

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



2020

Vol.41 No.5
第41卷 第5期

目次

上海大气 PM _{2.5} 来源解析对比: 基于在线数据运用 3 种受体模型	周敏 (1997)
不同浓度臭氧对单颗粒气溶胶化学组成的影响	吴梦曦, 成春雷, 黄渤, 李梅, 陈多宏 (2006)
二次有机气溶胶壳对氯化钠核吸湿性的影响: 基于单颗粒微观尺度	张淑佳, 徐亮, 郭新梅, 黄道, 李卫军 (2017)
城区与县区不同空气质量下碳组分污染特征对比分析	李欣悦, 张凯山, 邓林俐, 向铎鹏, 武文琪, 殷子渊 (2026)
临沂市 PM _{2.5} 和 PM ₁₀ 中元素分布特征及来源解析	陆平, 赵雪艳, 殷宝辉, 张楠, 王歆华, 余浩, 杨文, 王晓丽 (2036)
西安市秋冬季市区与山区微生物气溶胶组成特征及来源	谢雯文, 路瑞, 慕飞飞, 戚玉珍, 白文艳, 李彦鹏 (2044)
北京市典型餐饮企业大气污染物排放特征	何万清, 王天意, 邵霞, 聂磊, 石爱军 (2050)
基于随机森林模型的中国 PM _{2.5} 浓度影响因素分析	夏晓圣, 陈菁菁, 王佳佳, 程先富 (2057)
大气污染联合治理分区视角下的中国 PM _{2.5} 关联关系时空变异特征分析	杨文涛, 黄慧坤, 魏东升, 赵斌, 彭焕华 (2066)
基于地-空观测数据的粤港澳大湾区大气污染调查及时空演变特征	王耀庭, 梁加成, 郑祚芳, 李青春, 李威, 窦俊 (2075)
龙子祠泉域岩溶地下水水化学特征及成因	唐春雷, 郑秀清, 梁永平 (2087)
三峡水库总磷时空变化特征及滞留效应分析	唐小娅, 童思陈, 黄国鲜, 许光祥, 李丹 (2096)
三峡水库汛后蓄水期典型支流溶解氧与叶绿素 a 垂向分布特征	杨凡, 纪道斌, 王丽婧, 李虹, 李莹杰 (2107)
汉丰湖正式运行年水体营养盐分布特征	付适, 倪九派, 何丙辉, 李天阳, 唐毅, 钱田, 向可翠 (2116)
白洋淀水体富营养化和沉积物污染时空变化特征	刘鑫, 史斌, 孟晶, 周云桥, 可欣, 王铁宇 (2127)
新安江水库悬浮颗粒物时空分布、沉降通量及其营养盐效应	史鹏程, 朱广伟, 杨文斌, 许海, 朱梦圆, 刘明亮, 虞左明, 吴志旭, 郑文婷, 王裕成, 笄文怡, 胡林娜 (2137)
不同水文情景下高邮湖、南四湖和东平湖有色可溶性有机物的生物可利用性特征	张柳青, 石玉, 李元鹏, 郭燕妮, 周蕾, 周永强, 张运林, 杨艳 (2149)
水源水库藻类功能群落演替特征及水质评价	李衍庆, 黄廷林, 张海涵, 温成成, 杨尚业, 林子深, 高欣 (2158)
人工强制混合对金盆水库水体藻类群落结构时空演替的影响	王晨旭, 黄廷林, 李楠, 齐允之, 徐金兰, 司凡, 张晗, 路林超 (2166)
雄安新区-白洋淀冬季冰封期水体好氧反硝化菌群落空间分布特征及驱动因素	周石磊, 孙悦, 岳智丞, 张航, 王周强, 刘世崇, 彭瑞哲, 苑世超, 李再兴, 崔建升 (2177)
分层型水库水体好氧不产氧光合细菌时空演替特征	张海涵, 王燕, 黄廷林, 王晨旭, 路林超, 司凡, 李楠, 刘凯文, 闫苗苗, 苗雨甜 (2188)
大型通江湖泊有色可溶性有机物对不同水文情景的响应	郭燕妮, 李元鹏, 石玉, 张柳青, 周蕾, 周永强, 张运林, 韩龙飞 (2198)
秦岭北麓河流夏季有色溶解有机物分布特征及影响因素	林子深, 黄廷林, 杨尚业, 温成成, 李衍庆, 周石磊, 宋选社 (2210)
长江下游流水体中多环芳烃的分布及生态风险评估	贾天琪, 雷荣荣, 武小琳, 倪涛涛, 孙树睿, 郭伟, 刘文彬 (2221)
太湖水体中 NSAIDs 的时空分布规律和生态风险评价	廉杰, 李祎飞, 王晓喧, 叶彬, 邹华, 史红星 (2229)
8 种典型 PhACs 在水中的赋存、生态风险及其对大型溞的影响	徐鑫磊, 刘建超, 陆光华 (2239)
我国南方桉树人工林区水库沉积物污染物的分布特征及迁移规律	朱雅, 李一平, 罗凡, 李荣辉, 黄列, 程一鑫, 蒋裕丰 (2247)
基于连续监测的城市内河返黑返臭机制初探: 以南宁市二坑溪为例	李永新, 王威, 何妹, 申泰铭 (2257)
城郊流域源汇景观格局与水体抗生菌的关系	李敏, 唐剑峰, 陈利顶, 赵方凯, 冯青郁, 杨磊 (2264)
城市雨水径流中溶解性有机物的分子化学多样性	聂云汉, 陈浩, 李磊, 朱奔, 赵昕, 贾其隆, 徐慧婷, 叶建锋 (2272)
方解石/氯磷灰石混合物添加对水体内源磷迁移转化的调控效应和机制	柏晓云, 林建伟, 詹艳慧, 常明玥, 吴俊麟, 辛慧敏, 黄良君 (2281)
不同环境条件下铁矿物和针铁矿纳米颗粒稳定性	王智巧, 马杰, 陈雅丽, 翁莉萍, 顾亚陶, 李永涛 (2292)
向日葵秸秆生物炭强化 Fe(III)/S ₂ O ₈ ²⁻ 体系降解苯甲酸	孙鹏, 张凯凯, 张玉, 张延荣 (2301)
非活化单过硫酸盐降解柳氮磺胺吡啶: 动力学及机制	丁曦, 张学维, 周润生, 宋哲, 严佳颖, 周磊, 修光利 (2310)
贵州某规模化养猪场废水中抗生素的污染特征及去除效果	杨钊, 李江, 向福亮, 李彦澄, 马凯, 谢锋 (2320)
新型填料 A/O 生物滤池处理低碳氮比农村污水脱氮	赵远哲, 杨永哲, 王海燕, 储昭升, 常洋, 董伟羊, 闫国凯, 王欢, 李丛宇 (2329)
贫营养好氧反硝化菌株的脱氮特性及氮/碳平衡分析	文刚, 王彤, 黄廷林, 万琪琪, 曹瑞华, 寇莉青, 杨尚业 (2339)
连续流 SNAD 工艺处理猪场沼液启动过程中微生物种群演变及脱氮性能	秦嘉伟, 信欣, 鲁航, 张萍萍, 王露蓉, 邹长武, 郭俊元 (2349)
不同培养条件厌氧氨氧化颗粒污泥性质及微生物群落结构差异	姜澄, 郭萌蕾, 谢军祥, 常尧彬, 谢嘉玮, 陈重军, 沈耀良 (2358)
反硝化除磷耦合部分亚硝化-厌氧氨氧化一体式工艺的启动	陈亚, 印雯, 张星星, 张钰, 宋吟玲, 吴鹏, 徐乐中 (2367)
土壤环境承载力评价体系构建与应用	李笑诺, 丁寿康, 陈卫平, 王夏晖, 吕斯丹, 刘睿 (2373)
磁性生物炭的合成及对土壤重金属污染的钝化效果	王俊楠, 程珊珊, 展文豪, 任强, 马晓宇, 王洋洋 (2381)
还原增溶强化 EGTA 淋洗修复重金属污染土壤	张金永, 朱玉婷, 王明新, 韩堂, 葛嘉琦 (2390)
不同价态铬和土壤理化性质对大麦根系毒性阈值的影响	付平南, 贡晓飞, 罗丽韵, 王琪, 李花粉 (2398)
生物炭施用对紫色土旱坡地土壤氮流失形态及通量的影响	王舒, 王子芳, 龙翼, 严冬春, 慈恩, 徐国鑫, 李妍, 高明 (2406)
长期撂荒恢复土壤团聚体组成与有机碳分布关系	王兴, 钟泽坤, 张欣怡, 吴少君, 卢绪巧, 杨改河, 任成杰, 韩新辉 (2416)
施用生物炭对壤土土壤微生物代谢养分限制和碳利用效率的影响	王强, 耿增超, 许晨阳, 郭靖宇, 李倩倩, 刘莉丽, 赵汉红, 杜旭光 (2425)
间种高粱及施用大颗粒尿素对茶园 N ₂ O 排放的影响	张珂彬, 刘新亮, 康曼, 王毅, 沈健林, 李勇 (2434)
缙云山森林植被类型对土壤 N ₂ O 相关功能微生物的影响	王盛燕, 王富华, 罗东海, 吕盛, 王子芳, 高明 (2445)
咸水滴灌对棉田土壤 N ₂ O 排放和反硝化细菌群落结构的影响	郭慧楠, 马丽娟, 黄志杰, 李美琪, 侯振安, 阎伟 (2455)
有机质提升对酸性红壤氮循环功能基因及功能微生物的影响	储成, 吴赵越, 黄欠如, 韩成, 钟文辉 (2468)
模拟酸雨对毛竹阔叶林过渡带土壤真菌结构及其多样性的影响	王楠, 潘小承, 王传宽, 白尚斌 (2476)
海洋沉积物中细菌 DNA 和 RNA 水平群落差异	李明月, 杨雨虹, 米铁柱, 贺惠, 甄毓 (2485)
2003 ~ 2013 年中国湿地变化的空间格局与关联性	周婷, 马姣姣, 徐颂军 (2496)

临沂市 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中元素分布特征及来源解析

陆平¹, 赵雪艳², 殷宝辉², 张楠², 王歆华², 余浩^{2,3}, 杨文^{2*}, 王晓丽^{1*}

(1. 天津理工大学环境科学与安全工程学院, 天津 300384; 2. 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; 3. 北京师范大学水科学研究院, 北京 100875)

摘要: 为探究临沂市 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中元素的污染特征及来源, 于2016年12月至2017年10月对临沂市环境空气中 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 进行了同步采样. 利用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)和电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP-OES)测定了其中的23种元素, 并采用富集因子法和PMF法分析其来源. 结果表明, 采样期间临沂市 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中主要元素为Si、Ca、Al、Fe、K、Na和Mg, 分别占所测元素的质量分数为92.93%和94.61%. 18种元素(除Ti、Ni、Mo、Cd和Mg)的浓度水平在冬春季最高, 夏秋季最低. 其中Si、Al、Ca、K和Na表现为春季浓度最高, 主要分布在粗颗粒中; Cu、Zn、Pb和Sb表现为冬季浓度最高, 主要分布在细颗粒中. 富集因子结果表明Cd、Sb和Bi元素富集程度显著, 主要受燃煤、工业生产、垃圾焚烧等人为源共同影响. PMF源解析结果表明, 临沂市 $PM_{2.5}$ 中元素来源主要有燃煤和铜冶炼的混合源、市政垃圾焚烧源、扬尘源、机动车排放和工业源, 贡献率分别为22.64%、7.49%、41.22%、14.71%和13.94%. PM_{10} 中元素来源主要有扬尘源、燃煤和铜冶炼的混合源、机动车排放和工业源, 贡献率分别为55.47%、19.80%、7.48%和12.83%. 由此可见, 扬尘源和燃煤与铜冶炼的混合源是临沂市颗粒物污染形成过程中的重要源类.

关键词: 临沂市; $PM_{2.5}$; PM_{10} ; 元素; 源解析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)05-2036-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201909237

Distribution Characteristics and Source Apportionment of Elements Bonded with $PM_{2.5}$ and PM_{10} in Linyi

LU Ping¹, ZHAO Xue-yan², YIN Bao-hui², ZHANG Nan², WANG Xin-hua², YU Hao^{2,3}, YANG Wen^{2*}, WANG Xiao-li^{1*}

(1. College of Environmental Science & Safety Engineering, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384, China; 2. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China; 3. College of Water Sciences, Beijing Normal University, Beijing 100875, China)

Abstract: To investigate the pollution characteristics and sources of elements bonded with $PM_{2.5}$ and PM_{10} in Linyi, $PM_{2.5}$ and PM_{10} sample collections were carried out simultaneously in Linyi from December 2016 to October 2017, and 23 elements were determined by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) and inductively coupled plasma optical emission spectrometry (ICP-OES), with the enrichment factor method and PMF employed to determine the source apportionment. The results indicated that the dominant elements in $PM_{2.5}$ and PM_{10} were recognized as Si, Ca, Al, Fe, K, Na, and Mg, accounting for 92.93% and 94.61% of the total measured elements, respectively. The concentrations of 18 elements (excluding Ti, Ni, Mo, Cd, and Mg) were highest in winter and spring, and lowest in summer and autumn. Si, Al, Ca, K, and Na showed the highest levels in spring, mainly distributed in coarse particles; Cu, Zn, Pb, and Sb showed the highest levels in winter, mainly distributed in fine particles. The enrichment factor results showed that the enrichment of Cd, Sb, and Bi was significant, mainly originated by anthropogenic sources such as coal combustion, industrial production, and waste incineration. Based on the analysis results of PMF, coal, and copper smelting, municipal waste incineration, fugitive dust, vehicle emissions, and industrial sources were the main sources of elements in $PM_{2.5}$, accounting for 22.64%, 7.49%, 41.22%, 14.71%, and 13.94%, respectively. For PM_{10} , fugitive dust, coal and copper smelting, vehicle emissions, and industrial sources were the main sources of elements, contributing 55.47%, 19.80%, 7.48%, and 12.83%, respectively. Our results suggested that the main contributors to particulate matter pollution in Linyi during the sampling period were fugitive dust, and coal and copper smelting.

Key words: Linyi; $PM_{2.5}$; PM_{10} ; elements; source apportionment

大气颗粒物粒径、形态和化学成分多样, 其中 PM_{10} (可吸入性颗粒物) 和 $PM_{2.5}$ (细颗粒物) 是影响气候变化、生物地球化学循环和人体健康的主要污染物^[1]. 一些金属元素虽然在颗粒物中含量较低, 但具有难以降解、高反应活性和毒性大等特点^[2,3]. 细颗粒物载带的元素可通过呼吸和摄食等途径沉积在人体肺部, 对人体呼吸系统和心血管系统产生潜

在负面影响^[4]. 元素的粒径分布与其来源密切相关^[5]. 因此, 研究颗粒物中元素的浓度水平、分布特

收稿日期: 2019-09-25; 修订日期: 2019-10-23

基金项目: 北京市科委“首都蓝天行动培育”项目 (Z191100009119011)

作者简介: 陆平(1994~), 女, 硕士, 主要研究方向为大气颗粒物来源解析, E-mail: lupingtougao@163.com

* 通信作者, E-mail: yangwen@craes.org.cn; tjutw@163.com

征和来源对生态环境和人类健康具有重要意义。

国内已有关于大气颗粒物中元素污染特征的相关研究. 董世豪等^[6]通过对比南京和上海等长三角城市,发现扬州市 Pb、Cr 和 Cd 污染水平重于上海,但 Pb、As 和 Ni 污染水平轻于南京. 杨毅红等^[7]的研究发现,受沿海地区船舶尾气污染的影响,珠海市郊区 PM_{2.5} 中的 Ni 和 V 浓度水平明显偏高. 主成分分析结果显示区域输送和船舶排放源是当地元素的主要来源. 王的等^[8]的研究发现北京冬季 PM_{2.5} 中 Cd、Cr 和 As 的浓度比春季浓度的增幅均超过 200%,远高于其在 PM₁₀ 中的增幅. 空间分布规律显示建材厂区的元素浓度显著高于教育区和休闲区,说明锅炉燃烧对人为元素的重要贡献. 可见,由于不同地区或城市的经济发展规模、能源结构、地理位置等因素存在差异,其对应的颗粒物中元素的污染特征也具有明显差异. 目前,有关临沂市大气颗粒物中元素的分布特征及来源解析的研究仍然空白.

临沂市位于山东省东南部,以机械、冶金和建材等传统产业为支撑. 近年来对能源和工业化需求不断增加^[9],一方面化石燃料的燃烧释放大量有毒有害元素^[8]. 另一方面临沂三面群山环抱,空气流动性差,易导致污染物聚集. 污染加剧的同时又不具备好的扩散条件,从而进一步加重了临沂市大气中元素的污染水平. 为此,本研究于 2016 年 12 月~2017 年 10 月在临沂市 6 个采样点采集了 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 样品,分析了其中 23 种元素的浓度变化水平、分布特征和来源解析,以期为临沂市大气颗粒物中元素污染防治提供理论基础.

1 材料与方法

1.1 样品采集

综合考虑功能区分布、区域主导风向和人口密度等布点原则,本实验选取临沂大学(LU)、兰山区政府(LS)、高新区翠湖嘉园(GX)、汤庄办事处(TZ)、河东区政府(HD)和临沂经济开发区(LK)这 6 个监测点位,采样点位分布如图 1 所示,采样点周边环境情况如表 1 所示.

采样过程使用青岛恒远公司生产的颗粒物采样

表 1 临沂市采样点位周边环境情况

Table 1 Information on the six sampling sites in Linyi

采样点位	经纬度	周边环境
LU	35°07'24.10"N, 118°17'54.95"E	教育和交通区
LS	35°03'31.92"N, 118°21'13.92"E	住宅区
GX	35°00'37.27"N, 118°16'06.67"E	住宅区和交通区
TZ	34°51'34.50"N, 118°15'0.23"E	交通区和工业区
HD	35°05'44.68"N, 118°24'34.77"E	交通区和商业区
LK	35°01'45.72"N, 118°24'58.29"E	交通区和工业区

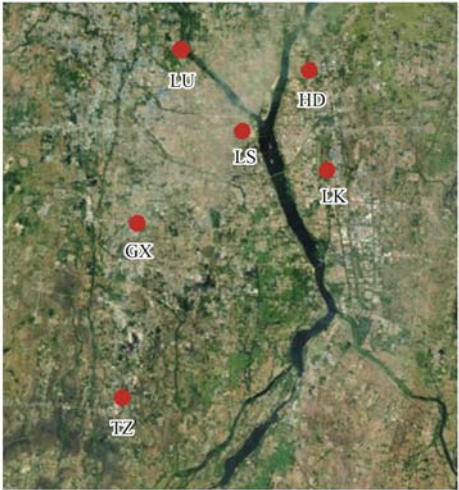


图 1 临沂市采样点位分布示意

Fig. 1 Locations of the sampling sites in Linyi

器(型号:ACAD-1111),流量设定为 16.7 L·min⁻¹,每个样品采样时长 23 h(每天 10:00 至翌日 09:00),分四季进行采集. 具体时间为:2016-12-11~2017-01-09(冬季)、2017-04-10~2017-04-21(春季)、2017-08-15~2017-08-25(夏季)和 2017-10-09~2017-10-18(秋季). 样品采集所用滤膜为 Teflon 膜(美国 Whatman 公司,Φ=47 mm). 采样前,空白 Teflon 膜在 60℃ 烘箱中烘烤 2 h,以消除滤膜中的挥发性组分和杂质对分析结果的影响. 采样前后将滤膜置于恒温(20±1)℃ 恒湿(50±5)% 天平室内平衡 24 h,使用百万分之一的自动称重天平系统(德国康姆德润达 型号:AWS-1)对其称重获得颗粒物的质量. 最后将样品膜放于 -4℃ 冰箱冷冻保存,待分析测定.

1.2 样品分析及质控措施

裁取 1/2 Teflon 样品膜置于聚四氟乙烯坩埚中,加入 5 mL 萃取溶液(HNO₃、HCl 和超纯水体积比为 1:3:20)及 1 滴 HF,在 120℃ 恒温电热板上熔融 2 h,再用 10 mL 2% 的稀盐酸浸取,将其移入塑料比色管中,稀释摇匀后,采用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS,美国 Agilent 公司)测定样品中 15 种元素(Na、K、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Mo、Cd、Sb、Pb 和 Bi)含量. 将剩余 1/2 滤膜置于镍坩埚,放入马弗炉中. 首先由低温升至 300℃ 进行炭化,再逐渐升温至 530℃ 进行灰化,后恒温保持 40~60 min. 冷却后加入少量无水乙醇以及 0.1~0.2 g 固体氢氧化钠熔融 10 min. 取出坩埚,加少量热水在电热板上煮沸提取,移入装有 2 mL 50% 的稀盐酸塑料试管中,纯水稀释后,采用电感耦合等离子体光谱仪(ICP-OES,美国 Agilent 公司)对样品中 8 种元素(Al、Ba、Ca、Fe、Mg、Si、Sr 和 Ti)进行测定. 分析元素时,每 10 个样品测定一个空白膜,进行平行样品和标准样品分析. 平行样

分析需保证相对误差小于 20%,标准样品回收率控制在 80%~120%之间.具体元素分析方法和质控措施参考赵雪艳等^[10]和付爱瑞等^[11]的研究.

1.3 富集因子

富集因子法(enrichment factor, EF)是研究大气中元素富集程度的重要指标,其大小可定性判断元素的人为源和自然源属性.计算公式为:

$$EF_i = \frac{(c_i/c_n)_{\text{atmosphere}}}{(c_i/c_n)_{\text{soil}}}$$

式中, $(c_i/c_n)_{\text{atmosphere}}$ 和 $(c_i/c_n)_{\text{soil}}$ 分别指大气和土壤中研究元素 i 与参比元素 n 质量浓度的比值.本研究土壤中各元素含量参考山东省 A 层土壤元素背景值^[12]. Al 在土壤中含丰富、化学性质稳定、与所测元素之间相关性好,因此选取 Al 作为本研究参比元素^[13].有研究表明若所求元素 $EF < 5$,表明自然源是主要来源;若 EF 在 5~10 之间,则该元素有一定富集,表明其来自于自然和人为混合源,若 $EF > 10$,表明该元素受人为活动的影响较大,其主要来自人为源^[14].

1.4 PMF 源解析

正定矩阵因子法(PMF)是一种基于多因子分析的受体模型,广泛应用于大气颗粒物源解析中.该方法无需源成分谱,同时可保证分解的因子成分谱矩阵和因子贡献矩阵均为非负^[15],并利用不确定度

优化源解析结果.本研究选用美国环保署(US EPA)开发的 EPA PMF5.0 对样品中元素进行来源解析.

2 结果与讨论

2.1 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 及其元素浓度水平变化

采样期间临沂市大气中 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 及其元素的质量浓度如表 2 和表 3 所示. $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 的日均浓度为 $94.73 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $154.47 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,均超过《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)中的日均浓度限值 $75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $150 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,分别超标 1.26 和 1.03 倍.根据大气颗粒物中元素的来源差异,方凤满^[16]将其分为地壳元素(Si、Al、Ca、Fe、K 和 Na 等)和人为污染元素(Cu、Pb、Cr、As、Zn 和 Pb 等)两大类.本研究 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中 23 种元素总质量浓度分别为 $9.79 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $22.00 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,分别占 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 质量浓度的 13.20% 和 15.85%.在 $PM_{2.5}$ 中,7 种地壳元素占所测元素总浓度的 92.93%,其中, Si 浓度最高($2143.96 \pm 1067.51 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$),其次是 Ca、Al、Fe、K、Mg 和 Na($>500 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$).人为污染元素中 Zn、Pb 和 Mn 浓度较高,分别为 236.53、81.83 和 $44.75 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$,而 Sb、Bi 和 Cd 的浓度偏低,不足 $5 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$. PM_{10} 中 7 种地壳元素(Si、Ca、Al、Fe、K、Na 和 Mg)占元素总浓度的 94.61%,其中 Si 和 Ca 的浓度水平($4989.00 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $4399.49 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)远远

表 2 $PM_{2.5}$ 及载带元素在四季的质量浓度水平¹⁾

Table 2 Mass concentration and elemental concentrations of $PM_{2.5}$ in four seasons

项目	春季	夏季	秋季	冬季	均值 ± 标准差	变化范围	浓度占比/%
$PM_{2.5}$	62.90	41.01	50.77	145.18	94.73 ± 76.20	14.96 ~ 401.70	
Na	1 457.54	273.12	684.98	525.99	689.71 ± 525.95	53.06 ~ 7 379.05	1.000
K	1 426.54	485.77	874.13	1 208.53	$1 066.27 \pm 575.36$	29.73 ~ 5 889.33	1.377
V	15.70	7.59	7.54	14.55	12.37 ± 5.15	1.16 ~ 36.13	0.017
Cr	22.46	10.74	16.38	18.10	17.35 ± 7.15	1.54 ~ 96.10	0.025
Mn	52.40	14.83	32.78	57.51	44.75 ± 32.74	0.81 ~ 420.20	0.054
Co	0.70	0.18	0.37	0.47	0.45 ± 0.29	0.03 ~ 2.20	0.001
Ni	6.61	4.54	4.69	4.69	5.04 ± 3.57	0.40 ~ 41.98	0.007
Cu	41.24	6.68	11.23	50.82	34.49 ± 37.35	1.25 ~ 470.43	0.037
Zn	227.55	105.91	206.74	302.33	236.53 ± 148.98	4.63 ~ 1 520.96	0.293
As	9.28	4.60	8.29	9.25	8.26 ± 4.61	0.31 ~ 102.33	0.011
Mo	0.89	2.01	3.08	1.18	1.58 ± 1.13	0.03 ~ 23.33	0.003
Cd	1.58	2.33	2.85	2.20	2.21 ± 1.22	0.01 ~ 11.34	0.003
Sb	5.65	1.25	2.65	5.86	4.46 ± 3.86	0.07 ~ 40.36	0.005
Pb	95.80	38.62	73.02	95.97	81.83 ± 56.76	1.83 ~ 1 367.61	0.103
Bi	3.50	0.61	1.52	3.19	2.51 ± 3.01	0.02 ~ 108.81	0.003
Al	1 988.32	1 102.08	1 633.02	1 859.85	$1 711.29 \pm 774.61$	236.31 ~ 7 535.09	2.366
Sr	4.59	3.61	3.64	5.50	4.68 ± 2.51	0.35 ~ 27.94	0.006
Mg	774.95	632.74	836.40	636.26	695.72 ± 271.84	43.79 ~ 3 244.02	1.057
Ti	167.50	215.73	159.74	264.09	219.26 ± 95.10	4.29 ~ 812.19	0.306
Ca	1 387.06	739.52	865.64	1 282.11	$1 136.64 \pm 651.93$	51.09 ~ 7 494.48	1.520
Fe	1 401.44	1 197.60	1 078.26	2 137.07	$1 649.37 \pm 1 232.45$	50.71 ~ 26 103.66	2.062
Ba	17.38	16.33	16.33	16.32	16.53 ± 7.97	0.79 ~ 95.06	0.024
Si	2 622.22	1 285.82	1 874.54	2 372.35	$2 143.96 \pm 1 067.51$	208.94 ~ 9 243.99	2.921

1) $PM_{2.5}$ 浓度单位: $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 元素浓度单位: $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$

表 3 PM₁₀ 及载带元素在四季的质量浓度水平¹⁾

Table 3 Mass concentration and elemental concentrations of PM₁₀ in four seasons

项目	春季	夏季	秋季	冬季	均值 ± 标准差	变化范围	浓度占比/%
PM ₁₀	153.17	71.13	102.42	206.13	154.47 ± 98.86	24.65 ~ 504.65	
Na	3 390.38	591.50	1 475.68	1 091.67	1 520.28 ± 1 319.47	196.66 ~ 18 870.59	1.100
K	2 905.02	787.09	1 312.73	1 928.93	1 817.23 ± 1 045.26	235.83 ~ 7 293.58	1.234
V	22.27	11.09	11.88	18.28	16.75 ± 6.63	2.37 ~ 43.85	0.013
Cr	40.18	22.05	25.15	33.33	31.37 ± 14.42	4.51 ~ 261.10	0.023
Mn	126.36	30.37	55.18	104.29	87.39 ± 60.13	9.78 ~ 622.25	0.056
Co	2.12	0.52	0.76	1.38	1.27 ± 0.88	0.16 ~ 6.08	0.001
Ni	13.53	18.97	13.20	10.78	13.23 ± 7.37	0.99 ~ 92.31	0.011
Cu	59.60	11.44	16.64	81.15	53.81 ± 60.70	3.30 ~ 731.09	0.030
Zn	301.99	180.69	325.01	443.72	349.82 ± 206.29	49.70 ~ 1 951.71	0.242
As	11.50	8.03	11.48	13.55	11.84 ± 6.66	1.34 ~ 156.78	0.009
Mo	1.37	3.10	5.65	1.85	2.62 ± 2.01	0.16 ~ 39.76	0.002
Cd	2.03	3.84	4.16	3.42	3.35 ± 1.88	0.36 ~ 15.80	0.003
Sb	7.63	2.10	3.90	9.71	6.98 ± 6.63	0.09 ~ 55.22	0.004
Pb	121.56	63.12	106.26	150.69	122.15 ± 75.40	9.94 ~ 1 405.66	0.084
Bi	4.12	0.95	2.05	4.36	3.32 ± 3.49	0.19 ~ 120.63	0.002
Al	6 066.98	2 480.68	3 233.40	3 596.30	3 830.20 ± 2 145.72	712.23 ~ 16 124.11	2.779
Sr	29.05	11.14	10.43	14.56	16.14 ± 11.61	1.31 ~ 101.15	0.011
Mg	1 867.55	1 126.70	1 352.24	895.93	1 207.25 ± 608	254.30 ~ 10 447.63	0.971
Ti	293.11	572.21	343.67	445.05	422.34 ± 193.13	14.51 ~ 3 173.77	0.352
Ca	7 633.74	3 023.61	3 187.50	3 970.21	4 399.49 ± 2 867.66	326.53 ~ 19 829.65	3.114
Fe	3 172.98	2 555.81	2 093.47	3 533.08	3 055.78 ± 1 785.33	185.20 ~ 43 026.29	2.236
Ba	67.98	44.82	32.55	36.89	43.81 ± 27.17	2.01 ~ 440.64	0.034
Si	9 051.18	2 863.20	3 840.32	4 472.25	4 989.00 ± 4 005.26	559.11 ~ 44 666.78	3.495

1) PM₁₀ 浓度单位: $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 元素浓度单位: $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$

超过其他元素. 受到不同季节的环境因素与污染源的影响, 18 中元素(除 Ti、Ni、Mo、Cd 和 Mg) 的浓度水平呈现出冬春季高于夏秋季的特点, 这与颗粒物的变化特征一致. PM₁₀ 和 PM_{2.5} 中地壳元素 Na、K、Al、Ca 和 Si 表现出明显的季节变化趋势, 均为春季含量最高, 这与临沂市春季气候干燥(相对湿度 48.68%) 且易受风沙(风速 $1.38\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) 影响有关. PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中人为污染元素 Cu、Zn、Pb 和 Sb 在冬季的浓度最高, 主要与冬季燃煤取暖以及季节性的工业生产活动有密切联系^[17,18].

2.2 粒径分布特征

为了便于比较元素在 PM_{2.5~10} 和 PM_{2.5} 两种粒

径上的分布特征, 用不同粒径中元素的质量浓度占比表示其分布比例(图 2). Ca、Sr、Co、Ba、Ni、Si、Al 和 Na 在 PM_{2.5~10} 中占比高于 50%. 其中 Ca、Si、Al 和 Na 占比分别为 74.16%、57.03%、55.32% 和 54.63%, 这些元素是地壳材料和土壤等自然源中主要成分^[16], 表明这些地壳元素主要分布在粗粒子中. Sr 与建筑施工中水泥的排放有关^[19], Ba 是交通排放的示踪剂^[20], 因此 Sr 和 Ba 在粗颗粒物中的高占比(分别为 71.03% 和 62.27%) 主要与建筑尘和道路尘有关. Ni 通常富集在细粒径中, 而本研究中 Ni 在粗颗粒中的高百分比(61.90%) 说明了土壤风沙的重要影响^[21]. Sb、Cu、Cd、Pb、Zn、As 和 V 等元

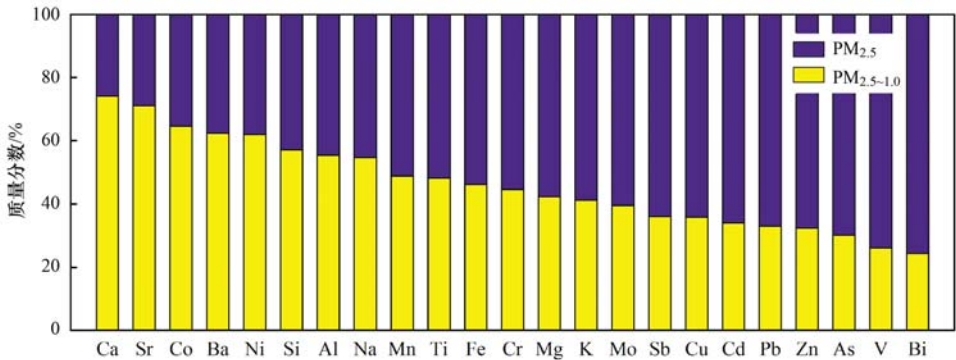


图 2 元素在不同粒径中的分布比例

Fig. 2 Mean distributions of elements in different particle sizes

素主要积累在 $PM_{2.5}$ 中,比例均超过 60%,说明在细粒子中,地壳元素的存在减少,对环境和人体健康有负面影响的污染元素增加^[22],高温工艺如煤燃烧和冶炼工业等人为源是主要来源^[5]. Mn、Ti 和 Fe 在两种粒径颗粒物的尺寸分布比较均匀,说明他们是自然源和人为源共同作用的结果. 除地壳来源, Mn 可通过垃圾焚烧和化石燃料的燃烧释放^[23]. Fe 主要与炼钢厂排放有关.

2.3 富集因子分析

图 3 所示为临沂市 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中元素的富集因子. 从全年来看, $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中的 Na、K、Sr、Mg、Ti、Ca、Fe、Ba、Mn 和 Co 的 EF < 5, 表明这类元素主要来自自然源. Cr、Ni 和 Mo 的 EF 接近 10, 说明其来自人为活动和自然的混合源. Cu、Zn、As 和 Pb 在 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ (除 Zn 和 Pb) 中的 EF 介于 10 ~ 100 之间, 受人为源影响更为明显. Cd、Sb 和 Bi 在 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中的 EF > 100, 说明这些元素受人为污染程度非常高. Sb 主要源于燃煤排放^[24], Cd 是废弃物焚烧的标识物^[25], 同时也来自于工业废气^[8]. Bi 主要与陶瓷、橡胶和玻璃等工业生产有关^[10]. 说明临沂市大气主要受燃煤、工业生产和垃圾焚烧排放等共同影响.

从季节特点来看, Ni 在夏季的富集程度最高

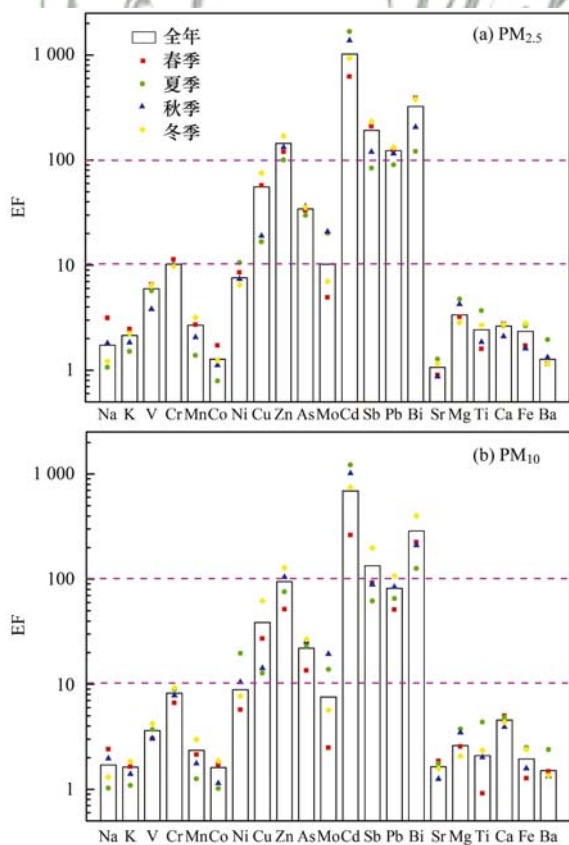


图 3 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中元素的富集因子

Fig. 3 Enrichment factors of elements for $PM_{2.5}$ and PM_{10}

($PM_{2.5}$: 19.62, PM_{10} : 10.58), 则表明在夏季人为活动对临沂市细颗粒物中 Ni 的贡献更大. 临沂市属于旅游城市, 夏季暑期正是旅游高峰期, 机动车辆较其他季节增多, 因此 $PM_{2.5}$ 中 Ni 的富集主要归因于汽油发动机的排放^[26]. Cd 在夏秋季的富集程度显著高于冬春季并在夏季达到最大 ($PM_{2.5}$: 1 667.15, PM_{10} : 1 221.05), 可能是夏季垃圾焚烧和冶炼等工业活动更为频繁. 另外, Cu、Zn、Sb 和 Pb 均表现出冬季的富集程度高于其他 3 个季节, 这主要与冬季采暖燃煤量增加有关^[8,24], 同时也受天气条件(如逆温现象)等因素影响^[17].

2.4 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中元素来源解析

利用 PMF 对 $PM_{2.5}$ 中的元素组分进行来源解析, 经过多次分析比较, 最终确定 5 个因子, 如图 4 (a) 所示. 因子 1 成分谱中 Sb 和 Cu 占比较高, Pb、Zn 和 As 次之. 煤燃烧是 Sb 和 As 的主要来源^[24]. 有研究表明 Cu、Zn、Cd 和 Pb 等元素作为冶炼剂或金属矿石原料中的杂质从铜冶炼过程中排放^[27]. 因此, 因子 1 可能为燃煤和铜冶炼的混合源, 占 $PM_{2.5}$ 元素总质量浓度的 22.64%.

因子 2 中载荷较高的是 Cd 和 Ni, 其次是 Pb、Mn 和 Cr. Cd 是市政焚烧的标志元素^[25]. Tian 等^[28]的研究表明中国城市固体废物焚烧炉可排放大量 Cd、Ni、Cr 和 Pb 等污染物. 因此该污染源可判定为市政垃圾焚烧源, 占 $PM_{2.5}$ 中元素总质量浓度的 7.49%. 该因子中, Zn/Pb 比率为 1.65, 接近之前报道的市政焚烧炉排放(1.80)^[19], 说明市政焚烧是除了燃煤与铜冶炼源外 Pb 的重要来源.

因子 3 中特征元素为 Ca、Sr、Si 和 Ba, 还有少量 Al、Mg 和 Ti. Ca、Si、Ti 和 Ba 是空气中悬浮的土壤颗粒和道路尘的主要成分^[16,20]. 研究表明 Ca 和 Sr 两个元素的高负载不仅来自于土壤, 也受到其他人为活动的影响, 如建筑施工、混凝土搅拌、水泥生产^[29,30]. Ca 是建筑扬尘的标志元素^[31]. 因此, 可判断该因子为扬尘源, 占元素总质量浓度的 41.22%, 为 $PM_{2.5}$ 中元素的主要来源.

因子 4 中 As、V、Cr、Mg 和 Al 的载荷较高. 除燃煤排放, As 也存在于金属加工等相关工业中^[8]. V 是燃料油燃烧的标志, 燃油发电厂和工业燃油锅炉排放是主要来源^[32]. Cr 主要来自于制铁炼钢, 该过程中产生的 Cr 蒸气以氧化物形式沉积在大气颗粒物表面^[33]. Mg、Al 和 Ca 是工业过程产生的冶炼尘^[34]. 采样点汤庄办事处位于罗庄区, 罗庄区是临沂重要的工业基地, 以钢铁、化工、建材等产业为主, 因此, 该因子可代表工业源, 占元素总质量浓度的 13.94%.

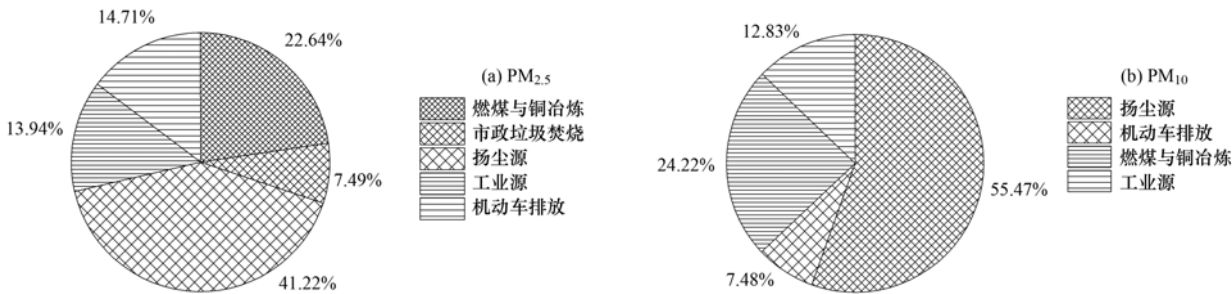


图 4 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中元素不同来源的贡献

Fig. 4 Contributions of different sources to elements in $PM_{2.5}$ and PM_{10}

因子 5 中 Ti、Fe 和 Zn 所占比例较高,其次是 Pb、V 和 Cu. Zn 元素作为重要添加剂存在于发动机的润滑油中,另外,有研究^[35]表明 Zn 以氧化物形式添加到轮胎生产过程中,因此 Zn 主要通过机动车尾气和轮胎磨损释放到大气中. 近年来无铅汽油的使用减少了机动车尾气中 Pb 的排放. Pb 和 Cu 主要来源于制动器磨损的排放^[36]. 因此,该因子可代表机动车排放,占元素总质量浓度的 14.71%. 地壳元素 Fe、Ba、Ti 主要来自于交通相关的道路尘再悬浮^[5,20].

5 种污染源对 $PM_{2.5}$ 中元素的贡献率如图 5(a) 所示. 地壳元素 Si、Ca、Sr 和 Ba 主要来自于扬尘源 (贡献率 > 60%). Fe 和 Ti 受扬尘源 (44.41% 和 38.35%) 和机动车排放 (44.02% 和 57.90%) 的共同影响,可以看出与交通相关的道路尘再悬浮是 Ti 的主要来源. 扬尘源是 $PM_{2.5}$ 中 Mg (39.09%) 和 Al (43.43%) 的主要贡献源,工业源次之. 燃煤与铜冶炼混合源对 Pb 的贡献率为 49.18%,As 和 Pb 都是燃煤的标志元素,但 As 的来源更加复杂,主要是燃

煤与铜冶炼混合源 (37.78%)、工业源 (36.81%) 和少量的城市垃圾焚烧源 (13.29%). Zn 主要来源于燃煤及铜冶炼混合源 (47.81%),另外,机动车排放对 Zn 的贡献也比较高 (31.19%). V 的主要来源是工业源 (39.82%)、扬尘源 (29.38%) 和机动车排放源 (16.03%),这与 Hao 等^[5]的研究结果一致.

由 PMF 法对 PM_{10} 中元素组分进行来源解析,最终确定 4 个因子,如图 4(b) 所示. 因子 1 中 Ca、Sr 和 Si 载荷较高,确定其为扬尘源. 结合 PM_{10} 中元素的来源分布图 4(b),相比于 $PM_{2.5}$,扬尘源对 PM_{10} 中 Al 和 Mg 的贡献率要明显偏高,而工业源对 Al 和 Mg 的贡献显著降低. 有研究认为沙尘主要增加大气中粒径大于 $8\text{ }\mu\text{m}$ 的粗颗粒的浓度,而小于 $2\text{ }\mu\text{m}$ 的细颗粒几乎不受影响^[37],表明 PM_{10} 中的 Mg 和 Al 主要受沙尘天气的影响较大. 因子 2 中 Mo 和 Zn 占比较大,Mo 是汽油发动机排放的标志物,同时也与发动机的磨损有关^[38],因此该因子可判为机动车源. 因子 3 中 Cu 和 Sb 的载荷较大,因此可作为燃煤与铜冶炼源. 因子 4 中 V 和 Cr 的占比较高,可判断

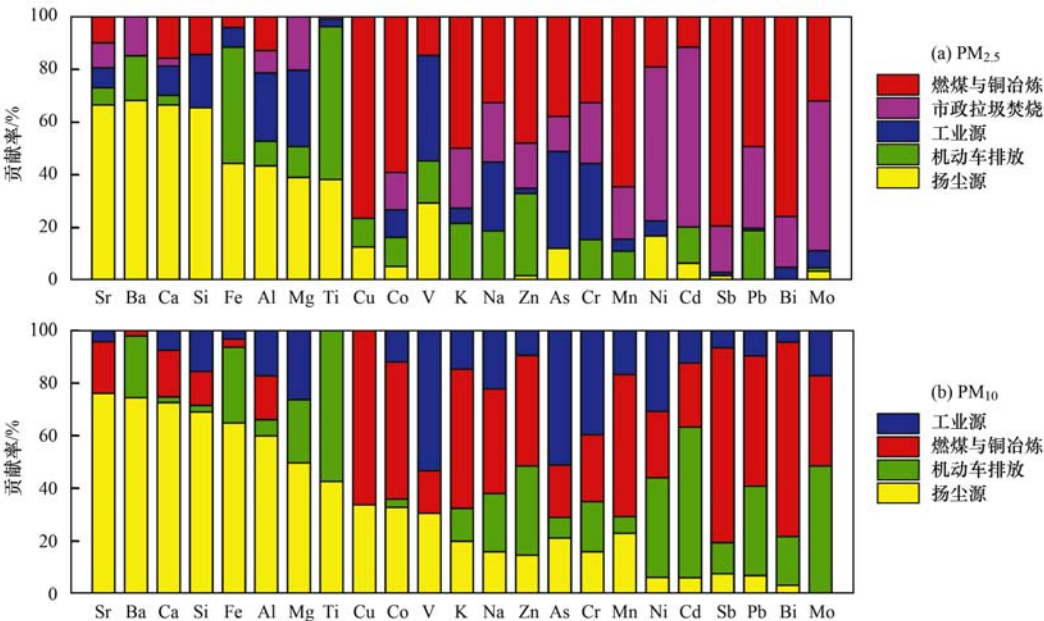


图 5 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中元素污染源贡献率

Fig. 5 Source contribution ratios of elements in $PM_{2.5}$ and PM_{10}

为工业源. 另外, 不同于 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 中的 As 主要来自于工业源, 该源对 As 的贡献率高达 51.22%, 其次是扬尘源.

3 结论

(1) 采样期间临沂市 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中所测元素质量浓度分别为 $9.79 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $22.00 \mu g \cdot m^{-3}$. Si、Ca、Al、Fe、K、Na 和 Mg 是主要元素, 分别占 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中元素总浓度的 92.93% 和 94.61%. 18 种元素 (除 Ti、Ni、Mo、Cd 和 Mg) 的浓度水平呈现冬春季高于夏秋季的特点. 其中 Si、Al、Ca、K 和 Na 均表现为春季浓度最高, Cu、Zn、Pb 和 Sb 表现为冬季浓度最高.

(2) Ca、Sr、Ba、Si、Al 和 Na 等自然源元素主要分布在粗颗粒中, Sb、Cu、Cd、Pb、Zn 和 As 等人为源元素主要分布在细颗粒中. 富集因子结果表明, $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中 Na、K、Sr、Mg 和 Ca 等主要受地壳源影响 ($EF < 5$); Cu、Zn、As、Pb、Cd 和 Sb 的富集程度较高 ($EF > 10$), 尤其是 Cd、Sb 和 Bi ($EF > 100$), 3 种元素主要来自于燃煤、工业生产、垃圾焚烧等人为源.

(3) PMF 解析结果显示, 扬尘源 (41.22%)、燃煤与铜冶炼的混合源 (22.64%) 是 $PM_{2.5}$ 中元素的主要来源, 其次为机动车排放 (14.71%) 和工业源 (13.94%), 而市政垃圾焚烧源 (7.49%) 的贡献最小. PM_{10} 中元素的首要来源是扬尘源 (55.47%), 其次是燃煤与铜冶炼的混合源 (19.80%)、机动车排放 (7.48%) 和工业源 (12.83%). 由此可见, 扬尘源和燃煤与铜冶炼的混合源是临沂市大气污染的主要来源.

参考文献:

- [1] Ye Z L, Liu J S, Gu A J, *et al.* Chemical characterization of fine particulate matter in Changzhou, China, and source apportionment with offline aerosol mass spectrometry [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(4): 2573-2592.
- [2] 赵小宁, 席冬冬, 席奔野, 等. 新乡市冬、春季节 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子及重金属的污染特征与源解析[J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(8): 3210-3219.
Zhao X N, Xi D D, Xi B Y, *et al.* The pollutant character and source apportionment of water-soluble ions and heavy metals in $PM_{2.5}$ in winter-spring time of Xinxiang [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(8): 3210-3219.
- [3] Betha R, Behera S N, Balasubramanian R. 2013 southeast asian smoke haze: fractionation of particulate-bound elements and associated health risk [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(8): 4327-4335.
- [4] Peng R D, Bell M L, Geyh A S, *et al.* Emergency admissions for cardiovascular and respiratory diseases and the chemical composition of fine particle air pollution [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2009, **117**(6): 957-963.
- [5] Hao Y F, Meng X P, Yu X P, *et al.* Characteristics of trace elements in $PM_{2.5}$ and PM_{10} of Chifeng, northeast China; insights into spatiotemporal variations and sources [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **213**: 550-561.
- [6] 董世豪, 谢扬, 皇甫延琦, 等. 扬州市 $PM_{2.5}$ 中重金属来源及潜在健康风险评估[J]. *环境科学*, 2019, **40**(2): 540-547.
Dong S H, Xie Y, Huangfu Y Q, *et al.* Source apportionment and health risk quantification of heavy metals in $PM_{2.5}$ in Yangzhou, China [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(2): 540-547.
- [7] 杨毅红, 贾燕, 卞国建, 等. 珠海市郊区大气 $PM_{2.5}$ 中元素特征及重金属健康风险评估[J]. *环境科学*, 2019, **40**(4): 1553-1561.
Yang Y H, Jia Y, Bian G J, *et al.* Elemental characteristics and health risk assessment of heavy metals in atmospheric $PM_{2.5}$ in a suburb of Zhuhai City [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(4): 1553-1561.
- [8] 王的, 冯海艳, 景慧敏. 北京市冬季、春季 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 中元素地球化学特征[J]. *地球科学进展*, 2017, **32**(8): 850-858.
Wang D, Feng H Y, Jing H M. Elements' geochemical characteristics of PM_{10} and $PM_{2.5}$ in Beijing during winter and spring [J]. *Advances in Earth Science*, 2017, **32**(8): 850-858.
- [9] 临沂市统计局. 临沂统计年鉴-2016 [M]. 临沂: 临沂市统计局, 2016.
- [10] 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.
- [11] 付爱瑞, 陈庆芝, 罗治定, 等. 碱熔-电感耦合等离子体发射光谱法测定大气颗粒物样品中无机元素[J]. *岩矿测试*, 2011, **30**(6): 751-755.
Fu A R, Chen Q Z, Luo Z D, *et al.* Quantification of inorganic elements in aerosol samples by inductively coupled plasma-atomic emission spectrometry with alkali melting [J]. *Rock and Mineral Analysis*, 2011, **30**(6): 751-755.
- [12] 代杰瑞, 喻超, 张明杰, 等. 淄博市大气颗粒物重金属元素分布特征及其来源分析[J]. *吉林大学学报(地球科学版)*, 2018, **48**(4): 1201-1211.
Dai J R, Yu C, Zhang M J, *et al.* Distribution characteristics and sources of heavy metals in urban atmospheric particulate matter in Zibo City [J]. *Journal of Jilin University (Earth Science Edition)*, 2018, **48**(4): 1201-1211.
- [13] 王士宝, 姬亚芹, 李树立, 等. 天津市春季道路降尘 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 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 PM_{10} in road dust fall during spring in Tianjin [J]. *Environmental Science*, 2019, **39**(3): 990-996.
- [14] 虎彩娇, 成海容, 李锦伦, 等. 黄石市大气 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 中元素特征及重金属生态风险评估[J]. *环境化学*, 2018, **37**(1): 138-145.
Hu C J, Cheng H R, Li J L, *et al.* Characteristics of elements and ecological risk assessment of heavy metals in PM_{10} and $PM_{2.5}$ in Huangshi [J]. *Environmental Chemistry*, 2018, **37**(1): 138-145.
- [15] Khan M F, Latif M T, Lim C H, *et al.* Seasonal effect and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in

- $PM_{2.5}$ [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **106**: 178-190.
- [16] 方凤满. 中国大气颗粒物中金属元素环境地球化学行为研究 [J]. *生态环境学报*, 2010, **19**(4): 979-984.
- Fang F M. Research on environmental geochemistry of metal elements in atmospheric particles in China [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2010, **19**(4): 979-984.
- [17] Wang J, Hu Z M, Chen Y Y, *et al.* Contamination characteristics and possible sources of PM_{10} and $PM_{2.5}$ in different functional areas of Shanghai, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **68**: 221-229.
- [18] Tian H Z, Zhu C Y, Gao J J, *et al.* Quantitative assessment of atmospheric emissions of toxic heavy metals from anthropogenic sources in China: historical trend, spatial distribution, uncertainties, and control policies [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(17): 10127-10147.
- [19] Zhang J Z, Zhou X H, Wang Z, *et al.* Trace elements in $PM_{2.5}$ in Shandong province: source identification and health risk assessment [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **621**: 558-577.
- [20] Amato F, Viana M, Richard A, *et al.* Size and time-resolved roadside enrichment of atmospheric particulate pollutants [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(6): 2917-2931.
- [21] Masri S, Kang C M, Koutrakis P. Composition and sources of fine and coarse particles collected during 2002-2010 in Boston, MA [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2015, **65**(3): 287-297.
- [22] Voutsas D, Samara C. Labile and bioaccessible fractions of heavy metals in the airborne particulate matter from urban and industrial areas [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(22): 3583-3590.
- [23] Zhou J Z, Wu S M, Pan Y, *et al.* Enrichment of heavy metals in fine particles of Municipal Solid Waste Incinerator (MSWI) fly ash and associated health risk [J]. *Waste Management*, 2015, **43**: 239-246.
- [24] Hsu C Y, Chiang H C, Chen M J, *et al.* Ambient $PM_{2.5}$ in the residential area near industrial complexes: spatiotemporal variation, source apportionment, and health impact [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **590-591**: 204-214.
- [25] Kidwell C B, Ondov J M. Elemental analysis of sub-hourly ambient aerosol collections [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2004, **38**(3): 205-218.
- [26] Wang Y G, Hopke P K. A ten-year source apportionment study of ambient fine particulate matter in San Jose, California [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2013, **4**(4): 398-404.
- [27] Kabala C, Singh B R. Fractionation and mobility of copper, lead, and zinc in soil profiles in the vicinity of a copper smelter [J]. *Journal of Environment Quality*, 2001, **30**(2): 485-492.
- [28] Tian H Z, Gao J J, Lu L, *et al.* Temporal trends and spatial variation characteristics of hazardous air pollutant emission Inventory from municipal solid waste incineration in China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(18): 10364-10371.
- [29] 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.
- [30] Widory D, Liu X D, Dong S P. Isotopes as tracers of sources of lead and strontium in aerosols (TSP & $PM_{2.5}$) in Beijing [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(30): 3679-3687.
- [31] Zhang D Z, Iwasaka Y. Nitrate and sulfate in individual Asian dust-storm particles in Beijing, China in Spring of 1995 and 1996 [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(19): 3213-3223.
- [32] Chen Y, Xie S D, Luo B, *et al.* Particulate pollution in urban Chongqing of southwest China: historical trends of variation, chemical characteristics and source apportionment [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **584-585**: 523-534.
- [33] Lv W W, Wang Y X, Querol X, *et al.* Geochemical and statistical analysis of trace metals in atmospheric particulates in Wuhan, central China [J]. *Environmental Geology*, 2006, **51**(1): 121-132.
- [34] Duan J C, Tan J H. Atmospheric heavy metals and Arsenic in China: situation, sources and control policies [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **74**: 93-101.
- [35] Fomba K W, Van Pinxteren D, Müller K, *et al.* Assessment of trace metal levels in size-resolved particulate matter in the area of Leipzig [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **176**: 60-70.
- [36] Lin Y C, Tsai C J, Wu Y C, *et al.* Characteristics of trace metals in traffic-derived particles in Hsuehshan tunnel, Taiwan: size distribution, potential source, and fingerprinting metal ratio [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(8): 4117-4130.
- [37] Zhang D Z, Shi G Y, Iwasaka Y, *et al.* Anthropogenic calcium particles observed in Beijing and Qingdao, China [J]. *Water, Air, & Soil Pollution: Focus*, 2005, **5**(3-6): 261-276.
- [38] Crilley L R, Lucarelli F, Bloss W J, *et al.* Source apportionment of fine and coarse particles at a roadside and urban background site in London during the 2012 summer Clearflo campaign [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **220**: 766-778.

CONTENTS

Comparison of Three Receptor Models for Source Apportionment of PM _{2.5} in Shanghai: Using Hourly Resolved PM _{2.5} Chemical Composition Data	ZHOU Min (1997)
Impact of Differents in the Concentrations of Ozone on the Chemical Composition of Single Particles	WU Meng-xi, CHENG Chun-lei, HUANG Bo, <i>et al.</i> (2006)
Influence of Secondary Organic Coating on Hygroscopicity of a Sodium Chloride Core: Based on Micro-scale Single Particle Analysis	ZHANG Shu-jia, XU Liang, GUO Xin-mei, <i>et al.</i> (2017)
Comparative Analysis of Pollution Characteristics of Carbonaceous Aerosol Components in the Atmosphere Between Urban and Suburban Areas	LI Xin-yue, ZHANG Kai-shan, DENG Lin-li, <i>et al.</i> (2026)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of Elements Bonded with PM _{2.5} and PM ₁₀ in Linyi	LU Ping, ZHAO Xue-yan, YIN Bao-hui, <i>et al.</i> (2036)
Characteristics and Sources of Microbial Aerosols in Urban and Mountainous Areas in Autumn and Winter in Xi'an, China	XIE Wen-wen, LU Rui, MU Fei-fei, <i>et al.</i> (2044)
Pollution Characteristics of Cooking Fumes, Particulates, and Non-methane Hydrocarbons in the Exhaust of Typical Beijing Restaurants	HE Wan-qing, WANG Tian-yi, SHAO Xia, <i>et al.</i> (2050)
PM _{2.5} Concentration Influencing Factors in China Based on the Random Forest Model	XIA Xiao-sheng, CHEN Jing-jing, WANG Jia-jia, <i>et al.</i> (2057)
Spatio-temporal Variation of PM _{2.5} Related Relationships in China from the Perspective of Air Pollution Regional Linkage Control and Prevention	YANG Wen-tao, HUANG Hui-kun, WEI Dong-sheng, <i>et al.</i> (2066)
Characteristics of Spatial and Temporal Evolution and Investigation of Air Pollution in Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area Based on Ground-Space Observation Data	WANG Yao-ting, LIANG Jia-cheng, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (2075)
Hydrochemical Characteristics and Formation Causes of Ground Karst Water Systems in the Longzici Spring Catchment	TANG Chun-lei, ZHENG Xiu-qing, LIANG Yong-ping (2087)
Tempo-spatial and Retention Analysis of Total Phosphorus in the Three Gorges Reservoir	TANG Xiao-ya, TONG Si-chen, HUANG Guo-xian, <i>et al.</i> (2096)
Vertical Distribution Characteristics of Dissolved Oxygen and Chlorophyll a in Typical Tributaries During the Impoundment Period of the Three Gorges Reservoir	YANG Fan, JI Dao-bin, WANG Li-jing, <i>et al.</i> (2107)
Spatial-temporal Distribution of Nutrients in Hanfeng Lake After Official Operation	FU Shi, NI Jiu-pai, HE Bing-hui, <i>et al.</i> (2116)
Spatio-temporal Variations in the Characteristics of Water Eutrophication and Sediment Pollution in Baiyangdian Lake	LIU Xin, SHI Bin, MENG Jing, <i>et al.</i> (2127)
Spatial-temporal Distribution of Suspended Solids and Its Sedimentation Flux and Nutrients Effects in Xin'anjiang Reservoir, China	SHI Peng-cheng, ZHU Guang-wei, YANG Wen-bin, <i>et al.</i> (2137)
Bioavailability Characteristics of Chromophoric Dissolved Organic Matter in Lake Gaoyou, Lake Nansi, and Lake Dongping Under Different Hydrological Scenarios	ZHANG Liu-qing, SHI Yu, LI Yuan-peng, <i>et al.</i> (2149)
Succession Characteristics of Algae Functional Groups and Water Quality Assessment in a Drinking Water Reservoir	LI Yan-qing, HUANG Ting-lin, ZHANG Hai-han, <i>et al.</i> (2158)
Effect of Artificial Mixing on Temporal and Spatial Succession of Algae Community Structure in Jinpen Reservoir	WANG Chen-xu, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2166)
Spatial Distribution Characteristics and Driving Factors of Aerobic Denitrification Bacterial Community Structure from Baiyangdian Lake in Xiong'an New Area During the Winter Freezing Period	ZHOU Shi-lei, SUN Yue, YUE Ge-cheng, <i>et al.</i> (2177)
Spatial and Temporal Succession Characteristics of Aerobic Anoxygenic Photosynthesis Bacteria in a Stratified Reservoir	ZHANG Hai-han, WANG Yan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (2188)
Response of Chromophoric Dissolved Organic Matter Dynamics to Different Hydrological Scenarios in the Two Largest Freshwater Lakes Connected to the Yangtze River	GUO Yan-mi, LI Yuan-peng, SHI Yu, <i>et al.</i> (2198)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Chromophoric Dissolved Organic Matter in a Northern-Side River of the Qinling Mountains in Summer	LIN Zi-shen, HUANG Ting-lin, YANG Shang-ye, <i>et al.</i> (2210)
Distribution, Sources, and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Tributary Waters of the Lower Reaches of the Yangtze River, China	JIA Tian-qi, LEI Rong-rong, WU Xiao-lin, <i>et al.</i> (2221)
Temporal and Spatial Occurrence of NSAIDs in Taihu Lake and Relevant Risk Assessment	LIAN Jie, LI Yi-fei, WANG Xiao-xuan, <i>et al.</i> (2229)
Occurrence and Ecological Risk of Eight Typical PhACs in Surface Water and Its Impact on <i>Daphnia magna</i>	XU Xin-lei, LIU Jian-chao, LU Guang-hua (2239)
Distribution Characteristics and Migration Rules of Pollutants in Sediments of Reservoirs with <i>Eucalyptus</i> Plantation, Southern China	ZHU Ya, LI Yi-ping, LUO Fan, <i>et al.</i> (2247)
Mechanism of Urban Black Odorous Water Based on Continuous Monitoring: A Case Study of the Erkeng Stream in Nanning	LI Yong-xin, WANG Wei, HE Mei, <i>et al.</i> (2257)
Relationship Between Source-Sink Landscape Pattern and Antibiotics in Surface Water in Peri-urban Watershed	LI Min, TANG Jian-feng, CHEN Li-ding, <i>et al.</i> (2264)
Molecular Chemo-diversity of the Dissolved Organic Matter Occurring in Urban Stormwater Runoff	NIE Yun-han, CHEN Hao, LI Lei, <i>et al.</i> (2272)
Regulating Effect and Mechanism of Calcite/Chlorapatite Mixture Addition on Transformation and Transport of Phosphorus in Sediments	BAI Xiao-yun, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (2281)
Stability of Ferrihydrite and Goethite Nanoparticles Under Different Environmental Conditions	WANG Zhi-qiao, MA Jie, CHEN Ya-li, <i>et al.</i> (2292)
Sunflower-Staw-Derived Biochar-Enhanced Fe(III)/S ₂ O ₈ ²⁻ System for Degradation of Benzoic Acid	SUN Peng, ZHANG Kai-kai, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (2301)
Non-activated Peroxymonosulfate-Induced Degradation of Sulfasalazine: Kinetics and Mechanism Investigations	DING Xi, ZHANG Xue-wei, ZHOU Run-sheng, <i>et al.</i> (2310)
Pollution Characteristics and Removal Effects of Antibiotics in Wastewater from Large-Scale Pig Farms in Guizhou	YANG Zhao, LI Jiang, XIANG Fu-liang, <i>et al.</i> (2320)
Nitrogen Removal in Low-C/N Rural Sewage Treatment by Anoxic/Oxic Biofilter Packed with New Types of Fillers	ZHAO Yuan-zhe, YANG Yong-zhe, WANG Hai-yan, <i>et al.</i> (2329)
Nitrogen Removal Performance and Nitrogen/Carbon Balance of Oligotrophic Aerobic Denitrifiers	WEN Gang, WANG Tong, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (2339)
Bacterial Community Shifts and Nitrogen Removal Characteristics for a SNAD Process Treating Anaerobic Digester Liquor of Swine Wastewater (ADLSW) in a Continuous-Flow Biofilm Reactor (CFBR)	QIN Jia-wei, XIN Xin, LU Hang, <i>et al.</i> (2349)
Characteristics of ANAMMOX Granular Sludge and Differences in Microbial Community Structure Under Different Culture Conditions	JIANG Ying, GUO Meng-lei, XIE Jun-xiang, <i>et al.</i> (2358)
Start-up of an Integrated Process of Denitrifying Phosphorus Removal Coupled with Partial Nitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation	CHEN Ya, YIN Wen, ZHANG Xing-xing, <i>et al.</i> (2367)
Construction and Application of an Evaluation System for Soil Environmental Carrying Capacity	LI Xiao-nuo, DING Shou-kang, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i> (2373)
Synthesis of Magnetic Biochar and Its Application in the Remediation of Heavy-Metal-Contaminated Soils	WANG Jun-nan, CHENG Shan-shan, ZHAN Wen-hao, <i>et al.</i> (2381)
Remediation of Heavy-Metal-Contaminated Soil by EDTA Washing Enhanced with Reduction Solubilization	ZHANG Jin-yong, ZHU Yu-ting, WANG Ming-xin, <i>et al.</i> (2390)
Toxicity of Chromium to Root Growth of Barley as Affected by Chromium Speciation and Soil Properties	FU Ping-nan, GONG Xiao-fei, LUO Li-yun, <i>et al.</i> (2398)
Effect of Fertilizer Reduction and Biochar Application on Soil Nitrogen Loss in Purple Upland	WANG Shu, WANG Zi-fang, LONG Yi, <i>et al.</i> (2406)
Relationship Between the Composition of Soil Aggregates and the Distribution of Organic Carbon Under Long-Term Abandoned Restoration	WANG Xing, ZHONG Ze-kun, ZHANG Xin-yi, <i>et al.</i> (2416)
Effects of Biochar Application on Soil Microbial Nutrient Limitations and Carbon Use Efficiency in Lou Soil	WANG Qiang, GENG Zeng-chao, XU Chen-yang, <i>et al.</i> (2425)
N ₂ O Emissions from Tea Plantations with Sorghum Intercropping and Application of Big Urea Pills	ZHANG Ke-bin, LIU Xin-liang, KANG Man, <i>et al.</i> (2434)
Effects of Different Forest Vegetation Types on Soil Nitrogen-Related Microbial Communities and Functions in Jinyun Mountain	WANG Ying-nan, WANG Fu-hua, LUO Dong-hai, <i>et al.</i> (2445)
Nitrous Oxide Emission and Denitrifying Bacterial Communities as Affected by Drip Irrigation with Saline Water in Cotton Fields	GUO Hui-nan, MA Li-juan, HUANG Zhi-jie, <i>et al.</i> (2455)
Effect of Organic Matter Promotion on Nitrogen-Cycling Genes and Functional Microorganisms in Acidic Red Soils	CHU Cheng, WU Zhao-yue, HUANG Qian-ru, <i>et al.</i> (2468)
Effects of Simulated Acid Rain on Soil Fungi Diversity in the Transition Zone of Moso Bamboo and Broadleaf Forest	WANG Nan, PAN Xiao-cheng, WANG Chuan-kuan, <i>et al.</i> (2476)
Differences Between DNA- and RNA-Based Bacterial Communities in Marine Sediments	LI Ming-yue, YANG Yu-hong, MI Tie-zhu, <i>et al.</i> (2485)
Spatial Patterns and Spatial Autocorrelations of Wetland Changes in China During 2003-2013	ZHOU Ting, MA Jiao-jiao, XU Song-jun (2496)