

百方知库
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.6
第40卷 第6期

目次

北京城区大气金属元素干湿沉降特征 张国忠, 潘月鹏, 田世丽, 王永宏, 熊秋林, 李广, 顾梦娜, 吕雪梅, 倪雪, 何月欣, 黄威, 刘博文, 王跃思 (2493)

北京城郊 PM_{2.5} 中金属元素的污染特征及潜在生态风险评价 徐静, 李杏茹, 张兰, 陈曦, 杨阳, 刘水桥, 赵清 (2501)

上海城区二次气溶胶的形成: 光化学氧化与液相反应对二次气溶胶形成的影响 高杰, 乔利平, 楼晟荣, 严茹莎, 周敏, 刘瑜存, 冯加良, 黄丹丹 (2510)

天津市 2017 年重污染过程二次无机化学污染特征分析 徐虹, 肖致美, 陈魁, 李立伟, 杨宁, 高璟赞, 李源, 孔君, 毕温凯, 邓小文 (2519)

典型非金属矿物制造工艺过程源成分谱特征 赵雪艳, 于高峰, 王信梧, 张向炎, 殷宝辉, 刘盈盈, 王歆华, 杨文, 赵若杰 (2526)

垃圾焚烧厂排放颗粒物组分粒径分布特征 余卓君, 吴建会, 张裕芬, 张进生, 冯银厂, 李蒲 (2533)

天津市春季样方法道路扬尘碳组分特征及来源分析 马妍, 姬亚芹, 国纪良, 赵静琦, 李越洋, 王士宝, 张蕾 (2540)

霾天气下城市气溶胶吸湿性的观测 杨素英, 田芷洁, 张铁凝, 于兴娜, 李艳伟, 安俊琳, 赵秀勇, 李岩, 王梓航, 吴尚 (2546)

宁东能源化工基地大气 PM_{2.5} 中硝基多环芳烃污染特征及呼吸暴露风险 刘攀亮, 剧媛丽, 毛满萱, 黄韬, 高宏, 马建民 (2556)

2014 ~ 2016 年间郑州市控制 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 污染的健康效益评估 韩士杰, 王佳, 燕启社, 杨留明, 赵庆炎, 王申博, 李晨, 张轶舜, 张瑞芹 (2565)

1990 ~ 2017 年中国地区气溶胶光学厚度的时空分布及其主要影响类型 刘莹, 林爱文, 覃文敏, 何利杰, 李霄 (2572)

北京春季一次霾-沙天气污染特性与成因分析 王耀庭, 李青春, 郑祚芳, 窦有俊 (2582)

江苏省内河船舶大气污染物排放清单及特征 徐文文, 殷承启, 许雪记, 张玮 (2595)

亚热带稻区大气 NO₂、HNO₃ 及硝态氮污染特征及干湿沉降 欧阳秀琴, 王波, 沈健林, 朱潇, 王杰飞, 李勇, 吴金水 (2607)

长江源区降水氢氧稳定同位素特征及水汽来源 汪少勇, 王巧丽, 吴锦奎, 何晓波, 丁永建, 王利辉, 胡召富 (2615)

基于高山湖泊沉积记录的贵州北部大气重金属污染历史重建 梁梦瑶, 刘恩峰, 张恩楼, 纪明, 李小林 (2624)

青岛 4 个海水浴场微塑料的分布特征 罗雅丹, 林千惠, 贾芳丽, 徐功娣, 李锋民 (2631)

鄱阳湖湿地候鸟栖息地微塑料污染特征 刘淑丽, 简敏菲, 周隆胤, 李文华, 吴希恩, 饶丹 (2639)

三峡库区消落带土壤溶解性有机质溯源: 基于氮/碳比值的线性双端元源负荷分析 江韬, Joeri Kaal, 梁俭, 刘江, 张耀玲, 王定勇, 魏世强, 赵铮 (2647)

水生生物光合作用对雪玉洞岩溶水体中 CDOM 的影响 范佳鑫, 蒋勇军, 贺秋芳, 王家楠, 何瑞亮, 张彩云, 马丽娜, 汪啟容 (2657)

水化学和环境同位素对济南东源饮用水源地地下水演化过程的指示 张雅, 苏春利, 马燕华, 刘伟江 (2667)

崇左响水地区地下水水质分析及健康风险评价 周巾枚, 蒋忠诚, 徐光黎, 覃小群, 黄奇波, 张连凯 (2675)

云南荞麦地流域地下水水化学特征及物质来源分析 张勇, 郭纯青, 朱彦光, 于爽 (2686)

鄱阳湖流域多尺度 C、N 输送通量及其水质参数变化特征 陆瑶, 高扬, 贾珺杰, 宋贤威, 陈世博, 马明真, 郝卓 (2696)

合流制面源污染传输过程与污染源解析 房金秀, 谢文霞, 朱玉玺, 沈雷, 马玉坤, 李佳, 姜智绘, 李叙勇, 赵洪涛 (2705)

强化浅基质层干植草沟对道路径流的脱氮效果 段进凯, 李田, 张佳炜 (2715)

水源水库暴雨径流过程水体锰的迁移及其影响 邓立凡, 黄廷林, 李楠, 李凯, 吕晓龙, 毛雪静 (2722)

巢湖十五里河沉积物磷吸附潜力及对外源碳的响应 李如忠, 鲍琴, 张瑞钢, 陈志 (2730)

金盆水库沉积物磷的来源及分布特征 毛雪静, 黄廷林, 李楠, 徐金兰, 苏露, 吕晓龙, 邓立凡 (2738)

水库水体热分层的水质及细菌群落分布特征 王禹冰, 王晓燕, 庞树江, 杨晓明, 刘洋 (2745)

不同水温分层水库沉积物间隙水营养盐垂向分布与细菌群落结构的关系 王慎, 张思思, 许尤, 官卓宇, 杨正健, 刘德富, 马骏 (2753)

表面流人工湿地长期运行后的底泥营养盐累积特征与释放规律 朱伊梦, 姜翠玲, 朱立琴, 杜观超, 高旭, 陈红卫, 李峰东, 张海阔, 张雪, 秦文凯, 李一平 (2764)

针铁矿改性生物炭对砷吸附性能 朱司航, 赵晶晶, 尹英杰, 商建英, 陈冲, 瞿婷 (2773)

改性稻壳生物炭对水溶液中甲基橙的吸附效果与机制 史月月, 单锐, 袁浩然 (2783)

厌氧膜生物反应器处理含盐废水运行效能及膜污染特性 闫欢沙, 许振钰, 金春姬, 邵梦雨, 郭亮, 赵阳国 (2793)

污水处理厂出水有机磷污染特征及强化去除 王小东, 王子文, 陈明飞, 王燕, 王硕, 李激 (2800)

碱度对沸石序批式反应器亚硝化的影响 王瑞鑫, 陈婧, 汪晓军, 胡浩林, Karasuta Chayangkun (2807)

活性污泥物理结构对呼吸过程的影响 郭耀, 李志华, 杨成建, 王慧娟, 李亚明, 姜阳 (2813)

好氧颗粒污泥处理畜禽养殖沼液污染物的特性 廖杰, 叶嘉琦, 曾志超, 刘琳, 徐开钦, 刘超翔 (2821)

快速城市化区河流温室气体排放的时空特征及驱动因素 刘婷婷, 王晓锋, 袁兴中, 龚小杰, 侯春丽 (2827)

生物炭对潜流人工湿地污染物去除及NO_x排放影响 邓朝仁, 梁银坤, 黄磊, 方丹丹, 陈玉成, 杜刚 (2840)

曾用抗生素磺胺二甲嘧啶对稻田N₂O排放的影响及其微生物机制 吴杰, 李志琳, 徐佳迎, 王珏, 蒋静艳 (2847)

不同施氮水平对紫花苜蓿草地土壤呼吸和土壤生化性质的影响 胡伟, 张亚红, 李鹏, 张鹏, 李满友, 尤璟涛, 田水泉 (2858)

典型城市化区域土壤重金属污染的空间特征与风险评价 何博, 赵慧, 王铁宇, 孟晶, 肖荣波, 刘胜然, 周云桥, 史斌 (2869)

西南高镉地质背景区农田土壤与农作物的重金属富集特征 刘意章, 肖唐付, 熊燕, 宁增平, 双燕, 李航, 马良, 陈海燕 (2877)

基于 GIS 和受体模型的枸杞地土壤重金属空间分布特征及来源解析 白一茹, 张兴, 赵云鹏, 王幼奇, 钟艳霞 (2885)

喀斯特地区小尺度农业土壤砷的空间分布及污染评价 汪花, 刘秀明, 刘方, 唐启琳, 王世杰 (2895)

黄土高原不同植被带人工刺槐林土壤团聚体稳定性及其化学计量特征 瞿晴, 徐红伟, 吴旋, 孟敏, 王国梁, 薛蓑 (2904)

秸秆还田配施氮肥对喀斯特农田微生物群落及有机碳矿化的影响 徐学池, 苏以荣, 王桂红, 刘坤平, 胡亚军, 陈香碧, 郑小东, 何寻阳 (2912)

生物炭施用及老化对紫色土中抗生素吸附特征的影响 阴文敏, 关卓, 刘琛, 何杨, 杨飞, 唐翔宇 (2920)

稳定性同位素 DNA-SIP 示踪中性紫色土的氮氧化过程 刘天琳, 王智慧, 闫小娟, 赵永鹏, 贾仲君, 蒋先军 (2930)

纳米银和银离子对土壤中硝化微生物及其氮氧化速率的影响 伍玲丽, 张旭, 舒昆慧, 张丽, 司友斌 (2939)

农田沟道土壤中锰氨氧化(Mn-ANAMMOX)过程的探究 陈湜, 李正魁, 覃云斌, 丁帮琛, 陈志浩 (2948)

污泥四环素含量对蚯蚓堆肥中氨氧化菌群的影响 吴颖, 黄魁, 夏慧, 陈景阳 (2954)

《环境科学》征订启事(2929) 《环境科学》征稿简则(2947) 信息(2646, 2656, 2857)

典型非金属矿物制造工艺过程源成分谱特征

赵雪艳¹, 于高峰², 王信梧³, 张向炎³, 殷宝辉¹, 刘盈盈¹, 王歆华¹, 杨文^{1*}, 赵若杰^{1*}

(1. 中国环境科学研究院环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012; 2. 临沂市环境监测站, 临沂 276000; 3. 淄博市环境监测站, 淄博 255000)

摘要: 鉴于我国缺乏非金属矿物制品工艺过程源成分谱(源谱)现状, 采用稀释通道系统于2017年2~6月采集了玻璃制造、陶瓷制造和砖瓦制造共6个非金属矿物制品企业排放的PM₁₀和PM_{2.5}样品, 对样品中的50种化学组分进行分析, 构建相应的源谱, 并对其特征进行研究. 结果表明, 玻璃制造源谱中以Na元素为主(质量分数介于9.2%~18.5%之间), 陶瓷制造源谱中以Al、Si、Ca和Fe等地壳元素为主(质量分数在1.7%~8.7%之间), 耐火砖和页岩砖源谱则是以SO₄²⁻、NH₄⁺等水溶性离子为主, SO₄²⁻和NH₄⁺质量分数分别介于36.9%~48.1%和7.7%~17.0%之间. 不同企业因燃料类型、脱硫脱硝除尘方式不同会对源谱中的化学组分产生影响. 源谱之间的分歧系数(CD)显示除页岩砖制造外, 其余源谱2种粒径之间均较为相似, 同粒径不同源谱间均存在差异, 浮法玻璃与药用玻璃之间和2个陶瓷企业之间的CD值相对较小. 使用R/U值比较源谱间不同组分的差异识别出Na和As元素可作为玻璃制造的标识组分, 陶瓷制造可用Al和Ti来识别, NO₃⁻和NH₄⁺区分耐火砖, SO₄²⁻和NH₄⁺识别页岩砖.

关键词: 源成分谱; 非金属矿物制品; 玻璃制造; 陶瓷制造; 耐火砖制造; 分歧系数; 标识组分

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)06-2526-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.201811100

Characterization of PM₁₀ and PM_{2.5} Source Profiles for Emissions from Nonmetal Mineral Products Manufacturing Processes

ZHAO Xue-yan¹, YU Gao-feng², WANG Xin-wu³, ZHANG Xiang-yan³, YIN Bao-hui¹, LIU Ying-ying¹, WANG Xin-hua¹, YANG Wen^{1*}, ZHAO Ruo-jie^{1*}

(1. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China; 2. Linyi Environmental Monitoring Station, Linyi 276000, China; 3. Zibo Environmental Monitoring Station, Zibo 255000, China)

Abstract: In view of the insufficient source profiles for emissions from nonmetal mineral products manufacturing processes in China, a dilution sampling system was used to collect PM₁₀ and PM_{2.5} samples from glassmaking, ceramics, and firebrick manufacturing sources between February and June of 2017. The characteristics of 50 chemical components in the samples were studied to identify source profiles. The results showed that the dominant composition of particulate matter in glassmaking plant profiles was Na, with percentages ranging from 9.2% to 18.5%. Ceramics profiles were enriched in Al, Si, Ca, and Fe, with percentages ranging from 1.7% to 8.7%. Refractory brick and shale manufacturing process profiles were characterized by high abundances of SO₄²⁻ (36.9%-48.1%) and NH₄⁺ (7.7%-17.0%). Chemical components in the source profiles varied with the different fuel types and desulfurization, denitrification, and dedusting methods. The coefficients of divergence (CD) between PM_{2.5} and PM₁₀ from the same process were similar except for the results from the shale manufacturing process (CD values > 0.3), thus indicating that the elements profiles of PM_{2.5} might be similar to those in PM₁₀. Profiles of the same particle size from different processes were significantly different from one another, with CD values ranging from 0.42 to 0.76. The CD values for float glass and medicinal glass, and the CD values for the two ceramic enterprises were relatively small. The distributions of weighted differences (R/U ratios) were used to compare the differences of components between the source profiles, and results showed that the identified components for glass manufacturing, ceramic manufacturing, fireproof bricks, and page rock bricks were Na and As, Al and Ti, NO₃⁻ and NH₄⁺, and SO₄²⁻ and NH₄⁺, respectively.

Key words: source profile; nonmetal mineral products; glassmaking; ceramics; firebrick manufacturing; coefficient of divergence; identifying component

随着我国城市化进程的加快、经济的快速增长消耗了大量的能源引发了严重的大气污染^[1,2], 特别是京津冀及周边区域, 2013年以来发生了多次区域性雾-霾天气^[3,4], 对大气环境质量和人体健康产生了一定影响^[5,6]. 工业源是大气颗粒物主要排放源之一, Qiu等^[7]使用PMF解析出工业源对2012~2013年兰州市PM₁₀和PM_{2.5}的贡献分别为8.2%和9.0%; 铜冶炼对兰州市2014年PM_{2.5}的贡献占到

了9.6%^[8]; 金属制造对泰安市2014年非采暖季PM_{2.5}的分担率高达19.06%^[9]. 工业源对大气颗粒物的贡献不仅体现在一次排放上, 其排放的SO₂和

收稿日期: 2018-11-15; 修订日期: 2018-12-20

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0212501)

作者简介: 赵雪艳(1988~), 女, 硕士, 助理研究员, 主要研究方向为大气颗粒物来源解析、污染源排放清单, E-mail: zhaoxy@craes.org.cn

* 通信作者, E-mail: yangwen@craes.org.cn; zhaorj@craes.org.cn

NO_x 通过二次转化形成的硫酸盐和硝酸盐也是大气颗粒物的重要来源^[10-12]。2016 年山东省工业 SO₂ 排放量 86.5 万 t, 占到总排放量的 76.2%, 工业 NO_x 排放量 77.9 万 t, 占到总排放量的 63.4%。陶瓷、玻璃、砖瓦等非金属矿物制品制造行业属于重污染行业, 排放大量的烟粉尘、SO₂ 和 NO_x。陶瓷、玻璃、砖瓦制造行业是山东省淄博市和临沂市的主要工业行业, 研究这些典型的非金属制造行业污染源排放的大气颗粒物化学组分特征对识别这些污染源的贡献非常必要。

源谱(污染源成分谱)是污染源的“指纹”, 可以准确定义污染源的排放特征^[13]。源谱是 CMB 模型的必要输入数据, 可为未开展本地采样的地区提供参考数据, 同时也可作为 PMF 因子识别提供依据, 此外, 也是计算污染源排放清单的基础^[14]。建立有效完善的源谱是开展源解析工作的重要基础, 对获取可靠的源解析结果具有重要的理论和现实意义。目前我国已有源谱主要集中在扬尘源^[15]、燃煤源^[16]、机动车尾气^[17]等源类, 工业源相关的研究主要集中在钢铁源^[18]、水泥窑炉^[19], 玻璃、陶瓷和砖瓦等非金属矿物制品行业源谱的研究较少。

本研究采用稀释通道采样系统采集玻璃制造、

陶瓷制造、页岩砖和耐火砖制造企业排放的大气颗粒物样品, 并对其进行化学组分分析, 建立了玻璃、陶瓷和砖瓦制造等典型非金属制造企业工艺过程排放的 PM₁₀、PM_{2.5}成分谱, 填补非金属矿物制品制造源谱的空白, 以期为国内相关城市和区域开展大气颗粒物来源解析提供基础数据, 并为国家环境空气质量管理和控制提供技术支撑。

1 材料与方法

1.1 样品采集

在山东省淄博市、临沂市这 2 个城市共选择了 6 个企业于 2017 年 2~6 月期间采集非金属矿物制品行业中的玻璃制造、陶瓷制造、耐火砖和页岩砖制造企业的 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 样品, 各采样点的具体信息如表 1 所示。使用稀释通道法^[20]进行样品的采集, 使用烟枪在烟道中采集烟气, 通过稀释通道设备(芬兰 Dekati)进行等速采样, 稀释后的气体通过颗粒物采样器(德国 Derenda MVS)采集颗粒物样品, 采样流量为 38.3 L·min⁻¹, 每个采样点同时采集 PM₁₀、PM_{2.5} 两种粒径的样品, 每种粒径需要采集 1 张 Teflon 膜和 1 张石英膜, 根据不同污染源的负载情况, 稀释倍数 2~20 倍不等, 采样时间 105~967 min 不等。

表 1 采样点具体信息

Table 1 Information for the sampling sites

采样点位	城市	燃料类型	产品类型	除尘方式	脱硫方式	脱硝方式	采样期间运行负荷/%
浮法玻璃制造	淄博	煤炭	超白玻璃、浮法玻璃、有色玻璃	高压电 + 布袋	半干法	SNCR	80
药用玻璃制造	淄博	煤炭	药用玻璃包装制品、食品包装瓶	布袋	干法	SCR	90
陶瓷制造 1	淄博	天然气	建筑陶瓷(玻化墙地砖)	布袋	石灰石法	SNCR	100
陶瓷制造 2	临沂	煤炭	建筑陶瓷(磁砖、地板砖)	旋风 + 布袋 + 湿法除尘	双碱法	SNCR	100
耐火砖制造	淄博	煤炭	硅砖、黏土砖	塑料球吸附	双碱法	无	80
页岩砖制造	临沂	煤炭	页岩烧结空心砖	湿法除尘	双碱法	无	80

1.2 样品分析

采样前后石英滤膜和 Teflon 滤膜(美国 Whatman 公司, $\Phi=47$ mm)均使用百万分之一自动称重天平系统(德国康姆德润达, AWS-1 型)恒温恒湿[温度(20±1)℃, 湿度 50%±5%]平衡 24 h 后进行称量。样品采集后放入滤膜盒密封保存。采样后的石英滤膜 1/4 用于 9 种水溶性离子(Na⁺、NH₄⁺、Mg²⁺、K⁺、Ca²⁺、F⁻、Cl⁻、NO₃⁻ 和 SO₄²⁻)分析, 所用方法为离子色谱法^[21], 所用仪器为 DIONEX ICS-1100 型离子色谱(美国 Thermo 公司); 1/4 石英滤膜用于 OC 和 EC 分析, 方法为热光反射法^[21], 所用仪器为 DRI Model 2001 A(美国沙漠所)。1/2 的 Teflon 滤膜用于 Mg、Al、Si、Ca、Ti、Fe、Sr、Zr 和 Ba 等 9 种元素分析, 方法为 ICP-OES^[21], 仪器为电感耦合等离子光

谱仪(美国 Agilent 公司); 另外 1/2 Teflon 滤膜用于 Li、Be、Na、P、K、Sc、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Rb、Y、Mo、Cd、Sn、Sb、Cs、La、Ce、Sm、W、Tl、Pb、Bi、Th 和 U 这 30 种元素分析, 方法为 ICP-MS^[21], 所用仪器 7500a 型电感耦合等离子体质谱仪(美国 Agilent 公司)。

为避免挥发份的影响, 石英滤膜在称重前需要在 500℃烘烤 2 h。每批样品均采取空白样品、质控样品、加标样品、平行测试等质量控制和质量保证措施。

2 结果与讨论

2.1 源谱特征

构建了玻璃、陶瓷、耐火砖和页岩砖等 6 个企

业工艺过程排放的 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 成分谱(图 1). 从图 1 中可以看出浮法玻璃制造的成分谱以 OC 和 Na 为主, OC 占 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 的质量分数远高于其他组分, $\omega(OC)$ 在 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 源谱中分别为 66.9% 和 55.3%, PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 源谱中 $\omega(Na)$ 分别为 11.4% 和 9.2%; 药用玻璃制造源谱中以 SO_4^{2-} 、Na、 NH_4^+ 和 OC 为主, PM_{10} 源谱中这 4 种组分的质量分数分别为 21.2%、18.5%、10.1% 和 7.1%, $PM_{2.5}$ 源谱中这 4 种组分的质量分数分别为 20.8%、18.2%、11.1% 和 7.3%, 此外, K、EC 和 NO_3^- 在药用玻璃源谱中也有一定的占比(质量分数在 2% ~ 4% 之间). 浮法玻璃制造和药用玻璃源谱中 $\omega(Na)$ 均较高, 主要与玻璃制造的原材料有关, 玻璃的原材料包含约 18% 的纯碱和 3% 芒硝及其它含碱金属、碱土金属元素, 药用玻璃的原料中含有 K_2O , 原料入窑时会有小部分挥发进入烟气, 造成烟气颗粒物中 $\omega(Na)$ 偏高^[22]; 但是二者中 $\omega(OC)$ 、 $\omega(SO_4^{2-})$ 存在明显差异, 浮法制造玻璃 $\omega(OC)$ 较高可能与该企业燃料燃烧不充分有关; 药用玻璃源谱中 $\omega(SO_4^{2-})$ 更高, 主要与 2 个企业脱硫方式不同有关, 干法脱硫技术(炉内喷钙法)向烟气中直接喷射石灰石粉与燃煤中析出的 SO_2 发生反应生成 SO_4^{2-} 导致烟气中排出的 $\omega(SO_4^{2-})$ 偏高. Watson 等^[23] 的研究发现玻

璃企业排放的 $PM_{2.5}$ 主要组分为 Na^+ 和 OC, 质量分数分别为 4.2% 和 2.4%, 与本研究较为相似.

陶瓷制造企业 1 中 OC 的质量分数最高, PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 源谱中 $\omega(OC)$ 分别为 24.4% 和 25.4%, 此外, Fe、Al、Si、Mg、Ca 和 SO_4^{2-} 也较为丰富, 在 PM_{10} 源谱中的质量分数分别为 8.7%、6.0%、5.9%、4.3%、3.5% 和 3.8%, 在 $PM_{2.5}$ 源谱中的质量分数分别为 6.8%、3.1%、5.1%、3.3%、2.8% 和 3.4%; 陶瓷制造企业 2 中 $\omega(SO_4^{2-})$ 最高, PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 源谱中 $\omega(SO_4^{2-})$ 分别为 18.9% 和 15.7%, 此外, NH_4^+ 、Na、Al、Si、K、Ca、Fe 和 Cl^- 也有一定的占比, 在 PM_{10} 源谱中的质量分数分别为 6.3%、5.1%、4.8%、3.2%、3.1%、3.8%、2.2% 和 2.3%, 在 $PM_{2.5}$ 源谱中的质量分数分别为 5.8%、2.7%、3.4%、3.2%、3.4%、1.7%、2.7% 和 2.4%. 两个陶瓷厂相比, Al、Si、Ca 和 Fe 均为主要组分, 与其使用的原材料有关^[24]; $\omega(OC)$ 和 $\omega(SO_4^{2-})$ 存在差异主要与二者的燃料类型有关. 此外, 陶瓷企业 2 中 $\omega(Na)$ 高于企业 1, 主要与双碱法的脱硫剂(NaOH 和 Na_2CO_3)有关. Chen 等^[19] 采集的无锡市陶瓷企业下载灰 PM_{10} 成分谱中主要组分为 OC(12.8%)、Ca(12.6%) 和 Al(2.83%), 主要组分种类与本研究一致, 质量分数存在差异主要

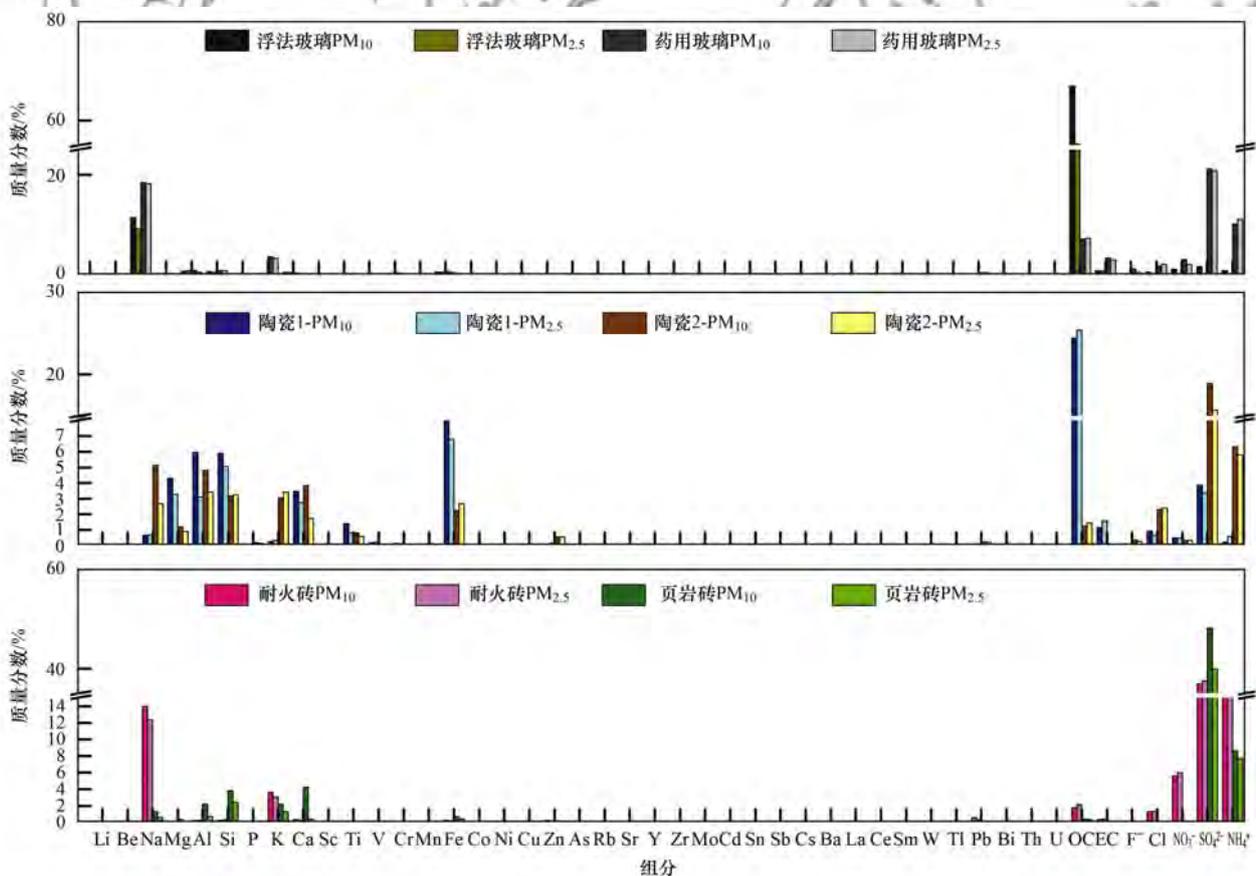


图 1 玻璃、陶瓷、砖瓦制造工艺过程源谱

Fig. 1 Source profiles for the industrial processes of glassmaking, ceramics manufacturing, and firebrick manufacturing

与原料、产品类型以及采样方式有关。土耳其工业陶瓷源谱中也以 Al、Si、Ca 和 Fe 为主^[25]。

耐火砖的原材料主要为莫来石、玻璃相、方石英及石英，页岩砖的材料则是页岩、煤矸石等。从源谱化学组分的质量分数来看，耐火砖和页岩砖中最高的组分均为 SO_4^{2-} ， $\omega(\text{SO}_4^{2-})$ 在 36.9% ~ 48.1% 之间；此外，耐火砖中 NH_4^+ 、Na、 NO_3^- 和 K 的质量分数也较高，这 4 种组分在 PM_{10} 源谱中分别为 15.9%、14.0%、5.6% 和 3.7%，在 $\text{PM}_{2.5}$ 源谱中分别为 17.0%、12.3%、6.0% 和 3.1%；页岩砖中 $\omega(\text{NH}_4^+)$ 也较高 (7.7% ~ 8.6%)， PM_{10} 源谱中 Ca、Si、Al 和 K 也有一定的占比，质量分数在 2.2% ~ 4.3% 之间， $\text{PM}_{2.5}$ 源谱中 Si 和 K 有一定占比 (2.5%、1.3%)，其他元素质量分数则较低 (<1%)。耐火砖和页岩砖源谱成分虽有所差异，但主要组分均为 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ ，与刘亚勇等^[26]研究的砖瓦企业源谱组分相似，耐火砖和页岩砖源谱中的二次水溶性离子 (SO_4^{2-} 和 NH_4^+) 主要由生产环节所排放的气态的硫氧化物、氮氧化物、氯化物和含碳化合物经一定的光化学氧化反应生成^[27]。

3 种非金属矿物制品的源谱中所测主要化学成分质量分数总和范围在 45.9% ~ 86.5% 之间，其中，陶瓷制造源谱中组分和相对偏低 (45.9% ~ 62.4%)，可能是源谱中含有未监测到的组分所致。

2.2 源谱相似性分析

分歧系数 (CD) 常用来比较两组源谱之间的相似性^[28]，CD 值接近 0 时，说明两组源谱的组分非常相似，CD 值接近于 1 时，说明二者组成相差很大^[29]。前人研究中多将 0.3 作为临界值，若 $\text{CD} < 0.3$ ，则认为两组源谱较为相似； $\text{CD} > 0.3$ ，源成分谱之间存在差异^[18]。CD 的计算公式如下：

$$\text{CD}_{jk} = \sqrt{\frac{1}{p} \sum_{i=1}^p \left(\frac{x_{ij} - x_{ik}}{x_{ij} + x_{ik}} \right)^2} \quad (1)$$

式中， CD_{jk} 为 j 类源谱和 k 类源谱之间的分歧系数， x_{ij} 和 x_{ik} 分别为 j 类、 k 类源谱中组分 i 的质量分数， p 为所测主要组分的数量。计算每个企业 PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 源谱之间的分歧系数，除页岩砖 2 种粒径源谱

之间存在差异 (CD 值 0.44) 外，其余 5 个企业 2 种粒径源谱之间 CD 值在 0.16 ~ 0.26 之间，说明同种污染源不同粒径的源成分谱具有一定相似性。页岩砖制造 2 种粒径源谱存在差异可能是 $\text{PM}_{2.5}$ 源谱中各元素占比较低所致，页岩砖生产过程中排放的元素主要集中在粗粒子中。

表 2 中给出了 6 个企业 $\text{PM}_{2.5}$ 源谱、 PM_{10} 源谱之间的 CD 值，可以看出 6 个企业的源谱之间的 CD 值在 0.42 ~ 0.76 之间，两两之间均存在差异。其中，浮法玻璃和陶瓷企业 2 的 CD 值，药用玻璃和陶瓷企业 1 的 CD 值，陶瓷企业 1 和耐火砖的 CD 值均较大，说明玻璃、陶瓷及耐火砖企业的源谱差异较大；浮法玻璃和药用玻璃之间的 CD 值，陶瓷企业 1 和陶瓷企业 2 的 CD 值均较小，说明浮法玻璃和药用玻璃源谱的差异性较小，2 个陶瓷企业源谱的差异性较小，可以分别取他们的均值作为玻璃制造和陶瓷制造的源谱，耐火砖和页岩砖则分别作为耐火砖制造和页岩砖制造的源谱 (表 3)。从表 3 可以看出，不同行业源谱中主要组分质量分数存在明显差异，玻璃制造源谱中 $\omega(\text{OC})$ 明显高于陶瓷、耐火砖和页岩砖制造，约为陶瓷制造的 2 ~ 3 倍，耐火砖制造的 14 ~ 20 倍，页岩砖制造的 83 ~ 92 倍；玻璃制造源谱中 $\omega(\text{Na})$ 也较高，和耐火砖中 Na 的水平相当，约为陶瓷制造的 5 ~ 8 倍，页岩砖的 11 ~ 22 倍；陶瓷制造源谱中 $\omega(\text{Si})$ 明显高于玻璃制造和耐火砖制造，约为其 6 倍和 14 ~ 17 倍；耐火砖和页岩砖制造源谱中 $\omega(\text{SO}_4^{2-})$ 较高，约为玻璃制造和陶瓷制造的 3 ~ 4 倍。表 4 中给出了国内外相关研究中的玻璃、陶瓷、砖瓦制造源谱，玻璃制造 PM_{10} 源谱中的主要组分为 SO_4^{2-} 、OC 和 Na， $\text{PM}_{2.5}$ 源谱中主要组分为 Na^+ 和 OC， $\omega(\text{SO}_4^{2-})$ 高于本研究， $\omega(\text{OC})$ 、 $\omega(\text{Na})$ 和 $\omega(\text{Na}^+)$ 则低于本研究；无锡陶瓷制造源谱中的主要组分与本研究相同，其中 $\omega(\text{Ca})$ 高于本研究， $\omega(\text{Al})$ 、 $\omega(\text{Mg})$ 稍低于本研究， $\omega(\text{OC})$ 和本研究水平相当，国外陶瓷制造源谱中 $\omega(\text{Ca})$ 、 $\omega(\text{Al})$ 和 $\omega(\text{Fe})$ 的质量分数则与本研究水平相当；文献中砖瓦源谱中 $\omega(\text{SO}_4^{2-})$ 明显

表 2 源成分谱间的分歧系数¹⁾

Table 2 Coefficient of divergence between the paired source profiles

项目	$\text{PM}_{2.5}$						PM_{10}					
	浮法玻璃	药用玻璃	陶瓷 1	陶瓷 2	耐火砖	页岩砖	浮法玻璃	药用玻璃	陶瓷 1	陶瓷 2	耐火砖	页岩砖
浮法玻璃	0.00						0.00					
药用玻璃	0.57	0.00					0.54	0.00				
陶瓷 1	0.60	0.68	0.00				0.56	0.71	0.00			
陶瓷 2	0.72	0.57	0.53	0.00			0.73	0.60	0.64	0.00		
耐火砖	0.67	0.46	0.75	0.65	0.00		0.62	0.44	0.76	0.64	0.00	
页岩砖	0.57	0.52	0.60	0.58	0.59	0.00	0.67	0.60	0.64	0.42	0.65	0.00

1) 黑色字体表示 6 个企业的 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 源谱两两之间 CD 值最大的前 3 名

表 3 非金属制品行业工艺过程源成分谱¹⁾/%

Table 3 Source profiles for emissions from nonmetal mineral products manufacturing processes/%

项目	PM ₁₀								PM _{2.5}							
	玻璃制造		陶瓷制造		耐火砖*		页岩砖*		玻璃制造		陶瓷制造		耐火砖*		页岩砖*	
	均值	偏差	均值	偏差	均值	偏差	均值	偏差	均值	偏差	均值	偏差	均值	偏差	均值	偏差
Na	14.9	3.5	2.9	2.2	14.0	1.4	1.3	0.1	13.7	4.5	1.7	1.0	12.3	1.2	0.6	0.1
Mg	0.3	0.0	2.7	1.6	0.1	0.0	0.4	0.0	0.2	0.1	2.1	1.2	0.1	0.0	0.1	0.0
Al	0.8	0.1	5.4	0.6	0.3	0.0	2.2	0.2	0.6	0.1	3.3	0.1	0.3	0.0	0.7	0.1
Si	0.8	0.1	4.5	1.4	0.3	0.0	3.8	0.4	0.6	0.2	4.2	0.9	0.3	0.0	2.5	0.2
P	0.0	0.0	0.1	0.1	0.1	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.1	0.0	0.1	0.0
K	1.9	1.7	1.7	1.4	3.7	0.4	2.2	0.2	1.7	1.5	1.9	1.5	3.1	0.3	1.3	0.1
Ca	0.4	0.1	3.6	0.2	0.3	0.0	4.3	0.4	0.4	0.1	2.2	0.5	0.3	0.0	0.4	0.0
Ti	0.1	0.0	1.1	0.3	0.0	0.0	0.1	0.0	0.1	0.0	0.7	0.1	0.0	0.0	0.1	0.0
V	0.0	0.0	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0
Cr	0.3	0.1	0.1	0.0	0.2	0.0	0.0	0.0	0.2	0.1	0.1	0.0	0.2	0.0	0.0	0.0
Mn	0.0	0.0	0.1	0.1	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Fe	0.6	0.1	5.5	3.3	0.3	0.0	0.7	0.1	0.5	0.0	4.7	2.1	0.2	0.0	0.4	0.0
Ni	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Cu	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Zn	0.1	0.0	0.3	0.2	0.2	0.0	0.2	0.0	0.1	0.0	0.4	0.2	0.2	0.0	0.2	0.0
As	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0
Pb	0.2	0.2	0.1	0.1	0.6	0.1	0.1	0.0	0.2	0.2	0.1	0.1	0.3	0.0	0.1	0.0
OC	37.0	29.9	12.8	11.6	1.8	0.2	0.4	0.0	31.3	24.0	13.4	12.0	2.2	0.2	0.4	0.0
EC	2.0	1.3	0.6	0.5	0.3	0.0	0.0	0.0	1.8	1.1	0.8	0.8	0.4	0.0	0.0	0.0
F ⁻	0.6	0.6	0.2	0.1	0.0	0.0	0.1	0.0	0.2	0.2	0.2	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0
Cl ⁻	1.1	0.6	1.6	0.7	1.3	0.1	0.0	0.0	1.1	1.0	1.5	0.9	1.3	0.1	0.1	0.0
NO ₃ ⁻	2.1	1.0	0.4	0.1	5.6	0.6	0.0	0.0	1.1	0.9	0.4	0.1	6.0	0.6	0.1	0.0
SO ₄ ²⁻	11.4	9.8	11.4	7.5	36.9	3.7	48.1	4.8	10.5	10.3	9.5	6.2	37.5	3.8	39.9	4.0
NH ₄ ⁺	5.5	4.6	3.3	3.1	15.9	1.6	8.6	0.9	5.6	5.5	3.2	2.6	17.0	1.7	7.7	0.8

1) *表示标准偏差为均值的十分之一,因耐火砖和页岩砖只采了1个企业,其标准偏差使用均值的十分之一代替;Li、Be、Sc、Co、Rb、Sr、Y、Zr、Mo、Cd、Sn、Sb、Cs、Ba、La、Ce、Sm、W、Tl、Bi、Th和U元素的质量分数<0.1%,因此未列出

表 4 国内外玻璃、陶瓷、砖瓦制造源谱中主要组分的质量分数¹⁾/%

Table 4 Main chemical compositions of source profiles for glass, ceramics, and brick manufacturing in the literature/%

行业类别	粒径	Al	Ca	Fe	Mg	Na	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Na ⁺	NH ₄ ⁺	OC	EC	文献
玻璃	PM ₁₀	0.04	0.27	0.04	0.05	2.03	0.02	0.02	21.32	2.01	0.22	10.07	1.27	[30]
玻璃	PM _{2.5}	0.00	0.06	0.03	NA	NA	0.05	0.07	NA	4.24	0.34	2.39	0.78	[23]
陶瓷	PM ₁₀	2.83	12.63	0.50	1.20	0.99	0.37	0.18	0.02	—	0.11	12.76	1.43	[19]
陶瓷	PM ₁₀	4.45	5.80	0.97	1.85	2.46	—	—	—	—	—	—	—	[25]
陶瓷	PM _{2.5}	7.23	3.89	1.31	1.36	0.47	—	—	—	—	—	—	—	[25]
砖瓦	PM _{2.5}	4.10	0.54	—	—	—	2.95	0.17	24.64	—	7.59	3.83	0.90	[26]

1) NA 表示组分未检出,“—”表示原文献中未提供该组分数据

低于本研究中, $\omega(\text{Al})$ 则稍高于本研究. 综合来看本研究中源谱的主要组分与国内外研究中的组分种类相似,但其质量分数存在差异,主要与原料、燃料、工艺过程、污染控制措施、采样分析方法等因素有关.

2.3 污染源标识组分

标识组分是指可以将某种源明显与其他源区分开的组分,如 Si 可以作为土壤尘的标识组分^[31], Fe 可以作为炼铁工艺过程源的标识组分, K 可以作为生物质燃烧源的标识组分^[32, 33]. 使用 R/U 分析不同源谱中组分的相似性和差异性,差异性较大的组分可以作为区分该源谱的标识组分^[26]. R/U 计

算公式:

$$\frac{R}{U} = \frac{|\omega(i)_1 - \omega(i)_2|}{\sqrt{\sigma_{i1}^2 + \sigma_{i2}^2}} \quad (2)$$

式中, σ_{i1} 和 σ_{i2} 为两种源谱中组分 i 质量分数平均值的标准偏差. 若两种源谱中某种组分的 $|R/U| > 3$, 则认为这种组分在两种源谱中有一定差异. 表 5 中给出了源谱中 $|R/U| > 3$ 的组分, 玻璃制造源谱中 Na、As、Ti、Ni 和与其他 3 种源谱存在差异, Contini 等^[34] 和 Stortini 等^[35] 使用 PMF 分别解析威尼斯泻湖区 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 来源时, 均使用 As 来标识玻璃制造企业的排放, 而源谱中 Na 的质量分数较高, 明显高于其他源谱, 因此总结出 Na 和 As

元素可以作为玻璃制造源谱的标识组分. Murillo 等^[36]使用 UNMIX 识别 PM_{2.5}来源时, 发现陶瓷制造和砖瓦制造混合源因子谱中 Al、Si、Ca、Fe、Zn、OC、EC 和 SO₄²⁻ 的占比较高, 可以起到相关的标识作用. 陶瓷制造中地壳元素 (Al、Si、Ti、Ca 和 Fe) 的质量分数明显高于其他源谱, 且 Al 和 Ti 元素与其他源谱间的 $|R/U| > 3$, 可将这两种元

素作为陶瓷制造区分其他源类的标识组分. 耐火砖制造源谱中 NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 与其他源谱存在差异, 页岩砖源谱中 SO₄²⁻ 和 NH₄⁺ 与其他源谱存在差异, NO₃⁻、SO₄²⁻ 和 NH₄⁺ 可以起到区分耐火砖、页岩砖制造源谱的作用. 今后 CMB 源解析计算中可通过灵敏度矩阵进一步地验证相关的标识组分.

表 5 源成分谱间 $|R/U| > 3$ 化学组分

Table 5 Chemical composition for which $|R/U| > 3$ between the paired source profiles

$ R/U > 3$	玻璃制造	陶瓷制造	耐火砖制造
陶瓷制造	Na, Al, Ca, Ti, Ni, As		
耐火砖制造	Ti, Fe, Ni, Zn, As, NO ₃ ⁻	Na, Al, Si, Ca, Ti, As, NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺	
页岩砖制造	Na, Si, Ti, Cr, Mn, Ni, Zn	Al, Ti, Cr, As, NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻	Na, Si, OC, Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺

3 结论

(1) 构建了玻璃制造、陶瓷制造和砖瓦制造的源谱, 玻璃制造化学组分以 Na 为主 (质量分数为 9.2% ~ 18.5%), 且其在 PM₁₀ 中的占比高于 PM_{2.5}; 陶瓷制造源谱中地壳元素 (Al、Si、Ca、Fe) 质量分数均较高, 因燃料和脱硫方式不同, 2 个陶瓷企业的 OC、SO₄²⁻ 和 Na 的质量分数存在明显差异; 耐火砖和页岩砖质量分数最高的组分均为 SO₄²⁻ (36.9% ~ 48.1%), 次高组分均为 NH₄⁺ (7.7% ~ 17.0%).

(2) 不同粒径源谱的 CD 值显示除页岩砖外其余 5 个企业 2 种粒径的源谱均较为相似. 同一粒径 6 个企业源谱两两之间的 CD 值显示, 玻璃、陶瓷及耐火砖企业的源谱差异较大; 玻璃和药用玻璃之间, 2 个陶瓷企业之间的差异性相对较小.

(3) 结合源谱中不同组分的 R/U 值及其在源谱中的质量分数得出, Na、As 元素可以作为玻璃制造源谱的标识组分, Al、Ti 可以用来识别陶瓷制造, 耐火砖源谱中 NO₃⁻、NH₄⁺, 页岩砖源谱中 SO₄²⁻、NH₄⁺ 可以分别起到将其同其他源谱区分的作用.

参考文献:

[1] Jiang N, Li Q, Su F C, *et al.* Chemical characteristics and source apportionment of PM_{2.5} between heavily polluted days and other days in Zhengzhou, China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **66**: 188-198.

[2] Tian Y Z, Chen G, Wang H T, *et al.* Source regional contributions to PM_{2.5} in a megacity in China using an advanced source regional apportionment method[J]. *Chemosphere*, 2016, **147**: 256-263.

[3] Shao P Y, Tian H Z, Sun Y J, *et al.* Characterizing remarkable changes of severe haze events and chemical compositions in multi-size airborne particles (PM₁, PM_{2.5} and PM₁₀) from January 2013 to 2016-2017 winter in Beijing, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **189**: 133-144.

[4] Cheng X H, Sun Z A, Li D P, *et al.* Short-term aerosol radiative effects and their regional difference during heavy haze episodes in

January 2013 in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **165**: 248-263.

- [5] Li J, Du H Y, Wang Z F, *et al.* Rapid formation of a severe regional winter haze episode over a mega-city cluster on the North China Plain[J]. *Environmental Pollution*, 2017, **223**: 605-615.
- [6] Li R, Yang X, Fu H B, *et al.* Characterization of typical metal particles during haze episodes in Shanghai, China[J]. *Chemosphere*, 2017, **181**: 259-269.
- [7] Qiu X H, Duan L, Gao J, *et al.* Chemical composition and source apportionment of PM₁₀ and PM_{2.5} in different functional areas of Lanzhou, China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2016, **40**: 75-83.
- [8] Wang Y N, Jia C H, Tao J, *et al.* Chemical characterization and source apportionment of PM_{2.5} in a semi-arid and petrochemical-industrialized city, Northwest China[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **573**: 1031-1040.
- [9] Liu B S, Song N, Dai Q L, *et al.* Chemical composition and source apportionment of ambient PM_{2.5} during the non-heating period in Taian, China[J]. *Atmospheric Research*, 2016, **170**: 23-33.
- [10] Zhang R, Sun X S, Shi A J, *et al.* Secondary inorganic aerosols formation during haze episodes at an urban site in Beijing, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **177**: 275-282.
- [11] Yang X W, Cheng S Y, Li J B, *et al.* Characterization of chemical composition in PM_{2.5} in Beijing before, during, and after a large-scale international event[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2017, **17**(4): 896-907.
- [12] Li W G, Liu X G, Zhang Y H, *et al.* Characteristics and formation mechanism of regional haze episodes in the Pearl River Delta of China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **63**: 236-249.
- [13] Cai T Q, James S J, Huang W, *et al.* Sensitivity of source apportionment results to mobile source profiles[J]. *Environmental Pollution*, 2016, **219**: 821-828.
- [14] Chen P L, Wang T J, Lu X B, *et al.* Source apportionment of size-fractionated particles during the 2013 Asian Youth Games and the 2014 Youth Olympic Games in Nanjing, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **579**: 860-870.
- [15] 张伟, 姬亚芹, 张军, 等. 辽宁省典型城市道路尘 PM_{2.5} 成分谱研究[J]. *中国环境科学*, 2018, **38**(2): 412-417.
- Zhang W, Ji Y Q, Zhang J, *et al.* Study on the road dust source profile of PM_{2.5} in Liaoning Province typical cities[J]. *China*

- Environmental Science, 2018, **38**(2): 412-417.
- [16] Pei B, Wang X L, Zhang Y H, *et al.* Emissions and source profiles of PM_{2.5} for coal-fired boilers in the Shanghai megacity, China[J]. Atmospheric Pollution Research, 2016, **7**(4): 577-584.
- [17] Liu Y Y, Zhang W J, Yang W, *et al.* Chemical compositions of PM_{2.5} emitted from diesel trucks and construction equipment[J]. Aerosol Science and Engineering, 2018, **2**(2): 51-60.
- [18] Guo Y Y, Gao X, Zhu T Y, *et al.* Chemical profiles of PM emitted from the iron and steel industry in northern China[J]. Atmospheric Environment, 2017, **150**: 187-197.
- [19] Chen P L, Wang T J, Dong M, *et al.* Characterization of major natural and anthropogenic source profiles for size-fractionated PM in Yangtze River Delta[J]. Science of the Total Environment, 2017, **598**: 135-145.
- [20] Kong S F, Ji Y Q, Li Z Y, *et al.* Emission and profile characteristic of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} and PM₁₀ from stationary sources based on dilution sampling[J]. Atmospheric Environment, 2013, **77**: 155-165.
- [21] 赵雪艳, 谷超, 杨焕明, 等. 新疆奎独乌区域冬季大气重污染过程 PM_{2.5} 组成特征及来源解析[J]. 环境科学研究, 2017, **30**(10): 1515-1523.
Zhao X Y, Gu C, Yang H M, *et al.* Chemical composition and source apportionment of PM_{2.5} during a winter air pollution episode in the Kui-Du-Wu area of Xinjiang Uygur autonomous region [J]. Research of Environmental Sciences, 2017, **30**(10): 1515-1523.
- [22] 赵卫凤, 王洪华, 倪爽英, 等. 平板玻璃烟气污染物排放特性及治理技术现状[J]. 环境科学与技术, 2017, **40**(S2): 107-111.
Zhao W F, Wang H H, Ni S Y, *et al.* Emission characteristics and treatment technology status of the pollutants from flat glass furnace[J]. Environmental Science & Technology, 2017, **40**(S2): 107-111.
- [23] Watson J G, Chow J C. Source characterization of major emission sources in the Imperial and Mexicali Valleys along the US/Mexico border[J]. Science of the Total Environment, 2001, **276**(1-3): 33-47.
- [24] 方平, 唐子君, 唐志雄, 等. 陶瓷炉窑烟气污染物排放特性及治理技术现状[J]. 环境科学与技术, 2014, **37**(12): 68-72, 192.
Fang P, Tang Z J, Tang Z X, *et al.* Emission characteristics and its treatment technology status of the pollutants from ceramic furnace flue gas [J]. Environmental Science & Technology, 2014, **37**(12): 68-72, 192.
- [25] Yatkin S, Bayram A. Determination of major natural and anthropogenic source profiles for particulate matter and trace elements in Izmir, Turkey[J]. Chemosphere, 2008, **71**(4): 685-696.
- [26] 刘亚勇, 张文杰, 白志鹏, 等. 我国典型燃煤源和工业过程源排放 PM_{2.5} 成分谱特征[J]. 环境科学研究, 2017, **30**(12): 1859-1868.
Liu Y Y, Zhang W J, Bai Z P, *et al.* Characteristics of PM_{2.5} chemical source profiles of coal combustion and industrial process in China [J]. Research of Environmental Sciences, 2017, **30**(12): 1859-1868.
- [27] 杨薇桦, 姚志良, 曹鑫悦, 等. 典型砖窑烟气污染物排放特征研究[J]. 环境科学与技术, 2015, **38**(8): 38-43.
Yang W H, Yao Z L, Cao X Y, *et al.* Emission characteristics of pollutants from typical brick kilns[J]. Environmental Science & Technology, 2015, **38**(8): 38-43.
- [28] 王士宝, 姬亚芹, 李树立, 等. 天津市春季道路降尘 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中的元素特征[J]. 环境科学, 2018, **39**(3): 990-996.
Wang S B, Ji Y Q, Li S L, *et al.* Characteristics of elements in PM_{2.5} and PM₁₀ in road dust fall during spring in Tianjin [J]. Environmental Science, 2018, **39**(3): 990-996.
- [29] Bano S, Pervez S, Chow J C, *et al.* Coarse particle (PM_{10-2.5}) source profiles for emissions from domestic cooking and industrial process in Central India [J]. Science of the Total Environment, 2018, **627**: 1137-1145.
- [30] 刘晓宇. 典型固定燃烧源颗粒物排放特征研究[D]. 北京: 中国环境科学研究院, 2007.
- [31] 马召辉, 梁云平, 张健, 等. 北京市典型排放源 PM_{2.5} 成分谱研究[J]. 环境科学学报, 2015, **35**(12): 4043-4052.
Ma Z H, Liang Y P, Zhang J, *et al.* PM_{2.5} profiles of typical sources in Beijing [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2015, **35**(12): 4043-4052.
- [32] Tian Y Z, Chen J B, Zhang L L, *et al.* Source profiles and contributions of biofuel combustion for PM_{2.5}, PM₁₀ and their compositions, in a city influenced by biofuel stoves [J]. Chemosphere, 2017, **189**: 255-264.
- [33] Ni H Y, Tian J, Wang X L, *et al.* PM_{2.5} emissions and source profiles from open burning of crop residues [J]. Atmospheric Environment, 2017, **169**: 229-237.
- [34] Contini D, Belosi F, Gambaro A, *et al.* Comparison of PM₁₀ concentrations and metal content in three different sites of the Venice Lagoon: an analysis of possible aerosol sources [J]. Journal of Environmental Sciences, 2012, **24**(11): 1954-1965.
- [35] Stortini A M, Freda A, Cesari D, *et al.* An evaluation of the PM_{2.5} trace elemental composition in the Venice Lagoon area and an analysis of the possible sources [J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(40): 6296-6304.
- [36] Murillo J H, Ramos A C, Angeles García F, *et al.* Chemical composition of PM_{2.5} particles in Salamanca, Guanajuato Mexico: source apportionment with receptor models [J]. Atmospheric Research, 2012, **107**: 31-41.

CONTENTS

Concurrent Measurement of Wet and Bulk Deposition of Trace Metals in Urban Beijing	ZHANG Guo-zhong, PAN Yue-peng, TIAN Shi-li, <i>et al.</i> (2493)
Concentration and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} Collected in Urban and Suburban Areas of Beijing	XU Jing, LI Xing-ru, ZHANG Lan, <i>et al.</i> (2501)
Secondary Aerosol Formation in Urban Shanghai: Insights into the Roles of Photochemical Oxidation and Aqueous-Phase Reaction	GAO Jie, QIAO Li-ping, LOU Sheng-rong, <i>et al.</i> (2510)
Secondary Inorganic Pollution Characteristics During Heavy Pollution Episodes of 2017 in Tianjin	XU Hong, XIAO Zhi-mei, CHEN Kui, <i>et al.</i> (2519)
Characterization of PM ₁₀ and PM _{2.5} Source Profiles for Emissions from Nonmetal Mineral Products Manufacturing Processes	ZHAO Xue-yan, YU Gao-feng, WANG Xin-wu, <i>et al.</i> (2526)
Characteristics of Component Particle Size Distributions of Particulate Matter Emitted from a Waste Incineration Plant	YU Zhuo-jun, WU Jian-hui, ZHANG Yu-fen, <i>et al.</i> (2533)
Characteristics and Source Apportionment of Carbon Components in Road Dust PM _{2.5} and PM ₁₀ During Spring in Tianjin Derived by Using the Quadrat Sampling Method	MA Yan, JI Ya-qin, GUO Ji-liang, <i>et al.</i> (2540)
Urban Aerosol Hygroscopicity During Haze Weather	YANG Su-ying, TIAN Zhi-jie, ZHANG Tie-ning, <i>et al.</i> (2546)
Atmospheric Pollution Characteristics and Inhalation Exposure Risk of Nitrated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in PM _{2.5} at the Ningdong Energy and Chemical Industry Base, Northwest China	LIU Pan-liang, JU Yuan-li, MAO Xiao-xuan, <i>et al.</i> (2556)
Health Benefit Evaluation for PM ₁₀ and PM _{2.5} Pollution Control in Zhengzhou, China, 2014-2016	HAN Shi-jie, WANG Jia, YAN Qi-she, <i>et al.</i> (2565)
Spatial-temporal Distribution of Aerosol Optical Depth and Its Main Influence Types in China During 1990-2017	LIU Ying, LIN Ai-wen, QIN Wen-min, <i>et al.</i> (2572)
Research on the Pollution Characteristics and Causality of Haze-sand Air Pollution in Beijing in Spring	WANG Yao-ting, LI Qing-chun, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (2582)
Vessel Emission Inventories and Emission Characteristics for Inland Rivers in Jiangsu Province	XU Wen-wen, YIN Cheng-qi, XU Xue-ji, <i>et al.</i> (2595)
Atmospheric Nitrogen Dioxide, Nitric Acid, Nitrate Nitrogen Concentrations, and Wet and Dry Deposition Rates in a Double Rice Region in Subtropical China	OUYANG Xiu-qin, WANG Bo, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2607)
Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation and Moisture Sources in the Headwaters of the Yangtze River	WANG Shao-yong, WANG Qiao-li, WU Jin-kui, <i>et al.</i> (2615)
Historical Trends of Atmospheric Trace Metal Pollution in Northern Guizhou Province as Reconstructed from Alpine Lake Sediments	LIANG Meng-yao, LIU En-feng, ZHANG En-lou, <i>et al.</i> (2624)
Distribution Characteristics of Microplastics in Qingdao Coastal Beaches	LUO Ya-dan, LIN Qian-hui, JIA Fang-li, <i>et al.</i> (2631)
Pollution Characteristics of Microplastics in Migratory Bird Habitats Located Within Poyang Lake Wetlands	LIU Shu-li, JIAN Min-fei, ZHOU Long-yin, <i>et al.</i> (2639)
Use of the Nitrogen/Carbon Ratio (N/C) and Two End-Member Sources Mixing Model to Identify the Origins of Dissolved Organic Matter from Soils in the Water-Level Fluctuation Zones of the Three Gorges Reservoir	JIANG Tao, JOERI Kaal, LIANG Jian, <i>et al.</i> (2647)
Effects of Photosynthesis of Submerged Aquatic Plants on CDOM in a Karst Water System: A Case Study from Xueyu Cave, Chongqing, China	FAN Jia-xin, JIANG Yong-jun, HE Qiu-fang, <i>et al.</i> (2657)
Indicators of Groundwater Evolution Processes Based on Hydrochemistry and Environmental Isotopes: A Case Study of the Dongyuan Drinking Water Source Area in Ji'nan City	ZHANG Ya, SU Chun-li, MA Yan-hua, <i>et al.</i> (2667)
Water Quality Analysis and Health Risk Assessment for Groundwater at Xiangshui, Chongzuo	ZHOU Jin-mei, JIANG Zhong-cheng, XU Guang-li, <i>et al.</i> (2675)
Chemical Characteristics of Groundwater and Material Sources Analysis in Buckwheat Field, Yunnan Province	ZHANG Yong, GUO Chun-qing, ZHU Yan-guang, <i>et al.</i> (2686)
C and N Transport Flux and Associated Changes of Water Quality Parameters from a Multiscale Subtropical Watershed in the Poyang Lake Area	LU Yao, GAO Yang, JIA Jun-jie, <i>et al.</i> (2696)
Pollutant Transport Analysis and Source Apportionment of the Entire Non-point Source Pollution Process in Combined Sewer Systems	FANG Jin-xiu, XIE Wen-xia, ZHOU Yu-xi, <i>et al.</i> (2705)
Nitrogen Removal Efficiencies from Road Runoff by Dry Grass Swales with a Shallow Substrate Layer	DUAN Jin-kai, LI Tian, ZHANG Jia-wei (2715)
Migration Characteristics of Manganese During Rainfall Events and Its Impacts on Water Quality in a Drinking Water Source Reservoir	DENG Li-fan, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2722)
Potential for Phosphorus Uptake by Bed Sediments and Its Response to Carbon Additions in the Shiwuli River, Chaohu Lake Basin	LI Ru-zhong, BAO Qin, ZHANG Rui-gang, <i>et al.</i> (2730)
Sources and Distribution of Phosphorus in Sediments of the Jimpen Reservoir	MAO Xue-jing, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2738)
Water Quality Characteristics and Distribution of Bacterial Communities During Thermal Stratification in the Miyun Reservoir	WANG Yu-bing, WANG Xiao-yan, PANG Shu-jiang, <i>et al.</i> (2745)
Relationship Between the Vertical Distribution of Nutrients and Bacterial Community Structures in Sediment Interstitial Waters of Stratified Reservoirs with Different Water Temperatures	WANG Shen, ZHANG Si-si, XU You, <i>et al.</i> (2753)
Accumulation Characteristics and Release Regularity of Nutrients in Sediments of a Surface-flow Constructed Wetland After Long-term Operation	ZHU Yi-meng, JIANG Cui-ling, ZHU Li-qin, <i>et al.</i> (2764)
Application of Goethite Modified Biochar for Arsenic Removal from Aqueous Solution	ZHU Si-hang, ZHAO Jing-jing, YIN Ying-jie, <i>et al.</i> (2773)
Effects and Mechanisms of Methyl Orange Removal from Aqueous Solutions by Modified Rice Shell Biochar	SHI Yue-yue, SHAN Riu, YUAN Hao-ran (2783)
Performance and Membrane Fouling Properties in an Anaerobic Membrane Bioreactor for Salty Wastewater	YAN Huan-xi, XU Zhen-yu, JIN Chun-ji, <i>et al.</i> (2793)
Pollution Characteristics and Enhanced Removal of Organic Phosphorus in Effluent from a Wastewater Treatment Plant	WANG Xiao-dong, WANG Zi-wen, CHEN Ming-fei, <i>et al.</i> (2800)
Effects of Alkalinity on Partial Nitrification in a Zeolite Sequencing Batch Reactor	WANG Rui-xin, CHEN Jing, WANG Xiao-jun, <i>et al.</i> (2807)
Effects of the Physical Structure of Activated Sludge on Respiration Processes	GUO Yao, LI Zhi-hua, YANG Cheng-jian, <i>et al.</i> (2813)
Performance of an Aerobic Granular Reactor Treating Biogas Slurry from Pig Farm	LIAO Jie, YE Jia-qi, ZENG Zhi-chao, <i>et al.</i> (2821)
Spatial-temporal Characteristics and Driving Factors of Greenhouse Gas Emissions from Rivers in a Rapidly Urbanizing Area	LIU Ting-ting, WANG Xiao-feng, YUAN Xing-zhong, <i>et al.</i> (2827)
Influences of Biochar on Pollutant Removal Efficiencies and Nitrous Oxide Emissions in a Subsurface Flow Constructed Wetland	DENG Chao-ren, LIANG Yin-kun, HUANG Lei, <i>et al.</i> (2840)
Effects of the Veterinary Antibiotic Sulfamethazine on N ₂ O Emissions and the Associated Microbiological Mechanism in a Rice Field	WU Jie, LI Zhi-lin, XU Jia-ying, <i>et al.</i> (2847)
Effects of Different Levels of Nitrogen Fertilization on Soil Respiration Rates and Soil Biochemical Properties in an Alfalfa Grassland	HU Wei, ZHANG Ya-hong, LI Peng, <i>et al.</i> (2858)
Spatial Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils from a Typical Urbanized Area	HE Bo, ZHAO Hui, WANG Tie-yu, <i>et al.</i> (2869)
Accumulation of Heavy Metals in Agricultural Soils and Crops from an Area with a High Geochemical Background of Cadmium, Southwestern China	LIU Yi-zhang, XIAO Tang-fu, XIIONG Yan, <i>et al.</i> (2877)
Spatial Distribution Characteristics and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Chinese Wolfberry Land Based on GIS and the Receptor Model	BAI Yi-ru, ZHANG Xing, ZHAO Yun-peng, <i>et al.</i> (2885)
Spatial Distribution and Pollution Assessment of As at a Small Scale in Agricultural Soils of the Karst Region	WANG Hua, LIU Xiu-ming, LIU Fang, <i>et al.</i> (2895)
Soil Aggregate Stability and Its Stoichiometric Characteristics in <i>Robinia pseudoacacia</i> Forest within Different Vegetation Zones on the Loess Plateau, China	QU Qing, XU Hong-wei, WU Xuan, <i>et al.</i> (2904)
Straw Returning Plus Nitrogen Fertilizer Affects the Soil Microbial Community and Organic Carbon Mineralization in Karst Farmland	XU Xue-chi, SU Yi-rong, WANG Gui-hong, <i>et al.</i> (2912)
Effects of Biochar Application and Ageing on the Adsorption of Antibiotics in Purple Soil	YIN Wen-min, GUAN Zhuo, LIU Chen, <i>et al.</i> (2920)
Ammonia Oxidation in a Neutral Purple Soil Measured by the ¹⁵ N-DNA-SIP Method	LIU Tian-lin, WANG Zhi-hui, YAN Xiao-juan, <i>et al.</i> (2930)
Effects of Silver Nanoparticles and Silver Ions on Soil Nitrification Microorganisms and Ammonification	WU Ling-li, ZHANG Xu, SHU Kun-hui, <i>et al.</i> (2939)
Insight into the Process of Mn-ANAMMOX in Soils of Agricultural Drainage Ditches	CHEN Shi, LI Zheng-kui, QIN Yun-bin, <i>et al.</i> (2948)
Effects of Different Concentrations of Tetracycline in Sludge on Ammonia Oxidizers During Vermicomposting	WU Ying, HUANG Kui, XIA Hui, <i>et al.</i> (2954)