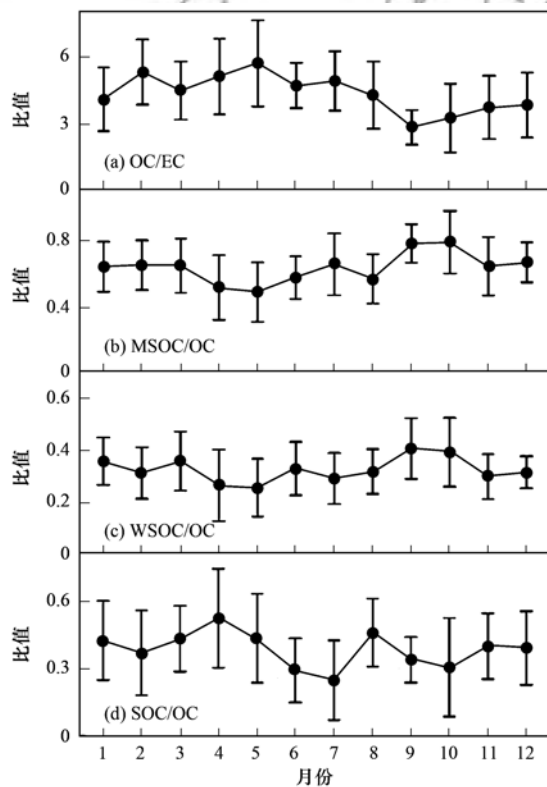


图5 OC/EC、MSOC/OC、WSOC/OC
以及 SOC/OC 比值时间(月份)变化

Fig. 5 Seasonal changes in the OC/EC, MSOC/OC,
and SOC/OC ratio

32.0%、36.9%和33.2%，相较于北京、上海和广州的 WSOC 质量浓度分别为 7.2、5.0 和 2.0 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ，以及 WSOC/OC 占比分别为 45.9%、45.0%和28.3%^[31~33]，西安市的 WSOC 质量浓度

与上海基本持平，但占比相对上海较低。

2.4 不同大气污染等级状况下碳质气溶胶特征

表1给出了不同的 PM_{2.5} 污染等级下的碳质气溶胶污染特征。EC/PM_{2.5} 的值随着 PM_{2.5} 浓度的增加表现出减少的趋势，污染浓度达到中度污染以上时(PM_{2.5} > 115 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)，EC 对 PM_{2.5} 浓度的贡献保持不变，为4%。OM 对 PM_{2.5} 的贡献随着 PM_{2.5} 浓度的增加表现出 OM/PM_{2.5} 逐渐减少的趋势。当 PM_{2.5} 浓度等级达到严重污染，OM 对 PM_{2.5} 的贡献达到最低值，仅为23%。以上结果说明大气污染程度为中度污染及以上时，黑碳气溶胶对 PM_{2.5} 的贡献保持稳定，原因是除碳质组分之外的物质，如硫酸盐是 PM_{2.5} 中主要水溶性离子，所占比例达到40%以上^[34]，是造成污染的主要贡献者。MSOC 对 OC 的贡献不随 PM_{2.5} 浓度的改变而改变，即 MSOC 对 OC 保持稳定。

2.5 SOC 的估算

图1(f)、图5(d) 分别给出了 SOC 以及 SOC/OC 随时间的变化趋势。结果表明，西安市 SOC 质量浓度在1月达到最大值，为(15.87 ± 9.50) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ；在10月平均浓度出现最小值，为(2.08 ± 2.95) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。春季、夏季、秋季和冬季 SOC 的质量浓度分别为(9.62 ± 8.53)、(4.53 ± 3.40)、(4.00 ± 3.80)和(12.77 ± 10.91) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ，SOC/OC 值依次为42%、35%、38%和49%。秋季的 SOC 比例增高，原因为秋季气温降低，半挥发、挥

表 1 不同 PM_{2.5} 浓度等级下碳质气溶胶对 PM_{2.5} 的贡献

Table 1 Contribution of carbonaceous aerosols to PM_{2.5} at different PM_{2.5} concentration levels

PM _{2.5} 污染等级	PM _{2.5} 质量浓度/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	OM/PM _{2.5} /%	EC/PM _{2.5} /%	MSOC/OC/%
优	0 ~ 35	78	10	63
良	36 ~ 75	55	7	63
轻度污染	76 ~ 115	43	5	65
中度污染	116 ~ 150	27	4	66
重度污染	151 ~ 250	33	4	64
严重污染	>250	23	4	68

发性有机物容易凝结在颗粒上, 发生老化、凝聚反应, 从而导致 SOC 升高^[25]. 冬季光照强度和时间不足, 不是二次碳气溶胶生成的最有利条件, 但冬季 SOC/OC 比值较高, 据研究报道, 冬季的光照条件弱于夏季, 但在中国北方冬季湿度较低的环境下, 白天的光化学反应成为了 SOA 生成的主要途径^[35,36], 同时, 冬季 OC 质量浓度高, 也是气溶胶光化学反应的有利条件. 值得说明的是利用 OC/EC 比值方法很难推测精确的 SOC 含量, 将来需要更加准确了解本地 EC 的来源以及 OC/EC 值, 提高利用 OC/EC 比值法计算二次气溶胶的精度^[37].

2.6 碳质气溶胶来源解析

OC/EC 比值在研究碳质气溶胶的主要来源上具有重要作用. 本研究利用 OC/EC 比值分析了西安市碳质气溶胶的主要来源. EC 是燃烧过程所产生, 因此 EC 可以表征燃烧源^[38,39]. 据已有研究, 柴油和汽油车的尾气排放碳质组分中 OC/EC 比值为 1.0 ~ 4.2, 燃煤排放为 2.5 ~ 10.5, 生物质的燃

烧排放为 16.8 ~ 40.0^[40~45]. 图 5(a) 给出了 OC/EC 比值随时间变化趋势. 本研究中, OC/EC 的比值范围在 $2.85 \pm 0.76 \sim 5.71 \pm 1.42$ 之间, 利用 OC/EC 的比值可以初步估算碳质气溶胶的来源, 得出西安市碳质气溶胶的主要来源于机动车排放以及燃煤排放. 西安市四季 OC/EC 的平均值依次为 4.58 ± 1.30 、 3.29 ± 1.32 、 4.39 ± 1.55 和 5.10 ± 1.70 , 夏季最低、冬季最高, 夏季主要污染源为机动车源, 冬季的主要污染源是燃煤源.

本研究利用主成分分析法对各碳组分的来源进行了解析. 表 2 给出了不同季节样品的分析结果. OC2、OC3 和 OC4 主要是表征燃煤源的特征组分^[46], EC2 和 EC3 主要代表了柴油车排放的贡献^[47]. 春季的因子 f1 统计结果所给出的高载荷组分是 OC2、OC3、OC4 和 EC1, 分别达到了 90.1%、95.1%、95.3% 和 97.2%, 故因子 f1 代表了柴油车排放贡献以及燃煤贡献. 因子 f2 所给出的高载荷组分是 OC1, 代表了生物质燃烧排放.

表 2 各季节主成分因子分析结果

Table 2 Results of the analysis of the principal component factors in each season

成分	春季		夏季		秋季		冬季	
	f1	f2	f1	f2	f1	f2	f1	f2
OC1	0.583	0.696	0.382	0.482	0.827	-0.237	0.651	-0.703
OC2	0.901	0.281	0.530	0.725	0.907	-0.212	-0.029	0.251
OC3	0.951	-0.069	0.839	-0.308	-0.129	0.028	0.926	-0.105
OC4	0.953	-0.241	0.894	-0.341	0.940	0.093	0.912	-0.079
EC1	0.972	0.074	0.920	-0.271	0.919	0.202	0.858	-0.261
EC2	0.612	-0.740	0.568	0.716	0.590	0.052	0.560	0.748
EC3	0.151	0.115	0.466	-0.348	0.089	0.985	0.557	0.789

夏季的因子 f1 的高载荷组分为 OC3、OC4 和 EC1, 其贡献比例分别为 83.9%、89.4% 和 92.0%, 该特征表征燃煤占主导的组分, 并且混合机动车排放. 因子 f2 载荷较高的是 OC2 和 EC2 组分, 推断为柴油机燃烧排放.

秋季的因子 f1 的高载荷组分为 OC1、OC2、OC4 和 EC1, 分别达到了 82.7%、90.7%、94.0% 和 91.9%, 与夏季的主要组分相似. OC1 是生物质

燃烧源的特征组分; EC1 是机动车汽油排放的特征组分^[48]; 因此, 生物质燃烧, 燃煤排放, 机动车排放的混合污染成为主要排放源.

冬季的因子 f1 在 OC3、OC4 和 EC1 的载荷较高, 分别达到了 92.6%、91.2%、85.8%, 其污染特征与秋季相似, 则 f1 代表了汽油车排放、生物质燃烧以及燃煤的混合物. 因子 f2 中, EC2 和 EC3 所占的比例相较于其他组分贡献显著, 其他组分贡献

很少, 柴油车排放来源贡献较大。

3 结论

(1) 西安市 PM_{2.5}、OC、EC 和 MSOC 全年平均浓度为 (73.94 ± 69.00)、(17.56 ± 11.8)、(4.08 ± 2.95) 和 (11.10 ± 6.77) μg·m⁻³, 均表现出冬季最高, 春季、夏季和秋季相对较低的特性。

(2) OC、EC 和 MSOC 分别占到 PM_{2.5} 的 23.74%、5.5% 和 16%。不同大气污染程度下, OC 在 PM_{2.5} 中占比随 PM_{2.5} 浓度的增加而减小, EC 随 PM_{2.5} 浓度的增加逐步减小并趋于稳定, MSOC 随 PM_{2.5} 浓度的增加同样表现出减小的趋势。说明雾霾天气状况下除 OC 外, 其他组分, 例如水溶性无机离子组分也起到了重要作用^[49]。

(3) 西安市全年平均 OC/EC 的比值为 4.32 ± 1.62, 表明西安市 PM_{2.5} 中碳质气溶胶受燃煤影响作用显著。采用 EC 示踪法对 SOC 进行估算, 结果表明冬季也有明显的 SOC 生成。

(4) 主成分分析结果显示, 燃煤和机动车是西安地区碳质气溶胶的两种主要来源。

参考文献:

- [1] Jerrett M. Atmospheric science: The death toll from air-pollution sources[J]. *Nature*, 2015, **525**(7569): 330-331.
- [2] Nizkorodov S A, Laskin J, Laskin A. Molecular chemistry of organic aerosols through the application of high resolution mass spectrometry[J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2011, **13**(9): 3612-3629.
- [3] Cao J J, Lee S, Ho K, *et al.* Spatial and seasonal distributions of atmospheric carbonaceous aerosols in pearl river delta region, China[J]. *China Particuology*, 2003, **1**(1): 33-37.
- [4] Turpin B J, Huntzicker J J. Secondary formation of organic aerosol in the Los Angeles basin: A descriptive analysis of organic and elemental carbon concentrations [J]. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1991, **25**(2): 207-215.
- [5] 关攀博, 师华定, 高庆先, 等. 中国地区黑碳气溶胶的气候效应模拟[J]. *环境工程技术学报*, 2017, **7**(4): 418-423.
Guan P B, Shi H D, Gao Q X, *et al.* Study on black carbon aerosol simulation of climate effect in China [J]. *Journal of Environmental Engineering Technology*, 2017, **7**(4): 418-423.
- [6] Forster P, Ramaswamy V, Artaxo P, *et al.* Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing [A]. In: Solomon S, Qin D, Manning M, *et al.* (Eds.). *Climate Change 2007: The physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2007. 129-234.
- [7] 张华, 马井会, 郑有飞. 黑碳气溶胶辐射强迫全球分布的模拟研究[J]. *大气科学*, 2008, **32**(5): 1147-1158.
Zhang H, Ma J H, Zheng Y F. The study of global radiative forcing due to black carbon aerosol [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 2008, **32**(5): 1147-1158.
- [8] Rogge W F, Mazurek M A, Hildemann L M, *et al.* Quantification of urban organic aerosols at a molecular level: Identification, abundance and seasonal variation [J]. *Atmospheric Environment. Part A. General topics*, 1993, **27**(8): 1309-1330.
- [9] Chen Q C, Ikemori F, Higo H, *et al.* Chemical structural characteristics of HULIS and other fractionated organic matter in urban aerosols: Results from mass spectral and FT-IR analysis [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50**(4): 1721-1730.
- [10] 田鹏山, 曹军骥, 韩永明, 等. 关中地区冬季 PM_{2.5} 中碳气溶胶的污染特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2016, **37**(2): 427-433.
Tian P S, Cao J J, Han Y M, *et al.* Pollution characteristics and sources of carbonaceous aerosol in PM_{2.5} during winter in Guanzhong area [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(2): 427-433.
- [11] Baumgartner J, Zhang Y X, Schauer J J, *et al.* Highway proximity and black carbon from cookstoves as a risk factor for higher blood pressure in rural China [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2014, **111**(36): 13229-13234.
- [12] Offenberg J H, Baker J E. Aerosol size distributions of elemental and organic carbon in urban and over-water atmospheres [J]. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**(10): 1509-1517.
- [13] Heal M R, Kumar P, Harrison R M. Particles, air quality, policy and health [J]. *Chemical Society Reviews*, 2012, **41**(19): 6606-6630.
- [14] Jimenez J L, Canagaratna M R, Donahue N M, *et al.* Evolution of organic aerosols in the atmosphere [J]. *Science*, 2009, **326**(5959): 1525-1529.
- [15] Kanakidou M, Seinfeld J H, Pandis S N, *et al.* Organic aerosol and global climate modelling: A review [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2005, **5**(4): 1053-1123.
- [16] Decesari S, Mircea M, Cavalli F, *et al.* Source attribution of water-soluble organic aerosol by nuclear magnetic resonance spectroscopy [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(7): 2479-2484.
- [17] Alves C, Pio C, Duarte A. Composition of extractable organic matter of air particles from rural and urban Portuguese areas [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(32): 5485-5496.
- [18] Willoughby A S, Wozniak A S, Hatcher P G. A molecular-level approach for characterizing water-insoluble components of ambient organic aerosol particulates using ultrahigh-resolution mass spectrometry [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14**(18): 10299-10314.
- [19] Chen Q C, Ikemori F, Mochida M. Light Absorption and excitation-emission fluorescence of urban organic aerosol components and their relationship to chemical structure [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50**(20): 10859-10868.
- [20] Sciare J, D'Argouges O, Sarda-Estève R, *et al.* Large contribution of water-insoluble secondary organic aerosols in the region of Paris (France) during wintertime [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2014, **116**(D22): D22203.
- [21] Lim H J, Turpin B J. Origins of primary and secondary organic aerosol in Atlanta: results of time-resolved measurements during the Atlanta Supersite Experiment [J]. *Environmental Science & Technology*, 2002, **36**(21): 4489-4496.
- [22] 杜博涵, 黄晓锋, 何凌燕, 等. 宁波市 PM_{2.5} 中碳组分的时空分布特征和二次有机碳估算 [J]. *环境科学*, 2015, **36**(9): 3128-3134.
Du B H, Huang X F, He L Y, *et al.* Seasonal and spatial variations of carbon fractions in PM_{2.5} in Ningbo and the estimation of secondary organic carbon [J]. *Environmental*

- Science, 2015, **36**(9): 3128-3134.
- [23] 吕喆, 韩力慧, 程水源, 等. 北京城区冬夏季含碳气溶胶浓度特征及区域传输对灰霾形成影响[J]. 北京工业大学学报, 2018, **44**(3): 463-472.
- Lü Z, Han L H, Cheng S Y, *et al.* Characteristics of carbonaceous aerosols and influence of regional transport on haze formation in winter and summer in urban of Beijing[J]. Journal of Beijing University of Technology, 2018, **44**(3): 463-472.
- [24] 曹军骥, 李顺诚, 李杨, 等. 2003 年秋冬季节西安大气中有有机碳和元素碳的理化特征及其来源解析[J]. 自然科学进展, 2005, **15**(12): 1460-1466.
- [25] 叶招莲, 刘佳澍, 李清, 等. 常州夏秋季 PM_{2.5} 中碳质气溶胶特征及来源[J]. 环境科学, 2017, **38**(11): 4469-4477.
- Ye Z L, Liu J S, Li Q, *et al.* Characteristics and source identification of carbonaceous aerosols in PM_{2.5} measurements during summer and fall in Changzhou [J]. Environmental Science, 2017, **38**(11): 4469-4477.
- [26] 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.
- [27] 徐宏辉, 徐婧莎, 何俊, 等. 杭甬地区大气中含碳气溶胶特征及来源分析[J]. 环境科学, 2018, **39**(8): 3511-3517.
- Xu H H, Xu J S, He J, *et al.* Characteristics and source analysis of atmospheric carbonaceous aerosols in the cities of Hangzhou and Ningbo[J]. Environmental Science, 2018, **39**(8): 3511-3517.
- [28] 董娅玮, 杜新黎, 李扬扬, 等. 西安市区大气中 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 质量浓度污染特征[J]. 中国环境监测, 2015, **31**(5): 45-49.
- Dong Y W, Du X L, Li Y Y, *et al.* Pollution characteristics of mass concentration of PM_{2.5} and PM₁₀ in Xi'an city [J]. Environmental Monitoring in China, 2015, **31**(5): 45-49.
- [29] Turpin B J, Lim H J. Species contributions to PM_{2.5} mass concentrations: revisiting common assumptions for estimating organic mass[J]. Aerosol Science and Technology, 2001, **35**(1): 602-610.
- [30] Mihara T, Mochida M. Characterization of solvent-extractable organics in urban aerosols based on mass spectrum analysis and hygroscopic growth measurement[J]. Environmental Science & Technology, 2011, **45**(21): 9168-9174.
- [31] Huang H, Ho K F, Lee S C, *et al.* Characteristics of carbonaceous aerosol in PM_{2.5}: Pearl Delta River Region, China [J]. Atmospheric Research, 2012, **104-105**: 227-236.
- [32] 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.
- Li M. Chemical composition, seasonal variation and sources of water-soluble organic components in PM_{2.5} in Shanghai [D]. Shanghai: Shanghai University, 2013.
- [33] Du Z Y, He K B, Cheng Y, *et al.* A yearlong study of water-soluble organic carbon in Beijing II: Light absorption properties [J]. Atmospheric Environment, 2014, **89**: 235-241.
- [34] Zhao L, Lun X X, Li R N, *et al.* Deposition of PM_{2.5} sulfate in the spring on urban forests in Beijing, China[J]. Atmosphere, 2017, **8**(1): 3.
- [35] Zhang J K, Ji D S, Liu Z R, *et al.* New characteristics of submicron aerosols and factor analysis of combined organic and inorganic aerosol mass spectra during winter in Beijing [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2015, **15**(13): 18537-18576.
- [36] Sun Y L, Du W, Fu P Q, *et al.* Primary and secondary aerosols in Beijing in winter: sources, variations and processes [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, **16**(13): 8309-8329.
- [37] Na K, Sawant A A, Song C, *et al.* Primary and secondary carbonaceous species in the atmosphere of Western Riverside County, California [J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(9): 1345-1355.
- [38] 颜鹏, 郇宁, 张养梅, 等. 北京乡村地区分粒径气溶胶 OC 及 EC 分析[J]. 应用气象学报, 2012, **23**(3): 285-293.
- Yan P, Huan N, Zhang Y M, *et al.* Size resolved aerosol OC, EC at a regional background station in the suburb of Beijing[J]. Journal of Applied Meteorological Science, 2012, **23**(3): 285-293.
- [39] Novakov T, Menon S, Kirchstetter T W, *et al.* Aerosol organic carbon to black carbon ratios: Analysis of published data and implications for climate forcing [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2005, **110**(D21): D21205.
- [40] Andreae M O, Merlet P. Emission of trace gases and aerosols from biomass burning[J]. Global Biogeochemical Cycles, 2001, **15**(4): 955-966.
- [41] Chow J C, Watson J G, Lu Z Q, *et al.* Descriptive analysis of PM_{2.5} and PM₁₀ at regionally representative locations during SIVAQS/AUSPEX [J]. Atmospheric Environment, 1996, **30**(12): 2079-2112.
- [42] Sudheer A K, Sarin M M. Carbonaceous aerosols in MABL of Bay of Bengal: Influence of continental outflow[J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(18): 4089-4100.
- [43] Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, *et al.* Measurement of emissions from air pollution sources. 3. C₁-C₂₉ organic compounds from fireplace combustion of wood[J]. Environmental Science & Technology, 2001, **35**(9): 1716-1728.
- [44] Sandradewi J, Prévôt A S H, Weingartner E, *et al.* A study of wood burning and traffic aerosols in an Alpine valley using a multi-wavelength Aethalometer [J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(1): 101-112.
- [45] Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, *et al.* Measurement of emissions from air pollution sources. 5. C₁-C₃₂ organic compounds from gasoline-powered motor vehicles [J]. Environmental Science & Technology, 2002, **36**(6): 1169-1180.
- [46] 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.
- Cheng S Y, Liu C, Han L H, *et al.* Characteristics and source apportionment of organic carbon and elemental carbon in PM_{2.5} during the heating season in Beijing [J]. Journal of Beijing University of Technology, 2014, **40**(4): 586-591, 597.
- [47] Watson J G, Chow J C, Lowenthal D H, *et al.* Differences in the carbon composition of source profiles for diesel-and gasoline-powered vehicles [J]. Atmospheric Environment, 1994, **28**(15): 2493-2505.
- [48] Chow J C, Watson J G, Kuhns H, *et al.* Source profiles for industrial, mobile, and area sources in the Big Bend Regional Aerosol Visibility and Observational study [J]. Chemosphere, 2004, **54**(2): 185-208.
- [49] 代志光, 张承中, 李勇, 等. 西安夏季 PM_{2.5} 中碳组分与水溶性无机离子特征分析[J]. 环境工程学报, 2014, **8**(10): 4366-4372.
- Dai Z G, Zhang C Z, Li Y, *et al.* Analysis of carbon components and water-soluble inorganic ions in PM_{2.5} of Xi'an during summer [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2014, **8**(10): 4366-4372.

CONTENTS

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