

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.8
第41卷 第8期

目次

首都重大活动与空气重污染应急减排措施效果对比分析 钟焱盛, 周颖, 程水源, 王晓琦, 邵玄逸 (3449)

基于天津市在线数据评估 ISORROPIA-II 模式结果及气溶胶 pH 的影响因素 高洁, 史旭荣, 卫昱婷, 宋少洁, 史国良, 冯银厂 (3458)

餐饮源有机颗粒物排放特征 李源逵, 吴爱华, 童梦雪, 栾胜基, 李鹭, 胡敏 (3467)

华中地区黄冈市一次重度污染期间 PM_{2.5} 中 12 种微量元素特征及来源解析 陈展乐, 田倩, 毛瑶, 刘威杰, 石明明, 程钺, 胡天鹏, 邢新丽, 祁士华, 胡金旭 (3475)

艾比湖地区气溶胶光学特性分析 张喆, 丁建丽, 王瑾杰 (3484)

天津市冬季重污染二次有机化学污染特征及 VOCs 对 SOA 生成潜势 徐虹, 唐邈, 肖致美, 高璟贇, 杨宁, 李立伟, 郑乃源, 陈魁, 邓小文 (3492)

郑州市某城区冬季不同污染水平大气 VOCs 特征及源解析 李一丹, 尹沙沙, 张瑞芹, 于世杰, 杨健, 张栋 (3500)

长江三角洲 2010~2018 年生物质燃烧中等挥发性有机物 (IVOCs) 排放清单 朱永慧, 王倩, 黄凌, 殷司佳, 李莉, 王杨君 (3511)

北方常见绿化树种 BVOCs 排放特征及其与光合作用参数的相关性 许燕, 李双江, 袁相洋, 冯兆忠 (3518)

广州地区秋季不同站点类型地面臭氧变化特征与影响因子 高平, 庄立跃, 王龙, 陈瑜萍, 闫慧, 沈劲, 范丽雅, 叶代启 (3527)

泰安市大气臭氧污染特征及敏感性分析 李凯, 刘敏, 梅如波 (3539)

有色冶炼园区道路扬尘中重金属污染特征及健康风险评价 冯于耀, 史建武, 钟曜谦, 韩新宇, 封银川, 任亮 (3547)

西安市高校校园地表灰尘重金属污染来源解析 樊馨瑶, 卢新卫, 刘慧敏, 秦青 (3556)

超低排放高湿度气态颗粒物监测方法及燃气电厂实际测试 胡月琪, 颜旭, 孔川, 张虎, 郭晓东 (3563)

厦门市船舶控制区大气污染物排放清单与污染特征 王坚, 黄屋, 刘艳英, 陈森阳, 吴艳聪, 何月云, 杨心怡 (3572)

基于交通流的成都市高分辨率机动车排放清单建立 潘玉瑾, 李媛, 陈军辉, 石嘉诚, 田红, 张季, 周敬, 陈霞, 刘政, 钱骏 (3581)

基于无人机电光谱影像和 OPT-MPP 算法的水质参数反演 黄昕晰, 应晗婷, 夏凯, 冯海林, 杨根晖, 杜晓晨 (3591)

不同水体分层对沉积物间隙水氮素垂向分布影响: 以三峡水库和小湾水库为例 刘静思, 朱晓声, 胡子龙, 张思思, 杨正健, 纪道斌, 刘德富 (3601)

城市河道表层水及沉积物中微塑料的污染现状与污染行为 赵昕, 陈浩, 贾其隆, 沈忱思, 朱弈, 李磊, 聂云汉, 叶建锋 (3612)

上海河道浮游植物群落结构时空变化特征及影响因素分析 许志, 陈小华, 沈根祥, 朱英, 钱晓雍, 张心良, 张卫, 胡双庆, 白玉杰 (3621)

过氧化钙 (CaO₂) 联合生物炭对河道底泥的修复 李雨平, 姜莹莹, 刘宝明, 阮文权, 缪恒锋 (3629)

基于双同位素 ($\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ - $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$) 和 IsoSource 模型的岩溶槽谷区地下水硝酸盐来源的定量示踪 徐璐, 蒋勇军, 段世辉, 何瑞亮 (3637)

三峡库区规模化顺坡沟壑果园氮、磷输出过程及流失负荷 严坤, 王玉宽, 刘勤, 徐佩, 闫洋洋 (3646)

高度城镇化地区城市小区降雨径流污染特征及负荷估算 高斌, 许有鹏, 陆苗, 林芷欣, 徐兴 (3657)

Fe@GOCS 的制备及其对水中 As(III) 的吸附 赵超然, 单慧媚, 曾春芽, 张进贤, 彭三曦 (3665)

微塑料对水中铜离子和四环素的吸附行为 薛向东, 王星源, 梅雨晨, 庄海峰, 宋亚丽, 方程冉 (3675)

多孔填料特性对生物膜形成影响 江宇勤, 厉炯慧, 方治国 (3684)

硝化生物膜系统对低温的适应特性: MBBR 和 IFAS 李初, 于莉芳, 张兴秀, 戴子承, 滑思思, 彭党聪 (3691)

单质硫自养短程反硝化耦合厌氧氨氧化强化脱氮 方文烨, 李祥, 黄勇, 郭超然, 胡羽婷, 陶仁杰 (3699)

间歇梯度曝气的生活污水好氧颗粒污泥脱氮除磷 张玉君, 李冬, 李帅, 张杰 (3707)

基于不同废污泥源的短程反硝化快速启动及稳定性 张星星, 王超超, 王焱, 徐乐中, 吴鹏 (3715)

基于 AHP-PROMETHEE II 法的鸟粪石磷回收污泥预处理方案决策 刘晓雷, 李安婕 (3725)

零价铁对厌氧消化过程中氨氮抑制解除的影响 刘吉宝, 牛雨彤, 郁达伟, 谭颖峰, 左壮, 魏源送 (3731)

基于厌氧膜生物反应器的剩余污泥-餐厨垃圾厌氧共消化性能 戴金金, 牛承鑫, 潘阳, 陆雪琴, 甄广印, 郑朝婷, 张瑞良, 何欣昱 (3740)

亚剂量抗生素诱导抗性基因水平迁移 袁其懿, CHEN Hong-jie, Laurence Haller, 何义亮 (3748)

四环素胁迫对 *Shigella flexneri* 细菌四环素抗性基因抗性表达的影响过程 高品, 阮晓慧, 邱文婕, 薛罡, 钱雅洁 (3758)

羟胺对氨氧化菌和亚硝酸盐氧化菌的竞争性选择 乔昕, 王博, 郭媛媛, 彭永臻 (3765)

高温冲击对亚硝酸盐氧化过程中微生物菌群结构影响 侯晓薇, 牛永健, 李维维, 王光杰, 孙洪伟 (3773)

微生物种间相互作用产生锰氧化的普适性及其潜在应用 宁雪, 梁金松, 柏耀辉, 廖恺玲俐, 刘会娟, 曲久辉 (3781)

三亚河红树林表层沉积物中好氧氨氧化微生物的分布特征及潜在硝化速率 罗晴, 甄毓, 彭宗波, 贺惠 (3787)

臭氧污染对水稻生长、产量及矿质金属元素含量的影响 方笑堃, 罗小三, 张丹, 吴礼春, 邱丹, 陈志炜, 赵朕 (3797)

改变碳输入对新疆天山雪岭云杉林土壤呼吸的短期影响 邵康, 贡璐, 何学敏, 陈文静, 张雪妮, 朱海强 (3804)

有机无机肥配施对不同程度盐渍土 N₂O 排放的影响 周慧, 史海滨, 郭珈玮, 张文聪, 王维刚 (3811)

原位电阻热脱附土壤升温机制及影响因素 葛松, 孟宪荣, 许伟, 施维林 (3822)

羽序灯心草作为酸性矿山废弃地先锋植物潜力 黄建洪, 伏江丽, 严鑫睿, 尹凤, 田森林, 宁平, 李英杰 (3829)

滴灌方式和生物质炭对温室土壤矿质态氮及其微生物调控的影响 蔡九茂, 刘杰云, 邱虎森, 吕谋超, 周新国 (3836)

棉秆炭调控对碱性镉污染水稻根际土壤真菌群落结构和功能的影响 刘师豆, 韩耀光, 朱新萍, 吴相南 (3846)

不同水分管理模式联合叶面喷施硅肥对水稻 Cd 累积的影响 魏宾纭, 周航, 刘佳炜, 张竞颐, 黄芳, 霍洋, 胡雨丹, 辜娇峰, 刘俊, 廖柏寒 (3855)

螯合剂 GLDA 对象草修复镉污染农田的影响 覃建军, 唐盛爽, 蒋凯, 黄敬, 侯红波, 龙坚, 彭佩钦 (3862)

种植业面源污染防治技术发展历程分析及趋势预测 俞映惊, 杨林章, 李红娜, 朱昌雄, 杨祺, 薛利红 (3870)

《环境科学》征订启事 (3636) 《环境科学》征稿简则 (3764) 信息 (3538, 3628, 3724)

华中地区黄冈市一次重度污染期间 $PM_{2.5}$ 中 12 种微量元素特征及来源解析

陈展乐¹, 田倩¹, 毛瑶², 刘威杰¹, 石明明^{1,2}, 程铖¹, 胡天鹏¹, 邢新丽^{1,2,*}, 祁士华^{1,2}, 胡金旭³
(1. 中国地质大学(武汉)环境学院, 盆地水文过程与湿地生态恢复实验室, 武汉 430074; 2. 中国地质大学(武汉)生物地质与环境地质国家重点实验室, 武汉 430074; 3. 黄冈市环境监测站, 黄冈 438000)

摘要: 为了给华中地区大气污染防治提供数据和理论支持,于2018年1月13~24日的一次重度污染期间,利用颗粒物中流量采样器采集黄冈市大气 $PM_{2.5}$ 样品48个,运用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)对样品中Li、Be、V、Se、Sr、Mo、Ag、Ba、Tl、Th、Bi和U这12种元素进行分析,基于正定矩阵因子分析法(PMF)对此次污染来源进行分析,并结合后向轨迹模式中的聚类分析法、潜在源分析法(PSCF)和浓度权重分析法(CWT)分析了黄冈市此次 $PM_{2.5}$ 外来输送通道及潜在源分布情况。结果表明,此次污染内因是静稳高湿气象条件的出现,外因是污染的输入,总共有5种污染源,分别为燃料燃烧源(10.59%)、地壳源(24.22%)、工业源(3.16%)、燃煤源(47.57%)和交通源(14.45%)。主要的气流轨迹类型有两种,短距离传输占比62.50%,长距离传输占37.50%。本次污染贡献较大的区域有湖北的中东部、湖南的东北部、安徽的西南部以及河南的南部等地,华中地区存在南北方向的传输通道。除了本地污染之外,区域传输的影响不容忽视,在秋冬季重污染应急响应期间,各地都需要控制好减排措施,联防联控是治理大气污染的关键。

关键词: $PM_{2.5}$; 元素; 气象条件; 正定矩阵因子分析法(PMF); 后向轨迹

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)08-3475-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202001066

Characteristics and Sources of 12 Trace Amount Elements in $PM_{2.5}$ During a Period of Heavy Pollution in Huanggang, Central China

CHEN Zhan-le¹, TIAN Qian¹, MAO Yao², LIU Wei-jie¹, SHI Ming-ming^{1,2}, CHENG Cheng¹, HU Tian-peng¹, XING Xin-li^{1,2,*}, QI Shi-hua^{1,2}, HU Jin-xu³

(1. Laboratory of Basin Hydrology and Wetland Eco-restoration, School of Environmental Studies, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China; 2. State Key Laboratory of Biogeology and Environmental Geology, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China; 3. Environmental Monitoring Station in Huanggang, Huanggang 438000, China)

Abstract: This study provides data and theoretical support for the prevention and control of air pollution in central China. From January 13, 2018, to January 25, 2018, 48 $PM_{2.5}$ samples were collected in Huanggang by particulate matter samplers during a severe pollution episode. Twelve elements (Li, Be, V, Se, Sr, Mo, Ag, Ba, Tl, Th, Bi, and U) were analyzed by ICP-MS. A positive definite matrix factor (PMF), trajectory model of the cluster analysis, potential source analysis (PSCF), and the concentration weight analysis method (CWT) were applied to analyze the potential pollution sources and determine the transmission channel. The results showed that the internal cause of the pollution was the appearance of static, stable, and high humidity meteorological conditions, while the external cause was the input of pollution. Five types of pollution source were determined: fuel combustion (10.59%), crustal (24.22%), industry (3.16%), coal (47.57%), and traffic (14.45%). Two main types of air flow path were found; short distance transmission accounted for 62.50% whereas long distance transport accounted for 37.50%. The major contributors to the pollution included central and eastern Hubei, northeastern Hunan, southwestern Anhui, and southern Henan. North-south transmission channels were observed for central China. In addition to local pollution, the impact of regional transmission should not be ignored. In the emergency response period for heavy pollution during the autumn and winter, all regions need to control emission reduction measures. Joint prevention and control are the keys to air pollution control.

Key words: $PM_{2.5}$; elements; meteorological condition; positive definite matrix factor (PMF); backward trajectory

在灰霾的形成和演化过程中,颗粒物(PM)尤其是空气动力学直径 $\leq 2.5 \mu m$ 的颗粒物($PM_{2.5}$),占据了主导地位^[1]。 $PM_{2.5}$ 可以通过呼吸道进入人体^[2],引起血液系统^[3]和呼吸系统^[4]疾病,甚至对细胞产生危害^[5]。2018年,大约有400万人的死亡与 $PM_{2.5}$ 有关^[6]。2013年冬季以来,中国屡次发生严重的大气污染事件,很多研究学者对这些污染事件的成因和来源做了深入的分析工作。赵岩等^[7]的

研究认为高湿天气会促进重污染天气的形成;姚青等^[8]的研究认为在合适的气象条件下容易造成区域性局部污染;胡鸣等^[9]的研究认为扩散条件有利

收稿日期: 2020-01-07; 修订日期: 2020-03-03

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0212603); 国家自然科学基金项目(41773124)

作者简介: 陈展乐(1994~),男,硕士研究生,主要研究方向为环境地球化学, E-mail: chenzhanle@cug.edu.cn

* 通信作者, E-mail: 39020194@qq.com

时,PM_{2.5}的质量浓度会降低.此外,对PM_{2.5}来源的解析工作对于污染控制有重要的研究意义.近年来,PM_{2.5}的来源已经从单一的煤燃烧向复合源转化^[10,11],区域和当地的排放源以及中远距离的运输一直在增加^[12].杨卫芬等^[13]采用富集因子法分析了华东地区的霾日PM_{2.5}主要来源于土壤尘、冶金化工尘、化石燃料燃烧、垃圾焚烧及建筑扬尘;王晴晴等^[14]运用后向轨迹模型研究了珠三角地区重金属元素的质量浓度分布受靠近或者始于福建的广东东北方向气团、广福沿岸气团、海洋方向气团和来自江西的气团影响.Zhang等^[15]采用PMF模拟了武汉的污染源,李秀等^[16]总结了华中地区黄石市夏季大气PM_{2.5}中元素变化特征及来源.

PM_{2.5}的组成成分包括元素、含碳组分(有机碳和元素碳)和水溶性离子等.有研究表明^[17],大气环境中的元素相比于其他物质更容易富集在细粒子中,从而使PM_{2.5}成为这些元素的主要载体,进而影响人们的生产生活,甚至危及人们的生命安全,因此必须加强对PM_{2.5}中元素的来源解析工作.Feng等^[18]在新乡为期1a的研究中认为Li来源于地壳源,Sr和V来源于人为排放.Amato等^[19]在西班牙的研究中发现元素Ba与Bi和交通排放源有关.Duan等^[20]在北京的研究中认为元素Se、Tl和Ag与燃煤有很大的关联,Be和Mo等元素呈现多源相关的多模式分布.

随着华中地区人口的增长和能源消耗的增加,华中地区的污染已经不容忽视.当前在华中地区有很多研究,但针对一次重度污染期间PM_{2.5}的研究相对较少.黄冈市位于鄂豫皖赣四省交界,是华中地区一个典型的区域监测点,同时也是武汉城市圈的重要组成部分.黄冈市虽没有明显的工业排放源,但人类活动密集.本文通过研究黄冈市一次重污染过程(2018年1月13~25日)中PM_{2.5}及Li、Be、V、Se、Sr、Mo、Ag、Ba、Tl、Th、Bi和U这12种微量元素的污染特征和来源进行分析,以期为华中地区大气污染防治提供数据和理论支持.

1 材料与方法

1.1 样品采集

采用TH-150F智能介质流空气全悬浮颗粒采样器(武汉天虹智能仪表厂),采集冬季一次完整灰霾期间(2018年1月13~25日)PM_{2.5}样品,并分为污染前期、污染中期和污染后期.采样点位于黄冈市环境监测站7层屋顶(N30°27'08",E114°53'08"),技术参数符合国家规定标准(GB 6921-86).流量设定为100 L·min⁻¹,2.5 μm切割头的采样器,采样

时间为06:00~11:00、11:30~16:30、17:00~22:00、22:30~次日05:30,滤膜采用具有较低背景值的特氟龙滤膜,每天4个样品,共采集48个样品.

1.2 样品前处理

将特氟龙滤膜(1/4 Φ90 mm)剪碎于溶样弹中,加入一滴去离子水和适量高纯度HNO₃,置于80℃的电热板上加热6~7 h(盖子半扣),再滴加一定量的高纯度HF,扣紧盖子装入小钢罐内,置于烘箱内,180℃条件下恒温48 h.冷却后将溶样弹取出,打开盖子置于115℃的电热板上加热至近干,再加入少量高纯度浓硝酸,继续在115℃电热板上加热至1滴,取出滴加少量质量分数为30%的硝酸,扣紧盖子,装入钢罐内并放入烘箱中,在180℃下恒温12 h.冷却后将内部液体转移至离心管内,定容至10 g,并利用三重四级杆串级电感耦合等离子体质谱仪(PerkinELmer 350D)测定Li、Be、V、Se、Sr、Mo、Ag、Ba、Tl、Th、Bi和U等12种微量元素的含量.

1.3 质量控制

采样滤膜使用前在马弗炉550℃下烘烤4 h,去除膜上的杂质.样品采集前后滤膜均放置于恒温恒湿箱(温度20~23℃,湿度35%~45%)24 h,再使用十万分之一天平称重(AUW120D日本岛津),每张滤膜称3次直到任意两次误差为小于等于0.000 05 g为止,并取其平均值为最终质量.采样过程中对采样器滤头定时清理,避免造成交叉污染.采用现场空白排除采样过程中背景污染的影响,消解过程使用样品空白、过程空白和试剂空白进行质量控制,以保证样品的保留时间和响应值的准确性.用土壤标准物质BCR-2、BHVO-2、GSS-5、GSS-9、GSS-12和GSS-14对各元素进行回收率校准实验,回收率均在90%~110%之间,每10个样品做一个平行样.

1.4 正定矩阵因子分析法(PMF)模型

PMF模型基于因子分析,将 $X(i \times j)$ 矩阵分解为因子贡献矩阵 $G(i \times k)$ 、因子轮廓矩阵 $F(k \times j)$ 和残差矩阵 $E(e_{ij})$:

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad (1)$$

式中, x_{ij} 为第*i*个样品所测得的第*j*个元素的质量浓度, g_{ik} 为第*k*个来源对第*i*个样品的贡献, f_{kj} 为第*k*个来源的第*j*个元素的质量分数, e_{ij} 为每个样品/种的残留.PMF根据残差矩阵(e_{ij})元素与不确定度(U_{ij})的比值定义目标函数 Q 为:

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left(\frac{e_{ij}}{U_{ij}} \right) \quad (2)$$

本研究使用美国EPA发布的EPAPMF 5.0,对

华中地区黄冈市重污染期间 PM_{2.5} 进行高时间分辨率的来源解析. 取元素质量浓度的 10% 为不确定度. 模型输入的样品资料具体包括 13 种化学组分、PM_{2.5} 质量浓度和各组分的不确定性资料. 本研究通过多次运行程序, 实验不同因子参数和不确定性参数, 寻找最小目标函数值, 同时观察残差矩阵值, 使其尽可能小, 以此保证模拟结果和观测结果有较好的相关关系. 最终得到 5 类因子的贡献率和成分谱.

1.5 后向轨迹模型

本文采用的后向轨迹模式是 HYSPLIT (HYbird single-particle lagrangian integrated trajectory), 该模式由美国国家海洋及大气管理局 (NOAA) 开发推广, 气象资料为美国国家环境预报中心 (NCEP) 提供的同时段全球资料同化系统 (GDAS) 数据. 聚类分析是一种多元统计技术, 以组间差异极大, 组内差异极小为原则进行分组, 通过对大量的轨迹进行分组, 从而得到污染物的输送特征^[21]. 为了解不同输送路径对本地 PM_{2.5} 的影响, 对抵达黄冈市的逐小时 3 d 气流后向轨迹, 起始高度为 500 m, 进行聚类分析, 得到污染期间影响华中地区主要气流输送类型和输送特征.

通过气流后向轨迹, 结合 PMF 的结果, 计算 PM_{2.5} 和各污染源的潜在源区位置^[21]. 潜在源分析法 (PSCF) 的定义为:

$$\text{PSCF}_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}} \quad (3)$$

式中, i 和 j 分别代表经纬度; n_{ij} 是位于 i 和 j 单元的端点总数, m_{ij} 定义为同一单元中超过阈值条件的端点数. 由于 n_{ij} 是概率函数, 其值越小, 造成的误差越大, 所以引入权函数降低了单元的不确定性. 权函数表示为:

$$\text{WPSCF} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}} \times W(n_{ij}) \quad (4)$$

$$W(n_{ij}) = \begin{cases} 1.00, & n_{ij} > 80 \\ 0.70, & 80 > n_{ij} > 20 \\ 0.40, & 20 > n_{ij} > 10 \\ 0.05, & 10 > n_{ij} \end{cases} \quad (5)$$

由于 PSCF 值只给出了网格中潜在污染源的比例, 难以区分不同潜在区域的污染水平, 因此本研究采用了浓度加权轨迹 (CWT) 模型^[21]. CWT 的计算方法为:

$$C_{ij} = \frac{1}{\sum_{l=1}^M \tau_{ijl}} \sum_{l=1}^M c_l \tau_{ijl} \quad (6)$$

式中, l 是经过格网 (i, j) 的轨迹之一, C_{ij} 是污染物的平均权重浓度, c_l 是 l 轨迹经过格网 (i, j) 时携带

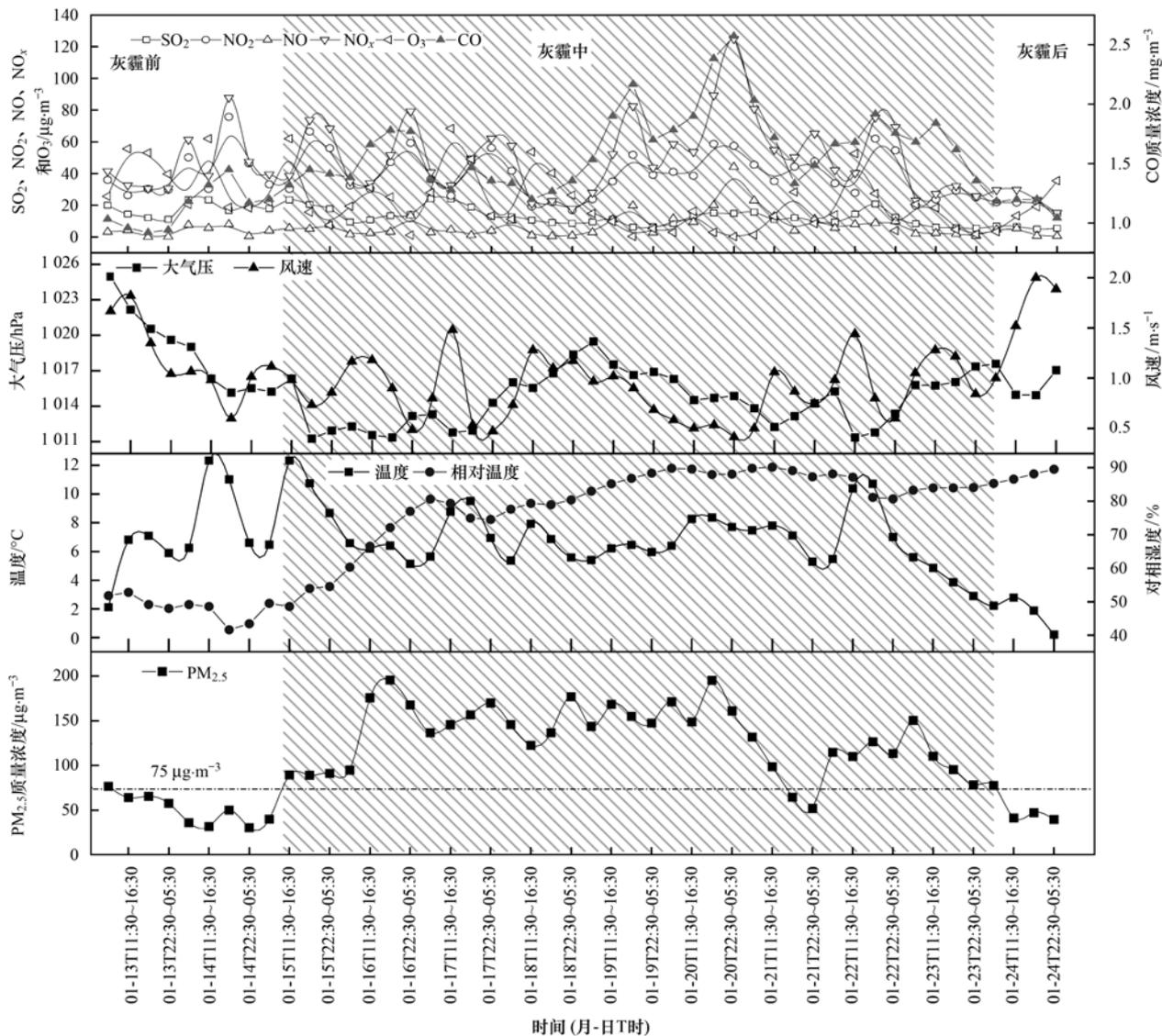
的污染物浓度, τ_{ijl} 是 l 轨迹在格网 (i, j) 的停留时间, 用落在网格内的轨迹 l 的端点数来代替. PSCF 中所用权重函数 W_{ij} 同样适用于 CWT 法, 以减少 n_{ij} 较少时引起的不确定性.

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5} 浓度特征分析

观测期间 PM_{2.5} 的质量浓度变化见图 1. 2018 年 1 月 13 ~ 25 日期间, PM_{2.5} 的质量浓度均值为 110.35 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 1 月 15 ~ 23 日期间, 连续 9 d PM_{2.5} 质量浓度超出 GB 3095-2012 中 PM_{2.5} 二级质量浓度限值 75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 其间 PM_{2.5} 质量浓度均值为 131 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 首要污染物为 PM_{2.5}, 本次污染持续时间长, 是一次严重的灰霾污染. 灰霾期间有 3 次明显的变化过程, 除了 1 月 21 日夜间的 PM_{2.5} 的质量浓度下降至 75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以下, 其余时间均在 75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上. 整个灰霾期间有两个峰值, 分别为 1 月 16 日夜间的 195.7 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以及 1 月 20 日的夜间达到 195.4 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, PM_{2.5} 质量浓度远高于 75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 1 月 16 ~ 20 日期间, PM_{2.5} 的质量浓度呈现一个持续波动的过程, 白天出现波谷, 晚上出现波峰, 可能是夜晚边界层高度降低, 湿度增大, 风速减小, 污染物难以扩散, 造成了 PM_{2.5} 的升高^[22]. 1 月 21 日, 天气污染状况转好, PM_{2.5} 的质量浓度下降至 75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 于 1 月 22 日又升至 125 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 随后下降, 1 月 25 日空气转良.

PM_{2.5} 的质量浓度与污染源排放强度和空气扩散条件的关系密不可分, 图 1 给出了风速、温度、相对湿度以及压强的数据 (数据来源于黄冈市环境监测站). 本研究期间, 黄冈市风速保持在 0 ~ 2 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 范围内, 微风、静风天气多, 大气稳定度高, Olvera Alvarez 在德克萨斯州为期 1 a 的监测研究中发现, 风速对 PM_{2.5} 质量浓度的影响存在一定的阈值^[23], 所以此次采样期间 PM_{2.5} 与风速不是完全的负相关. 温度和湿度变化范围分别为 0.21 ~ 12.34 $^{\circ}\text{C}$ 和 45% ~ 90%, 其平均值分别为 8.00 $^{\circ}\text{C}$ 和 74.41%. 气温升高时促使空气产生垂直湍流运动, 有利于近地层空气中颗粒物的向上输送及扩散, 使得颗粒物浓度降低^[23]. 而相对湿度是反映空气中水汽含量的一个物理量, 对空气中颗粒物的扩散、迁移和转化有重要影响^[24]. 相对湿度较大时, 一方面空气中水汽多会使细颗粒物附着在水汽中, 不易发生沉降而在空气中滞留, 使颗粒物浓度增加^[25]; 另一方面空气中的微细颗粒物因凝聚作用形成大颗粒而发生沉降, 因此颗粒物浓度反而降低^[26]. 本次灰霾期间, 温度和湿

图1 研究期间的气象条件及PM_{2.5}浓度Fig. 1 Meteorological conditions and PM_{2.5} concentration during the study period

度对PM_{2.5}质量浓度影响较大,灰霾期间基本呈现为温度相对较低,且相对湿度较高,特别是灰霾后期,温度和湿度对PM_{2.5}质量浓度影响较为明显,主要表现为PM_{2.5}和元素质量浓度显著下降,温度持续降低,且湿度不断升高.整个灰霾期间,对应的湿度明显增高,有利于污染物的形成,而较低的风速则不利于污染物的扩散,利于污染物的积累.1月21日夜间污染物的下降,可能是因为该时间段湿度最高,有降水发生,对于黄冈地区的污染物有一定的清除作用,有效降低了该地区PM_{2.5}的污染.

灰霾的形成与污染物气体也有非常重要的关系.本研究期间SO₂、NO₂、NO、NO_x、CO和O₃的质量浓度变化见图1(数据来源于黄冈市环境监测站).SO₂的均值质量浓度为13.10 µg·m⁻³,NO₂的质量浓度均值为37.91 µg·m⁻³,CO的质量浓度均值为1.50 mg·m⁻³,O₃的质量浓度均值为22.61

µg·m⁻³,均未超过国家环境空气质量标准(GB 3095-2012)24 h平均质量浓度限值.NO₂在臭氧的形成过程中起着重要作用,也是形成大气中光化学烟雾的重要物质^[27],其峰值出现在1月14日(周末)傍晚阶段,为75.67 µg·m⁻³,低于24 h平均质量浓度限值80 µg·m⁻³,此段时间NO₂质量浓度的增加受机动车数量以及太阳辐射的影响.SO₂在大气中易形成硫酸气溶胶,同时发生化学反应生成硫酸盐,主要受燃煤以及有色金属冶炼的影响^[28],SO₂的峰值出现在1月17日上午,质量浓度为24.17 µg·m⁻³,远远低于24 h平均质量浓度限值150 µg·m⁻³,说明此次污染受SO₂的影响较小.凡是含碳的不完全燃烧都会产生CO,大气中的CO主要来源于汽车排放^[29],CO的质量浓度峰值为2.50 mg·m⁻³,仅为24 h平均质量浓度限值(4 mg·m⁻³)的5/8,出现在1月20号夜间.O₃的形成

主要与氮氧化物和挥发性有机物有关,是一系列光化学反应生成的二次污染物^[30],臭氧的峰值为 68.4 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,接近 O₃ 日最大 8 h 平均质量浓度二级限值标准(160 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)的 1/2, O₃ 质量浓度的高峰一般集中在夏季,所以此次污染 O₃ 的质量浓度不高。

2.2 元素浓度特征分析

本研究期间元素的质量浓度特征及变化见图 2. PM_{2.5} 中元素质量平均浓度较高的无机元素为 Li(0.013 7 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、V (0.017 4 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、Se(0.022 3 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、Ba(0.070 5 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)以及 Sr(0.020 7 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). 在非污染期间, Li、Se、Ba 和 Bi 的平均质量浓度分别为 0.007 8、0.012 9、0.056 7 和 0.005 0 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 污染期间增幅分别为 100%、144%、32.5% 和 164%, 元素 Be、V、Mo 和 Th 的平均质量浓度在污染期间有所下降, 但下降幅度不大, 分别为 10%、4%、37% 和 18%, 其余元素质量浓度变化不大. 其中 Ba 元素在 1 月 15 日质量浓度突然增加, 并且在污染期间出现多个波峰, 大致呈现出白天高夜晚低的变化趋势, 于 1 月 19 日下午达到最高值. Ba 是交通排放的示踪剂^[19], 此次污染可能与 Ba 有关, 即交通排放可能对于此次污染有贡献, 1 月 19 日是周五, 下午下班时间车流量增多, 其变化规律也符合人们出行特点; Mo 元素在 1 月 21 日之前, 质量浓度变化不大, 1 月 22 日突然增高, 出现最高值, Mo 主要用于工业^[31], 表明此次污染过程中, 前期工业污染并不显著, 但很有可能与第二次 PM_{2.5} 质量浓度的增高有关; V 在 1 月 19 日之前质量浓度一直较为平稳, 1 月 20 日, 质量浓度突然升高至最高值, V 主要与燃烧源有关, 如石油燃烧等^[32], 可能与周末人们出行旅游有一定的关系; Sr 在 1 月 15 日质量浓度开始升高, 与 PM_{2.5} 的变化一致, 1 月 15

日出现峰值后, 质量浓度持续波动, 并于 1 月 20 日再次达到峰值, Sr 和扬尘源有关^[33], 可能周末车流量人流量的加大, 促进了扬尘的污染; Se 的质量浓度从 1 月 15 日开始上升, 整个灰霾期间持续波动, 直至 1 月 24 日之后才开始下降, 有白天质量浓度低, 傍晚质量浓度高的趋势, 其中 Se 与燃煤有关^[34], 推测与人们傍晚使用煤炉等有关。

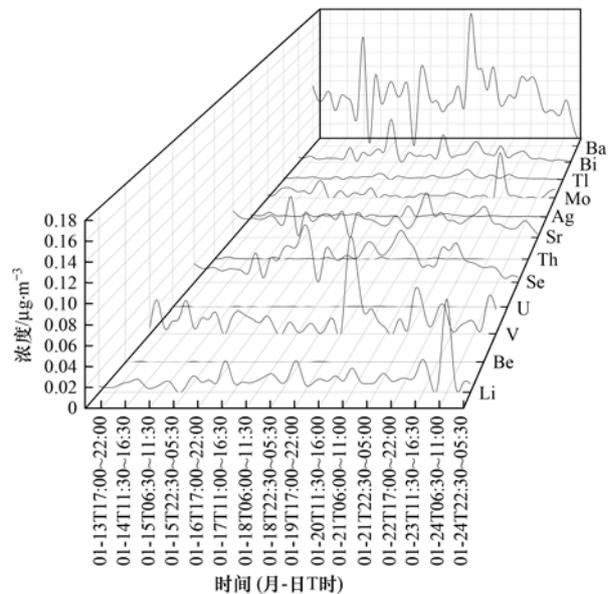


图 2 研究期间元素的质量浓度特征及变化

Fig. 2 Characteristics and changes of element mass concentration during the study period

PM_{2.5} 与元素及元素相互之间的相关性见表 1. 两两之间的相关性系数在 0.29 ~ 0.9 之间, 其中相关性最大的为 Bi 和 Tl, 说明 Bi 和 Tl 很有可能来自于相同的污染源. PM_{2.5} 与大部分的元素有相关性, 其与元素 Se 的相关性最大为 0.76, Se 作为燃煤的标识元素, 说明此次 PM_{2.5} 的污染与燃煤有很大的关系. 元素 Se 与元素 Sr、Ag、Ba、Tl、Bi 和 U 有较强的相关性, 说明这些元素可能会相互影响, Se 与 Tl、

表 1 PM_{2.5} 中元素的 Spearman 相关性¹⁾

Table 1 Spearman correlation of elements in PM_{2.5}

	PM _{2.5}	Li	Be	V	Se	Sr	Mo	Ag	Ba	Tl	Bi	Th	U
PM _{2.5}	1.00												
Li	0.38**	1.00											
Be	0.03	-0.15	1.00										
V	0.40**	0.07	-0.08	1.00									
Se	0.76**	0.44**	0.15	0.16	1.00								
Sr	0.23	0.10	0.19	0.16	0.58**	1.00							
Mo	0.30**	-0.18	0.20	0.30*	0.11	0.49**	1.00						
Ag	0.36*	0.12	0.35*	0.10	0.64**	0.76**	0.48**	1.00					
Ba	0.41**	0.21	0.21	0.21	0.70**	0.80**	0.29*	0.69**	1.00				
Tl	0.51**	0.28	0.17	0.12	0.84**	0.73**	0.32*	0.78**	0.78**	1.00			
Bi	0.57**	0.29*	0.28	0.06	0.84**	0.66**	0.26	0.74**	0.71**	0.90*	1.00		
Th	-0.21	-0.28	0.44**	0.10	0.27	0.67**	0.49**	0.69**	0.48**	0.44*	0.44**	1.00	
U	0.41**	-0.15	0.53**	0.07	0.51**	0.45**	0.25	0.65**	0.43**	0.52**	0.60*	0.59**	1.00

1) ** 表示在 $P \leq 0.01$ 水平(双侧)上显著相关, * 表示在 $P \leq 0.05$ 水平(双侧)上显著相关

Bi 相关系数高达 0.84, 表明 Se 与 Tl、Bi 相互之间的影响很大; 除 Li、Be 和 V 以外, Sr 和其余元素全部相关, 说明这些元素可能相互影响, 来源复杂; Mo 与除 Li、V 以外的其他元素相关, 说明 Mo 受这两种元素影响小; Ag 与 Ba 和除 Li、Be 和 V 这 3 种元素以外的元素相关; Li、Be 和 V 这 3 种元素与其他元素的相关性较小, 说明这 3 种元素受其他元素的影响小.

2.3 PMF 来源解析

PMF 的结果见图 3. 因子 1 的特征因子为 V, 李丽娟等^[32]在太原的研究表明 V 是表征重油燃烧的元素; 杨怀金等^[35]在西南郊区的研究表明 V 与燃油的燃烧有关; Tan 等^[36]在佛山的研究也表明 V 是石油燃烧的一个指示物, 化石燃料的燃烧是 V 的主要排放源. 所以推测因子 1 为化石燃料燃烧源(石油与天然气), 占总排放源的 10.59%.

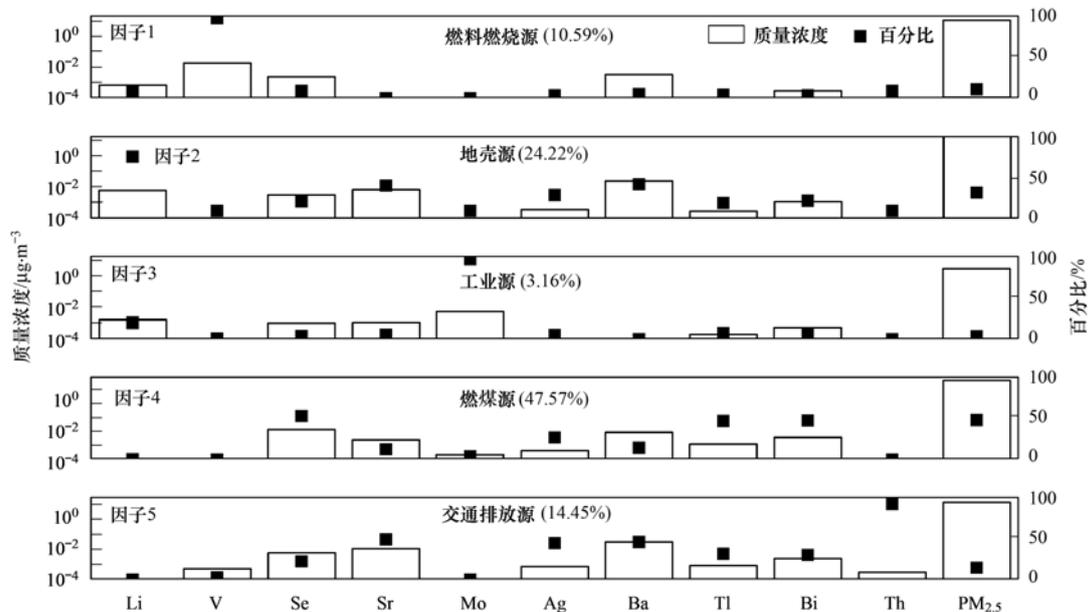


图 3 基于 PMF 获得的源解析因子

Fig. 3 Factor profiles modeled by PMF models

因子 2 的特征元素为 Li, 一般被认为是地壳源, 其贡献率为 24.22%, Feng 等^[18]在新乡为期 1 a 的大气采样研究中也认为 Li 是地壳源.

因子 3 特征因子为 Mo, 主要用于工业炼钢, 推测因子 3 为工业源, 贡献率为 3.16%. 张智胜等^[31]在成都的研究表明 Mo 主要用于炼钢工业, 其可提高钢的强度、硬度和抗腐蚀性; 郑子龙等^[37]在北京的研究也指出, PM_{2.5} 中 Mo 的来源与工业炼钢有关.

因子 4 中 Se 为特征元素, Se 是燃煤的标识元素. Duan 等^[20]在北京的研究认为 Se 的来源为煤燃烧. 杨怀金等^[35]在西南的研究认为 Se 是来自于燃煤; 汤莉莉等^[34]在苏南的研究表明 PM_{2.5} 中 Se 的来源与燃煤相关. 所以推测因子 4 为燃煤源, 其贡献率为 47.57%.

因子 5 中的特征元素为 Ba. Ba 的来源与交通排放有关^[19], 交通排放通常是通过废气、汽车零件的磨损和堆积在道路上的物质的再悬浮来产生的. 推测因子 5 为交通排放源, 占总排放源的 14.45%.

2.4 传输轨迹和潜在源区分析

对黄冈站点采样期间的气团轨迹进行聚类分

析, 共得到 2 类主要的气流轨迹模型(图 4). 类型 1 从湖南的西北部出发, 再经过湖北的南部最后达到黄冈, 此类型气流轨迹传输距离短, 占比 62.50%; 类型 2 气流轨迹传输距离长, 占比 37.50%, 从新疆的北部出发, 经过蒙古国的南部达到内蒙古, 经由宁夏、甘肃、陕西和河南最后达到黄冈站点, 类型 2 是

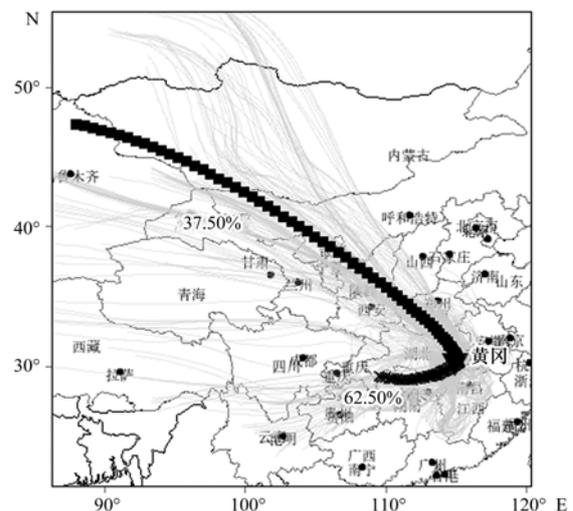


图 4 黄冈站点后向聚类分析

Fig. 4 Backward trajectory clustering analysis of Huanggang

典型的远距离传输。

为了识别 PM_{2.5} 的不同潜在源区的相对贡献大小,利用 WPSCF 对黄冈站点的 PM_{2.5} 的潜在源区进行进一步的分析,具体结果见图 5。其中颜色越深,表明污染越严重(WCWT 同)。由图 5 可

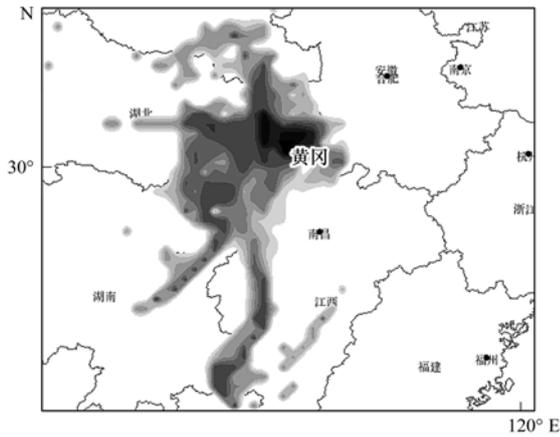


图 5 黄冈 PM_{2.5} 潜在源区分析

Fig. 5 WPSCF analysis of PM_{2.5} in Huanggang

知,PM_{2.5} 其潜在源区较为广泛,污染最重的地方主要集中在湖北地区,包括黄冈、鄂州和黄石等地,其他地区对黄冈站点影响较小,主要受本地气团的影响较大。

为了进一步确定各污染源的污染程度,借助 WCWT 模型,对黄冈地区的 PM_{2.5} 以及各污染源进行分析,结果见图 6。对比图 5 与图 6,PM_{2.5} 除了受本地源的影响,还受武汉、咸宁、湖南的东北部、安徽的西南部以及河南的南部等地的污染,说明此次灰霾不仅仅有本地贡献,外省也有显著的影响。燃料燃烧源主要来自于河南信阳,本地也有部分贡献,其余地方贡献较小;地壳源主要来自于黄冈本地,受本地影响较大;工业源占比较小,符合黄冈工业不发达的特点,其主要来源为咸宁以及本地源;燃煤源主要来自于黄冈麻城和湖北咸宁,原因可能是与麻城和咸宁过多使用燃煤锅炉有关;交通排放源除了受本地影响较大外,咸宁和郴州对此次污染也有较大的影响。

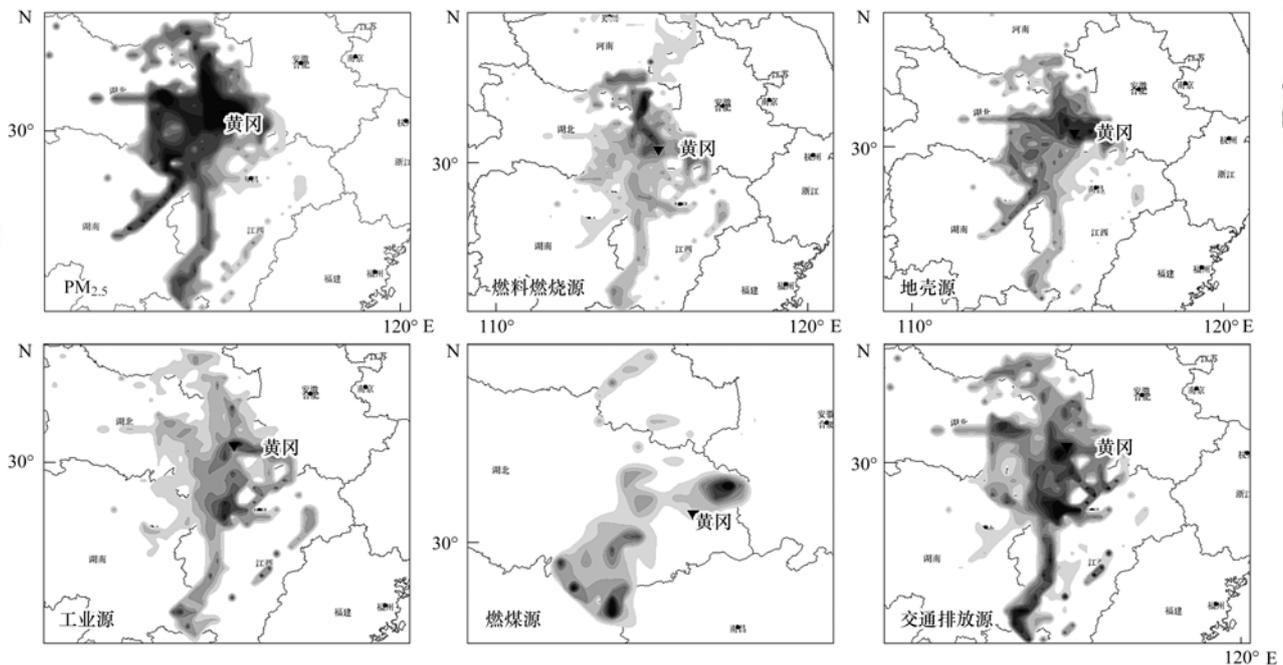


图 6 黄冈 PM_{2.5} 及污染源浓度权重轨迹分析

Fig. 6 WCWT analysis of PM_{2.5} and pollution in Huanggang

3 结论

(1) 2018 年 1 月 13 ~ 25 日,黄冈市大气重污染过程中,PM_{2.5} 日均质量浓度为 $(110.3 \pm 48.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (范围 30.65 ~ 195.69 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$),是《环境空气质量标准》二级标准的 1.46 倍,总共出现 9 个重污染日,高湿低风速静稳天气条件是此次重污染事件的重要原因。PM_{2.5} 中元素质量浓度较高的无机元素为 Li($0.0137 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、V($0.0174 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、

Se($0.0223 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、Ba($0.0705 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 以及 Sr($0.0207 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)。PM_{2.5} 与大部分元素均有相关性,与 Se 的相关性最强。

(2) 此次污染的主要来源分别为:燃料燃烧源(10.59%)、地壳源(24.22%)、工业源(3.16%)、燃煤源(47.57%)和交通排放源(14.45%)。对本次污染贡献较大的地区有湖北的中东部、湖南的东北部、安徽的西南部以及河南的南部等地,华中地区存在直通南北的气流通道。燃烧源主要来自于河南信阳,

本地也有部分贡献,地壳源主要来自于黄冈本地,工业源主要来源为咸宁以及本地源,燃煤源主要来自于黄冈麻城和湖北咸宁,交通排放源除了受本地影响较大外,咸宁和郴州对此次污染也有较大的影响。

(3)采用后向轨迹模型共得到2类主要的气流轨迹类型,短距离传输占比62.50%,长距离传输占37.50%。说明除了本地污染之外,还有区域传输不容忽视,在秋冬季重污染应急响应期间,各地都需要控制好减排措施,联防联控是治理大气污染的关键。

参考文献:

- [1] Shen R R, Schäfer K, Shao L Y, *et al.* Chemical characteristics of PM_{2.5} during haze episodes in spring 2013 in Beijing[J]. *Urban Climate*, 2017, **22**: 51-63.
- [2] Taghvaei S, Sowlat M H, Hassanvand M S, *et al.* Source-specific lung cancer risk assessment of ambient PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in central Tehran[J]. *Environment International*, 2018, **120**: 321-332.
- [3] Xia B, Zhou Y H, Zhu Q Y, *et al.* Personal exposure to PM_{2.5} constituents associated with gestational blood pressure and endothelial dysfunction [J]. *Environmental Pollution*, 2019, **250**: 346-356.
- [4] Zhao C, Niu M Y, Song S Y, *et al.* Serum metabolomics analysis of mice that received repeated airway exposure to a water-soluble PM_{2.5} extract [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, **168**: 102-109.
- [5] Fu Q L, Lyu D, Zhang L F, *et al.* Airborne particulate matter (PM_{2.5}) triggers autophagy in human corneal epithelial cell line [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **227**: 314-322.
- [6] Lurie K, Nayebare S R, Fatmi Z, *et al.* PM_{2.5} in a megacity of Asia (Karachi): source apportionment and health effects[J]. *Atmospheric Environment*, 2019, **202**: 223-233.
- [7] 赵岩, 冯利红, 刘洪亮, 等. 天津市冬季大气PM_{2.5}中金属元素污染特征及健康风险评估[J]. *中华疾病控制杂志*, 2016, **20**(3): 294-298.
Zhao Y, Feng L H, Liu H L, *et al.* Pollution characteristics analysis and health risk assessment of metals in PM_{2.5} in winter of Tianjin[J]. *Chinese Journal of Disease Control & Prevention*, 2016, **20**(3): 294-298.
- [8] 姚青, 韩素芹, 蔡子颖. 天津采暖期大气PM_{2.5}中重金属元素污染及其生态风险评估[J]. *中国环境科学*, 2013, **33**(9): 1596-1600.
Yao Q, Han S Q, Cai Z Y. The pollution characteristics and potential ecological risk of heavy metals in PM_{2.5} during heating season in Tianjin[J]. *China Environmental Science*, 2013, **33**(9): 1596-1600.
- [9] 胡鸣, 张懿华, 赵倩彪. 上海市冬季PM_{2.5}无机元素污染特征及来源分析[J]. *环境科学学报*, 2015, **35**(7): 1993-1999.
Hu M, Zhang Y H, Zhao Q B. Characteristics and sources of inorganic elements in PM_{2.5} during wintertime in Shanghai[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, **35**(7): 1993-1999.
- [10] Ji W J, Li H Y, Zhao B, *et al.* Tracer element for indoor PM_{2.5} in China migrated from outdoor[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **176**: 171-178.
- [11] Luo Y Y, Zhou X H, Zhang J Z, *et al.* PM_{2.5} pollution in a petrochemical industry city of northern China: seasonal variation and source apportionment [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **212**: 285-295.
- [12] Chen D S, Liu X X, Lang J L, *et al.* Estimating the contribution of regional transport to PM_{2.5} air pollution in a rural area on the North China Plain[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **583**: 280-291.
- [13] 杨卫芬, 银燕, 魏玉香, 等. 霾天气下南京PM_{2.5}中金属元素污染特征及来源分析[J]. *中国环境科学*, 2010, **30**(1): 12-17.
Yang W F, Yin Y, Wei Y X, *et al.* Characteristics and sources of metal elements in PM_{2.5} during hazy days in Nanjing [J]. *China Environmental Science*, 2010, **30**(1): 12-17.
- [14] 王晴晴, 谭吉华, 马永亮, 等. 佛山市冬季PM_{2.5}中重金属元素的污染特征 [J]. *中国环境科学*, 2012, **32**(8): 1384-1391.
Wang Q Q, Tan J H, Ma Y L, *et al.* Characteristics of heavy metals in PM_{2.5} during winter in Foshan City [J]. *China Environmental Science*, 2012, **32**(8): 1384-1391.
- [15] Zhang Y, Zheng H, Zhang L, *et al.* Fine particle-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) at an urban site of Wuhan, central China: characteristics, potential sources and cancer risks apportionment[J]. *Environmental Pollution*, 2019, **246**: 319-327.
- [16] 李秀, 张勇, 张家泉, 等. 黄石城区夏季大气PM₁₀/PM_{2.5}中元素特征分析[J]. *环境化学*, 2014, **33**(2): 357-358.
- [17] 王士宝, 姬亚芹, 张伟, 等. 鞍山市冬季大气PM_{2.5}中元素污染特征与来源解析[J]. *环境与可持续发展*, 2017, **42**(2): 160-164.
Wang S B, Ji Y Q, Zhang W, *et al.* Pollution characteristics and sources of elements in PM_{2.5} during winter in Anshan City [J]. *Environment and Sustainable Development*, 2017, **42**(2): 160-164.
- [18] Feng J L, Yu H, Mi K, *et al.* One year study of PM_{2.5} in Xinxiang city, North China: Seasonal characteristics, climate impact and source[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, **154**: 75-83.
- [19] 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.
- [20] Duan J C, Tan J H, Wang S L, *et al.* Size distributions and sources of elements in particulate matter at curbside, urban and rural sites in Beijing [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2012, **24**(1): 87-94.
- [21] Wang Y Q, Zhang X Y, Draxler R R. TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data [J]. *Environmental Modelling & Software*, 2009, **24**(8): 938-939.
- [22] 李岳, 殷宝辉, 耿春梅, 等. 武清地区冬季一次重污染过程垂直分布特征 [J]. *环境科学研究*, 2019, **32**(6): 1012-1019.
Li Y, Yin B H, Geng C M, *et al.* The vertical distribution of air pollutants in a typical winter haze episode in Wuqing Area [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2019, **32**(6): 1012-1019.
- [23] Alvarez H A O, Myers O B, Weigel M, *et al.* The value of using seasonality and meteorological variables to model intra-urban PM_{2.5} variation [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **182**: 1-8.
- [24] Jiang N, Duan S G, Yu X, *et al.* Comparative major components and health risks of toxic elements and polycyclic aromatic hydrocarbons of PM_{2.5} in winter and summer in Zhengzhou: based on three-year data [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **213**: 173-184.

- [25] Koo Y S, Yun H Y, Choi D R, *et al.* An analysis of chemical and meteorological characteristics of haze events in the Seoul metropolitan area during January 12-18, 2013[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **178**: 87-100.
- [26] Wang X Q, Wei W, Cheng S Y, *et al.* Characteristics and classification of PM_{2.5} pollution episodes in Beijing from 2013 to 2015[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **612**: 170-179.
- [27] 崔远政, 姜磊, 张为师, 等. 中国西部人为源 NO₂ 污染的空分布及影响因素研究[J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(12): 4152-4161.
- Cui Y Z, Jiang L, Zhang W S, *et al.* Spatio-temporal variations and influential factors of anthropogenic NO₂ pollution over Western China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(12): 4152-4161.
- [28] 索成, 赵红艳, 王鑫, 等. 京津冀及周边地区区域贸易隐含二氧化硫排放[J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(11): 3916-3923.
- Suo C, Zhao H Y, Wang X, *et al.* Sulfur dioxide emission embodied in interregional trade among Beijing-Tianjin-Hebei and surrounding areas[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(11): 3916-3923.
- [29] 郭倩, 潘海婷, 黄河仙, 等. 娄底市 2015 年-2018 年一氧化碳时空分布特征研究[J]. *环境科学与管理*, 2019, **44**(12): 116-119.
- [30] 邹宇, 邓雪娇, 李菲, 等. 广州番禺大气成分站复合污染过程 VOCs 对 O₃ 与 SOA 的生成潜势[J]. *环境科学*, 2017, **38**(6): 2246-2255.
- Zou Y, Deng X J, Li F, *et al.* Effect of VOCs on O₃ and SOA formation potential during the combined pollution process in Guangzhou Panyu atmospheric composition station [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(6): 2246-2255.
- [31] 张智胜, 陶俊, 龙颖贤, 等. 成都城区 PM_{2.5} 中有害微量元素的污染特征[J]. *中国科学院大学学报*, 2014, **31**(3): 426-430, 438.
- Zhang Z S, Tao J, Long Y X, *et al.* Characteristics of hazardous trace elements in PM_{2.5} in urban area of Chengdu[J]. *Journal of University of Chinese Academy of Sciences*, 2014, **31**(3): 426-430, 438.
- [32] 李丽娟, 温彦平, 彭林, 等. 太原市采暖季 PM_{2.5} 中元素特征及重金属健康风险评估[J]. *环境科学*, 2014, **35**(12): 4431-4438.
- Li L J, Wen Y P, Peng L, *et al.* Characteristic of elements in PM_{2.5} and health risk assessment of heavy metals during heating season in Taiyuan[J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(12): 4431-4438.
- [33] Wang S S, Hu G R, Yan Y, *et al.* Source apportionment of metal elements in PM_{2.5} in a coastal city in Southeast China: combined Pb-Sr-Nd isotopes with PMF method[J]. *Atmospheric Environment*, 2019, **198**: 302-312.
- [34] 汤莉莉, 汤蕾, 花艳, 等. 苏南三市秋冬季 PM_{2.5} 中水溶性离子和元素特征及源解析[J]. *大气科学学报*, 2015, **38**(5): 686-693.
- Tang L L, Tang L, Hua Y, *et al.* Characteristics and source apportionment of water-soluble ions and elements in PM_{2.5} in three cities of South Jiangsu in autumn and winter [J]. *Transactions of Atmospheric Sciences*, 2015, **38**(5): 686-693.
- [35] 杨怀金, 杨德容, 叶芝祥, 等. 成都西南郊区春季 PM_{2.5} 中元素特征及重金属潜在生态风险评估[J]. *环境科学*, 2016, **37**(12): 4490-4503.
- Yang H J, Yang D R, Ye Z X, *et al.* Characteristics of elements and potential ecological risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} at the southwest suburb of Chengdu in spring[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(12): 4490-4503.
- [36] Tan J H, Duan J C, Ma Y L, *et al.* Source of atmospheric heavy metals in winter in Foshan, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **493**: 262-270.
- [37] 郑子龙, 张凯, 陈义珍, 等. 北京一次混合型重污染过程大气颗粒物元素组分分析[J]. *环境科学研究*, 2014, **27**(11): 1219-1226.
- Zheng Z L, Zhang K, Chen Y Z, *et al.* Study on elements in aerosols during a mixed serious pollution episode in Beijing[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2014, **27**(11): 1219-1226.

CONTENTS

Comparison Analysis of the Effect of Emission Reduction Measures for Major Events and Heavy Air Pollution in the Capital	ZHONG Yi-sheng, ZHOU Ying, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i>	(3449)
Evaluation of Different ISORROPIA-II Modes and the Influencing Factors of Aerosol pH Based on Tianjin Online Data	GAO Jie, SHI Xu-rong, WEI Yu-ting, <i>et al.</i>	(3458)
Emission Characteristics of Particulate Organic Matter from Cooking	LI Yuan-ju, WU Ai-hua, TONG Meng-xue, <i>et al.</i>	(3467)
Characteristics and Sources of 12 Trace Amount Elements in PM _{2.5} During a Period of Heavy Pollution in Huanggang, Central China	CHEN Zhan-le, TIAN Qian, MAO Yao, <i>et al.</i>	(3475)
Aerosol Optical Properties over the Ebinur Region	ZHANG Zhe, DING Jian-li, WANG Jin-jie	(3484)
Characteristics of Secondary Organic Particles and the Potential Formation of SOA from VOCs During Wintertime Heavy Pollution Episodes in Tianjin	XU Hong, TANG Miao, XIAO Zhi-mei, <i>et al.</i>	(3492)
Characteristics and Source Apportionment of VOCs at Different Pollution Levels During the Winter in an Urban Area in Zhengzhou	LI Yi-dan, YIN Sha-sha, ZHANG Rui-qin, <i>et al.</i>	(3500)
Emission Inventory of Intermediate Volatility Organic Compounds (IVOCs) from Biomass Burning in the Yangtze River Delta During 2010-2018	ZHU Yong-hui, WANG Qian, HUANG Ling, <i>et al.</i>	(3511)
Emission Characteristics of Biogenic Volatile Compounds (BVOCs) from Common Greening Tree Species in Northern China and Their Correlations with Photosynthetic Parameters	XU Yan, LI Shuang-jiang, YUAN Xiang-yang, <i>et al.</i>	(3518)
Characteristics of Surface Ozone and Impact Factors at Different Station Types During the Autumn in Guangzhou	GAO Ping, ZHUANG Li-yue, WANG Long, <i>et al.</i>	(3527)
Pollution Characteristics and Sensitivity Analysis of Atmospheric Ozone in Taian City	LI Kai, LIU Min, MEI Ru-bo	(3539)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Road Dust from Non-ferrous Smelting Parks	FENG Yu-yao, SHI Jian-wu, ZHONG Yao-qian, <i>et al.</i>	(3547)
Pollution and Source Analysis of Heavy Metal in Surface Dust from Xi'an University Campuses	FAN Xin-yao, LU Xin-wei, LIU Hui-min, <i>et al.</i>	(3556)
Monitoring Method of Total Particulate Matter in Ultra-low-emission and High-humidity Exhaust Gas from Stationary Sources and an Actual Test in a Gas Power Plant	HU Yue-qi, YAN Xu, KONG Chuan, <i>et al.</i>	(3563)
Vessels' Air Pollutant Emissions Inventory and Emission Characteristics in the Xiamen Emission Control Area	WANG Jian, HUANG Zhi, LIU Yan-ying, <i>et al.</i>	(3572)
Method for High-resolution Emission Inventory for Road Vehicles in Chengdu Based on Traffic Flow Monitoring Data	PAN Yu-jin, LI Yuan, CHEN Jun-hui, <i>et al.</i>	(3581)
Inversion of Water Quality Parameters Based on UAV Multispectral Images and the OPT-MPP Algorithm	HUANG Xin-xi, YING Han-ting, XIA Kai, <i>et al.</i>	(3591)
Effects of Different Water Stratification on the Vertical Distribution of Nitrogen in Sediment Interstitial Waters: A Case Study of the Three Gorges Reservoir and Xiaowan Reservoir	LIU Jing-si, ZHU Xiao-sheng, HU Zi-long, <i>et al.</i>	(3601)
Pollution Status and Pollution Behavior of Microplastic in Surface Water and Sediment of Urban Rivers	ZHAO Xin, CHEN Hao, JIA Qi-long, <i>et al.</i>	(3612)
Spatial and Temporal Variation of Phytoplankton Community Structure and Its Influencing Factors in Shanghai River Channels	XU Zhi, CHEN Xiao-hua, SHEN Gen-xiang, <i>et al.</i>	(3621)
Restoration of River Sediment by Calcium Peroxide (CaO ₂) Combined with Biochar	LI Yu-ping, JIANG Ying-ying, LIU Bao-ming, <i>et al.</i>	(3629)
Quantification of Nitrate Sources to Groundwater in Karst Trough-valley Areas Based on Dual Stable Isotopes of $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ and $\delta^{18}\text{O-NO}_3^-$ and the IsoSource Model	XU Lu, JIANG Yong-jun, DUAN Shi-hui, <i>et al.</i>	(3637)
Dynamic Process of Nitrogen and Phosphorus Export and Loss Load in an Intensive Orchard with Ridge and Furrow Plantation in the Three Gorges Reservoir Area	YAN Kun, WANG Yu-kuan, LIU Qin, <i>et al.</i>	(3646)
Analysis of Rainfall Runoff Pollution and Pollution Load Estimation for Urban Communities in a Highly Urbanized Region	GAO Bin, XU You-peng, LU Miao, <i>et al.</i>	(3657)
Adsorption of As(III) in Water by Iron-loaded Graphene Oxide-Chitosan	ZHAO Chao-ran, SHAN Hui-mei, ZENG Chun-ya, <i>et al.</i>	(3665)
Sorption Behaviors of Copper Ions and Tetracycline on Microplastics in Aqueous Solution	XUE Xiang-dong, WANG Xing-yuan, MEI Yu-chen, <i>et al.</i>	(3675)
Effect of Porous Fillers Properties on Biofilm Growth	JIANG Yu-qin, LI Jiong-hui, FANG Zhi-guo	(3684)
Adaptability of Nitrifying Biofilm Systems to Low Temperature: MBBR and IFAS	LI Ren, YU Li-fang, ZHANG Xing-xiu, <i>et al.</i>	(3691)
Improved on Nitrogen Removal of Anaerobic Ammonia Oxidation by Coupling Element Sulfur-based Autotrophic Short-cut Denitrification	FANG Wen-ye, LI Xiang, HUANG Yong, <i>et al.</i>	(3699)
Nitrogen and Phosphorus Removal from Domestic Sewage Aerobic Granular Sludge Under Intermittent Gradient Aeration	ZHANG Yu-jun, LI Dong, LI Shuai, <i>et al.</i>	(3707)
Rapid Start-up and Stability of Partial Denitrification Based on Different Waste Sludge Sources	ZHANG Xing-xing, WANG Chao-chao, WANG Yao, <i>et al.</i>	(3715)
Decision-making Analysis of Excess Sludge Pretreatment for Struvite Recovery Based on AHP-PROMETHEE II Method	LIU Xiao-lei, LI An-jie	(3725)
Effect on Ammonia Inhibition Mitigation in the Anaerobic Digestion Process with Zero-Valent Iron	LIU Ji-bao, NIU Yu-tong, YU Da-wei, <i>et al.</i>	(3731)
Performance of Anaerobic Membrane Bioreactors for the Co-digestion of Sewage Sludge and Food Waste	DAI Jin-jin, NIU Cheng-xin, PAN Yang, <i>et al.</i>	(3740)
Antibiotics Induce Horizontal Gene Transfer of Resistance at Sublethal Concentrations	YUAN Qi-yi, CHEN Hong-jie, Laurence Haller, <i>et al.</i>	(3748)
Impact of Tetracycline Antibiotic on the Transcriptional Expression of Tetracycline Resistance Genes in <i>Shigella flexneri</i>	GAO Pin, RUAN Xiao-hui, QIU Wen-jie, <i>et al.</i>	(3758)
Competitive Selection of Hydroxylamine on Ammonia Oxidizing Bacteria and Nitrite Oxidizing Bacteria	QIAO Xin, WANG Bo, GUO Yuan-yuan, <i>et al.</i>	(3765)
Analysis of the Effect of Temperature on the Microbial Flora Structure During the Nitrite Oxidation Process Using 16S rRNA High-throughput Sequencing	HOU Xiao-wei, NIU Yong-jian, LI Wei-wei, <i>et al.</i>	(3773)
Universality and Potential Application of Mn(II) Oxidation Triggered by Microbial Interspecies Interactions	NING Xue, LIANG Jin-song, BAI Yao-hui, <i>et al.</i>	(3781)
Distribution and Potential Nitrification Rates of Aerobic Ammonia-Oxidizing Microorganisms in Surface Sediments of Mangrove in Sanya River	LUO Qing, ZHEN Yu, PENG Zong-bo, <i>et al.</i>	(3787)
Effects of Ozone Pollution on Growth, Yields, and Mineral Metallic Element Contents of Paddy Rice	FANG Xiao-kun, LUO Xiao-san, ZHANG Dan, <i>et al.</i>	(3797)
Short Term Effects of a Changing Carbon Input on the Soil Respiration of <i>Picea schrenkiana</i> Forests in the Tianshan Mountains, Xinjiang	SHAO Kang, GONG Lu, HE Xue-min, <i>et al.</i>	(3804)
Effects of the Combined Application of Organic and Inorganic fertilizers on N ₂ O Emissions from Saline Soil	ZHOU Hui, SHI Hai-bin, GUO Jia-wei, <i>et al.</i>	(3811)
Mechanism and Influencing Factors of Increasing Soil Temperature by <i>in-situ</i> Electrical Resistance Heating	GE Song, MENG Xian-rong, XU Wei, <i>et al.</i>	(3822)
Acid Mine Wasteland Reclamation by <i>Juncus ochraceus</i> Buchen as a Potential Pioneer Plant	HUANG Jian-hong, FU Jiang-li, YAN Xin-rui, <i>et al.</i>	(3829)
Effects of Drip Irrigation Patterns and Biochar Addition on Soil Mineral Nitrogen and Microbial Regulation of Greenhouse	CAI Jiu-mao, LIU Jie-yun, QIU Hu-sen, <i>et al.</i>	(3836)
Effects of Cotton Stalk Biochar on the Structure and Function of Fungi Community in Alkaline Rhizosphere Soil of Rice Under Cadmium Pollution	LIU Shi-dou, HAN Yao-guang, ZHU Xin-ping, <i>et al.</i>	(3846)
Effects of Different Treatments with Water Management Combined with Leaf Spraying Silicon Fertilizer on Cd Accumulation in Rice	WEI Bin-yun, ZHOU Hang, LIU Jia-wei, <i>et al.</i>	(3855)
Effects of Chelate GLDA on the Remediation of Cadmium Contaminated Farmland by <i>Pennisetum purpureum</i> Schum	QIN Jian-jun, TANG Sheng-shuang, JIANG Kai, <i>et al.</i>	(3862)
Situation Analysis and Trend Prediction of the Prevention and Control Technologies for Planting Non-Point Source Pollution	YU Ying-liang, YANG Lin-zhang, LI Hong-na, <i>et al.</i>	(3870)