

方知库  
Eco-Environmental  
Knowledge Web

# 环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV  
HUANJING KEXUE

长江经济带PM<sub>2.5</sub>空间异质性和驱动因素的地理探测

王丽丽, 刘笑杰, 李丁, 孙颖琦



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年3月

第43卷 第3期

Vol.43 No.3

目次

2000~2020年天津PM<sub>2.5</sub>质量浓度演变及驱动因子分析 ..... 蔡子颖, 郝团, 韩素芹, 唐颖潇, 杨旭, 樊文雁, 姚青, 邱晓滨(1129)

天津市PM<sub>2.5</sub>-O<sub>3</sub>复合污染特征及来源分析 ..... 肖致美, 徐虹, 高璟寰, 蔡子颖, 毕温凯, 李鹏, 杨宁, 邓小文, 戴运峰(1140)

基于随机森林模型的武汉市城区大气PM<sub>2.5</sub>来源解析 ..... 张志豪, 陈楠, 祝波, 陶卉婷, 成海容(1151)

华北南部重污染城市周边区域二次气溶胶的化学特征及来源解析 ..... 任秀龙, 胡伟, 吴春苗, 胡偲豪, 高娜娜, 张崇崇, 岳亮, 王金喜, 樊景森, 牛红亚(1159)

“大气十条”实施结束川南城市群秋季霾污染过程中水溶性离子特征 ..... 吴安南, 黄小娟, 何仁江, 李金建, 叶秋麟, 吴涛, 肖智丹, 刘子锐, 王跃思, 张小玲, 张军科(1170)

郑州市典型污染过程PM<sub>10</sub>中重金属浓度、来源及健康风险评估 ..... 翟诗婷, 王申博, 张栋, 赵孝因, 杨洁茹, 刘洋, 陈红阳, 张瑞芹(1180)

长江经济带PM<sub>2.5</sub>空间异质性和驱动因素的地理探测 ..... 王丽丽, 刘笑杰, 李丁, 孙颖琦(1190)

长三角地区PM<sub>2.5</sub>浓度对土地利用/覆盖转换的空间异质性响应 ..... 周丽霞, 吴涛, 蒋国俊, 张建珍, 濮励杰, 徐飞, 解雪峰(1201)

“2+26”城市春节和元宵节期间污染特征、气象影响和预报回顾分析 ..... 朱媛媛, 王晓斐, 汪巍, 刀谔, 王帅, 陈善荣(1212)

基于小波变换的山西省PM<sub>2.5</sub>污染特征及影响因素 ..... 张可可, 胡冬梅, 闫雨龙, 彭林, 段小琳, 尹浩, 王凯, 邓萌杰(1226)

中国地表臭氧浓度估算及健康影响评估 ..... 赵楠, 卢毅敏(1235)

湖南省臭氧污染基本特征分析及长期趋势变化主控因素识别 ..... 刘妍妍, 杨雷峰, 谢丹平, 泽仁央宗, 黄志烟, 杨俊, 赵鹏, 韩静磊, 贾文超, 袁自冰(1246)

山东半岛近地面O<sub>3</sub>浓度时空变化及潜在源区解析 ..... 李乐, 刘旻霞, 肖仕锐, 王思远, 米佳乐(1256)

COVID-19疫情期间雄安新区VOCs的变化特征、臭氧生成潜势及来源解析 ..... 刘新军, 王淑娟, 刘程, 范莉茹, 付翠轻, 齐莹, 宿文康(1268)

淄博市城区臭氧超标期间的VOCs污染特征与来源解析 ..... 王帅, 王秀艳, 杨文, 王雨燕, 白瑾丰, 程颖(1277)

淄博市夏季城区与背景点VOCs污染特征比较 ..... 秦涛, 徐勃, 王信梧, 李丽明, 杨文, 王晓丽, 耿春梅(1286)

四川省餐饮源挥发性有机物组分特征和清单 ..... 钱骏, 韩丽, 陈军辉, 王斌, 姜涛, 徐晨曦, 李英杰, 王成辉, 王波(1296)

餐饮源气相与颗粒相多环芳烃排放特征 ..... 李源速, 吴爱华, 童梦雪, 栾胜基, 李鹭(1307)

堆肥厂不同工作区空气真菌的多样性与群落结构 ..... 于奥园, 邢礼军, 孙兴滨, 仇天雷, 王旭明, 高敏(1315)

城市扬尘污染主要成因与精准治尘思路 ..... 李廷昆, 冯银厂, 毕晓辉, 张裕芬, 吴建会(1323)

黄河干流水质评价与时空变化分析 ..... 刘彦龙, 郑易安(1332)

典型山地城市河流营养元素空间分布特征及影响因素分析:以重庆市清水溪为例 ..... 王超, 叶秋, 贾伯阳, 何文战, 党超军, 黄焱, 杜浪(1346)

三峡库区支流的河-湖两态及其对沉积物不同形态磷含量的影响 ..... 黄伟, 张研, 罗晓佼, 张磊(1356)

派河及其支流溶解性有机质分子组成特征 ..... 詹亚, 尹浩, 冯景伟, 冯艾荣, 胡艳云, 张刘, 郑刘根(1365)

粤港澳大湾区典型潮间带环境多介质中Cd形态空间分布特征及其影响因素 ..... 崔新月, 莫武秋, 廖建波(1375)

骆马湖及主要入湖河流表层水体中抗生素的赋存特征及风险评估 ..... 龚润强, 赵华璋, 高占欣, 胡冠九, 卜元卿, 张圣虎, 邱惠(1384)

宁夏第三排水沟中抗生素的污染特征与生态风险评估 ..... 李富娟, 高礼, 李凌云, 卜兰香, 陶红, 杨桂钦(1394)

百年来北方湖泊沉积物PAHs的变化特征及其对人类活动的响应 ..... 龚雄虎, 赵中华, 丁琪琪, 张路, 姚书春, 薛滨(1404)

长江流域河流和湖库的浮游细菌群落差异 ..... 胡愈忻, 张静, 黄杰, 段春建, 李天翠, 刘威, 王英才, 胡圣(1414)

河套平原灌溉间隙期乌梁素海水体细菌群落结构特征 ..... 史玉娇, 李文宝, 张博尧, 姚国旺, 史小红(1424)

不同空间尺度的景观结构对袁河浮游细菌群落的影响 ..... 舒旺, 王鹏, 丁明军, 张华, 黄高翔, 聂明华(1434)

鄱阳湖白鹤保护区微塑料表面微生物群落结构特征 ..... 刘淑丽, 简敏菲, 邹龙, 胡启武(1447)

微塑料对变形杆菌生物膜生长发育的影响 ..... 陶辉, 戚怡婷, 于多, 杨兰, 顾颖, 厉彦辉(1455)

乌梁素海低密度微塑料聚合物沉降规律 ..... 刘禹, 史小红, 张生, 郝若男, 孙标, 赵胜男(1463)

老化前后微塑料对富里酸的吸附 ..... 宋亚丽, 俞娅, 郑磊, 汪华, 朱文芳(1472)

天津市滨海河流N<sub>2</sub>O扩散通量及控制因子 ..... 汤梦瑶, 胡晓康, 王洪伟, 王云仓, 常素云, 王松庆, 钟继承(1481)

铁矿石和生物炭添加对潜流人工湿地污水处理效果和温室气体排放及微生物群落的影响 ..... 陈鑫童, 郝庆菊, 熊艳芳, 胡剑, 江长胜(1492)

降雨径流污染风险等级识别与优化方法 ..... 齐小天, 张质明, 赵鑫, 胡文翰, 刘迪(1500)

基于贝叶斯网络的给水管网消毒副产物生成因素分析 ..... 江杉杉, 王臻宇, 高权, 杨愿愿, 高方舟, 华佩, 应光国(1512)

聚硫代酰胺修饰活性炭对Au(III)的选择性吸附效果与机制 ..... 赵文金, 张顺, 安晓强, 兰华春, 刘会娟, 曲久辉(1521)

F/M对活性污泥微生物生态网络的影响 ..... 张冰, 孙展翔, 文湘华(1529)

城乡融合区土壤元素地球化学特征与源解析:以天府新区青龙片区为例 ..... 刘书准, 王德伟, 施泽明, 唐亮, 章凤英, 廖程, 李晓雨, 徐文斌(1535)

基于总量与形态的矿区周边土壤重金属生态风险与健康风险评估 ..... 王蕊, 陈楠, 张二喜(1546)

湖南锡矿山周边土壤-农作物系统镉迁移转换特征及污染评价 ..... 张龙, 宋波, 黄凤艳, 肖乃川, 顿梦杰(1558)

生物炭负载氧化石墨烯对离子型稀土土壤中重金属的阻控效应 ..... 杨士, 刘祖文, 龙培, 毕永顺, 林苑, 左华伟(1567)

溶解性有机质强化棉花修复镉污染土壤 ..... 闵涛, 罗彤, 陈丽丽, 茹思博, 李俊华(1577)

铁锰氧化物-微生物负载生物炭材料对镉和砷的吸附机制 ..... 连斌, 吴骥子, 赵科理, 叶正钱, 袁峰(1584)

不同冬小麦品种镉富集转运及离子组特征差异 ..... 刘畅, 徐应明, 黄青青, 陶雪莹, 王林, 孙灼兵, 赵立杰(1596)

镉胁迫下不同小麦品种对镉的积累特性 ..... 任超, 任或仲, 王浩, 朱利文, 李竞天, 杜倩倩, 李萍(1606)

嘉陵江滨岸带不同土地利用类型对土壤细菌群落多样性的影响 ..... 刘坤和, 薛玉琴, 竹兰萍, 徐飞, 朱志豪, 张拓, 张富斌(1620)

蚯蚓/钾改性生物炭对As污染红壤中细菌多样性和群落结构的影响 ..... 苏倩倩, 李莲芳, 朱昌雄, 叶婧, 刘雪, 耿兵, 田云龙, 黄晓雅(1630)

DA-6和EDDS施用对龙葵生长、Cd吸收和土壤细菌群落结构的影响 ..... 罗洋, 孙丽, 刘方, 任军, 郭金梅, 闫修民(1641)

地膜覆盖对农田土壤养分和生态酶计量学特征的影响 ..... 胡志娥, 肖谋良, 王双, 董瑶瑶, 鲁顺保, 陈剑平, 葛体达(1649)

增温和增雨对黄土丘陵区撂荒地土壤呼吸的影响 ..... 王兴, 钟泽坤, 朱玉帆, 王佳懿, 杨改河, 任成杰, 韩新辉(1657)

秸秆还田、地膜覆盖及施肥对冬小麦田N<sub>2</sub>O和N<sub>2</sub>排放的影响 ..... 彭毅, 李惠通, 张少维, 阳婷, 王筱斐, 周春菊, 王林权(1668)

基于Meta分析的不同生产条件下秸秆还田对土壤挥发性的影响 ..... 赵政鑫, 王晓云, 田雅洁, 王锐, 彭青, 蔡焕杰(1678)

施肥对农田土壤抗生素抗性基因影响的整合分析 ..... 冉继伟, 肖琼, 黄敏, 蔡岸冬, 张文菊(1688)

《环境科学》征订启事(1331) 《环境科学》征稿简则(1403) 信息(1462, 1511, 1605)

# 基于随机森林模型的武汉市城区大气 PM<sub>2.5</sub> 来源解析

张志豪<sup>1</sup>, 陈楠<sup>2</sup>, 祝波<sup>2</sup>, 陶卉婷<sup>1</sup>, 成海容<sup>1\*</sup>

(1. 武汉大学资源与环境科学学院, 武汉 430072; 2. 湖北省生态环境监测中心站, 武汉 430074)

**摘要:** 基于2019年12月~2020年11月期间武汉市城区大气 PM<sub>2.5</sub> 及其主要化学组分(碳质组分、水溶性离子和元素组分)的在线监测数据,分析武汉城区大气 PM<sub>2.5</sub> 的污染特征,并利用主成分分析方法和随机森林模型,对 PM<sub>2.5</sub> 进行来源解析。结果表明,武汉市大气  $\rho(\text{PM}_{2.5})$  冬季最高,为  $(61.33 \pm 35.32) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 而夏季最低,为  $(17.87 \pm 10.06) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。其中碳质组分以有机碳为主,年均值为  $(7.27 \pm 3.51) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 离子组分中  $\rho(\text{NO}_3^-)$ 、 $\rho(\text{SO}_4^{2-})$  和  $\rho(\text{NH}_4^+)$  最高,年均值分别为  $(11.55 \pm 3.86)$ 、 $(7.55 \pm 1.53)$  和  $(7.34 \pm 1.99) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 元素组分中  $\rho(\text{K})$ 、 $\rho(\text{Fe})$  和  $\rho(\text{Ca})$  最高,年均值分别为  $(752.80 \pm 183.98)$ 、 $(542.34 \pm 142.55)$  和  $(459.70 \pm 141.99) \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。通过主成分分析因子提取和随机森林定量分析,得到5类主要污染源,其在春、夏、秋、冬这4个季节贡献率结果分别如下:燃煤与二次源(46%、39%、41%、52%)、机动车排放源(22%、28%、27%、21%)、工业排放源(14%、18%、17%、13%)、扬尘源(10%、8%、6%、6%)和生物质燃烧源(8%、7%、9%、8%)。最后对随机森林模型进行评价,发现4个季节模拟效果  $R^2$  均达到了0.85以上,处于较高水平,其中冬季( $R^2 = 0.974$ )模型拟合效果最好,春季( $R^2 = 0.936$ )与秋季( $R^2 = 0.937$ )效果次之,夏季( $R^2 = 0.866$ )表现相对较弱。

**关键词:** PM<sub>2.5</sub>; 主成分分析(PCA); 随机森林(RF); 来源解析; 污染特征

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)03-1151-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.202108051

## Source Analysis of Ambient PM<sub>2.5</sub> in Wuhan City Based on Random Forest Model

ZHANG Zhi-hao<sup>1</sup>, CHEN Nan<sup>2</sup>, ZHU Bo<sup>2</sup>, TAO Hui-ting<sup>1</sup>, CHENG Hai-rong<sup>1\*</sup>

(1. School of Resource and Environment Science, Wuhan University, Wuhan 430072, China; 2. Eco-Environment Monitoring Centre of Hubei Province, Wuhan 430074, China)

**Abstract:** Based on the online monitoring data of fine particle (PM<sub>2.5</sub>) mass concentration, carbonaceous components, ionic constituents, and elemental components in an urban site of Wuhan from December 2019 to November 2020, the chemical characteristics of PM<sub>2.5</sub> were analyzed. In addition, seasonal source apportionment of PM<sub>2.5</sub> was conducted using the principal component analysis (PCA) method and random forest (RF) algorithm model. The results indicated that  $\rho(\text{PM}_{2.5})$  was the highest in winter  $[(61.33 \pm 35.32) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$  and the lowest in summer  $[(17.87 \pm 10.06) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$ . Furthermore, organic carbon (OC), with a concentration of  $(7.27 \pm 3.51) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , accounted for the major proportion compared with that of elemental carbon (EC) in the carbonaceous component of PM<sub>2.5</sub>.  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ , and  $\text{NH}_4^+$  had the highest proportion in ionic components, with concentrations of  $(11.55 \pm 3.86)$ ,  $(7.55 \pm 1.53)$ , and  $(7.34 \pm 1.99) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , respectively. K, Fe, and Ca were the main elements in elemental components, with concentrations of  $(752.80 \pm 183.98)$ ,  $(542.34 \pm 142.55)$ , and  $(459.70 \pm 141.99) \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ , respectively. Relying on main factor extraction by PCA and quantitative analysis by RF, five emission sources were ultimately confirmed. The seasonal concentration distribution of these emission sources was as follows: coal burning and secondary sources (46%, 39%, 41%, and 52% for spring, summer, autumn, and winter, respectively) made the highest contribution to PM<sub>2.5</sub>, followed by vehicle emission sources (22%, 28%, 27%, and 21%), industrial emission sources (14%, 18%, 17%, and 13%), dust sources (10%, 8%, 6%, and 6%), and biomass burning sources (8%, 7%, 9%, and 8%). The valuation of the RF model was evaluated using multiple indicators, including RMSE, MSE, and  $R^2$ . The evaluation results showed that the model for winter had the best performance ( $R^2 = 0.974$ , RMSE =  $3.795 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , MAE =  $2.801 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ), the models for spring ( $R^2 = 0.936$ , RMSE =  $3.512 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , MAE =  $2.503 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) and autumn ( $R^2 = 0.937$ , RMSE =  $4.114 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , MAE =  $3.034 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) performed with moderate-fitting goodness, and the summer model showed a relatively weak-fitting performance ( $R^2 = 0.866$ , RMSE =  $5.665 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , MAE =  $3.889 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ). The RF model had a satisfactory performance in PM<sub>2.5</sub> source apportionment and had excellent prospects in analyzing massive historical data of air pollutants.

**Key words:** PM<sub>2.5</sub>; principal component analysis (PCA); random forest (RF); source apportionment; pollution characteristics

细颗粒物 (PM<sub>2.5</sub>) 由于影响空气质量、气候和对人体健康有危害<sup>[1-3]</sup>, 近些年来备受瞩目。对 PM<sub>2.5</sub> 进行来源解析, 其结果可以为相关部门制定环境政策提供参考。PM<sub>2.5</sub> 组分复杂且来源较为广泛, 目前针对 PM<sub>2.5</sub> 的主要源解析方法有排放清单、受体模型<sup>[4]</sup> 和扩散模型<sup>[5]</sup>。因为受体模型无需考虑气象条件、物理和化学过程等影响, 被广泛应用在颗粒物源解析研究中, 其中较为流行的传统方法有正定矩阵因子分析法、化学质量平衡法和主成分分析法等<sup>[6]</sup>。但由于传统受体模型在应对大型数据集

时, 计算速率欠佳效率普遍不高; 另外, 当数据缺失较多时结果表现不理想, 对数据缺失较为敏感。

近些年来, 机器学习方法被广泛用于在大气污染的研究。基于编程语言, 机器学习方法能对大型数据进行专项处理, 并能够针对复杂的非线性数据很好地建模<sup>[7]</sup>, 而传统数理统计模型对此类数据并不擅长。随机森林 (random forest, RF) 算法是基于决策

收稿日期: 2021-08-06; 修订日期: 2021-08-27

基金项目: 国家重点研发计划项目(2019YFB2102902)

作者简介: 张志豪(1996~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为城市大气细颗粒物来源与管控, E-mail: zzhz@foxmail.com

\* 通信作者, E-mail: chenghr@whu.edu.cn

树的集成算法<sup>[8]</sup>,采用 Bootstrap 重采样技术,通过随机森林中各决策树结果进行投票确定最终结果.相较于其他机器学习方法而言,随机森林模型参数设置较少,训练过程便于调参<sup>[9]</sup>,并且能够定量判断各个输入模型的各种特征变量的相关重要程度<sup>[10]</sup>.在许多研究中随机森林模型在颗粒污染物的预测与溯源方面表现较佳<sup>[11-15]</sup>,对于判断影响污染物浓度因素方面有明显优势.

武汉是华中地区典型的中心城市,近些年大气污染较为突出,已有研究针对武汉 PM<sub>2.5</sub>进行溯源分析<sup>[16-18]</sup>,发现其主要源于燃煤火力电厂、汽车排放和生物质燃烧等.武汉市 PM<sub>2.5</sub>的浓度升高主要由本地污染排放与附近区域传输共同影响的结果<sup>[19,20]</sup>,污染成因较为复杂.另外,武汉冬季 PM<sub>2.5</sub>浓度普遍高于其他时期,这也与气象因素有关,冬季边界层较低污染物难以扩散导致<sup>[21]</sup>.

本研究利用武汉市城区大气 2019 年 12 月 ~ 2020 年 11 月的 PM<sub>2.5</sub>主要化学组分质量浓度在线小时监测数据,通过主成分分析对污染物作定性来源分析判断,再建立随机森林模型对污染物定性解析,并计算各个季节的源贡献,最后利用多种评价指标对模型结果进行评估.

## 1 材料与方法

### 1.1 数据资料

本研究使用的是武汉市大气超级监测站(30.6°N, 114.28°E)自动监测采样的小时数据,采样站点邻接交通干道,周边主要为商业与居住综合区.监测数据包括 PM<sub>2.5</sub>浓度及其所含的有机碳(organic carbon, OC)、无机碳(elemental carbon, EC)、水溶性离子组分(Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>)和元素组分(Cu、Pb、Fe、K、Ca、Hg、Cr、Ba、Zn、V)浓度.数据样本时间跨度为 2019 年 12 月 1 日至 2020 年 11 月 31 日,其中单个空缺值使用其前后值的平均值填补,多个连续空缺值作删除处理,最终有效数据记录为 7184 条,并根据月份划分为 4 个季节:冬季(12 ~ 次年 2 月)、春季(3 ~ 5 月)、夏季(6 ~ 8 月)和秋季(9 ~ 11 月).

### 1.2 研究方法与实验设计

主成分分析方法(principal component analysis, PCA)可以对多维度数据进行降维处理,得到较少的主成分因子,且能较好保存信息来源.本文使用 SPSS 对水溶性离子组分和元素组分进行 PCA 分析.将 PCA 得到的几组主成分因子得分作为随机森林模型的输入变量,并对 PM<sub>2.5</sub>浓度作 z-score 标准化处理,PM<sub>2.5</sub>标准化后的浓度值作为随机森林模

型的预测变量, z-score 变换公式如下:

$$z = \frac{x - \mu}{\sigma} \quad (1)$$

式中,  $x$  为原始浓度,  $\mu$  为平均浓度,  $\sigma$  为浓度标准偏差,  $z$  为标准化后的浓度(无量纲).

随机森林是可以用于分类和回归的机器学习模型,是由多棵决策树集成而来.树模型具有二分支特性,基于信息增益算法进行特征选择以此生长,因而随机森林能够提供特征重要性(feature importance)这一独特排序属性,因而可通过此属性来判断每一个模型输入变量(自变量)对拟合结果的影响力<sup>[22]</sup>,在本研究中用以表征各主成分因子对 PM<sub>2.5</sub>浓度的贡献率.随机森林模型利用 Python 环境下的 Scikit-learn 模块进行搭建和调参.

### 1.3 评价标准

为评价结果的合理性以及评估模型的准确性,本文选用指标为平均绝对误差(mean absolute error, MAE)、均方根误差(root mean square error, RMSE)和决定系数(coefficient of determination,  $R^2$ ).具体公式如下:

$$\text{MAE} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |X_{\text{prei}} - X_{\text{obsi}}| \quad (2)$$

$$\text{RMSE} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (X_{\text{prei}} - X_{\text{obsi}})^2} \quad (3)$$

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n (X_{\text{prei}} - X_{\text{obsi}})^2}{\sum_{i=1}^n \left( X_{\text{obsi}} - \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n X_{\text{obsi}} \right)^2} \quad (4)$$

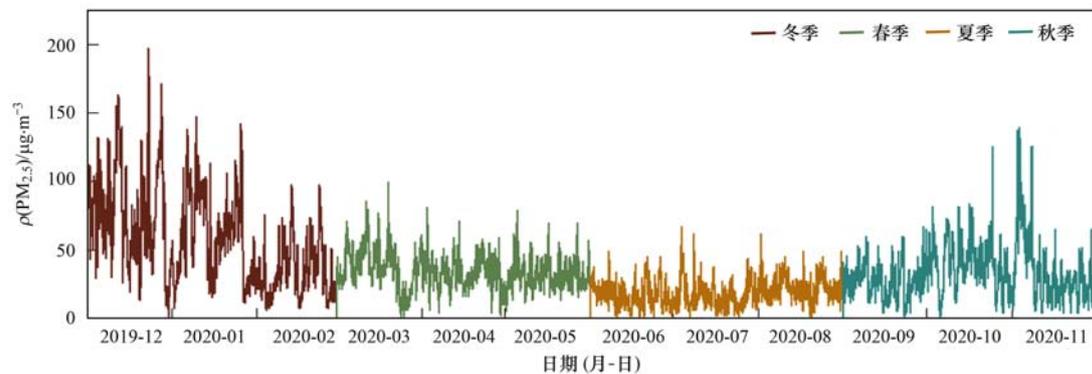
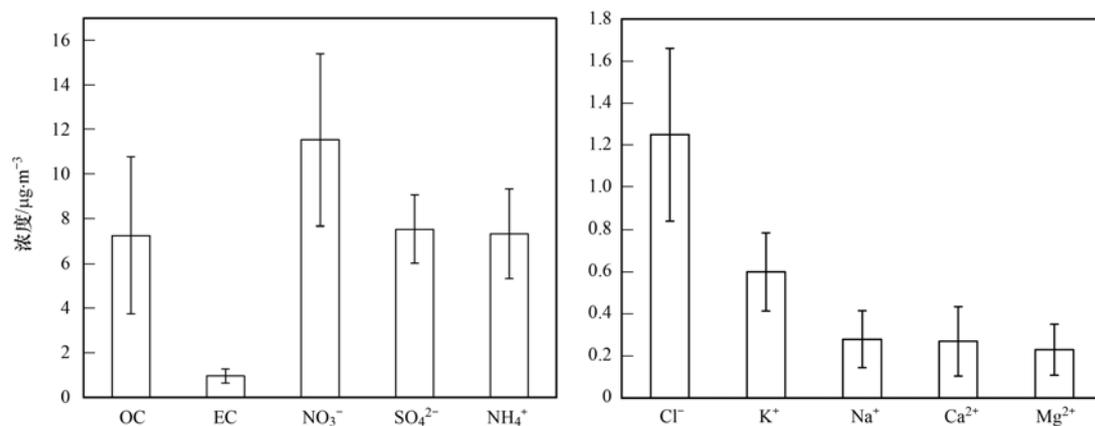
式中,  $X_{\text{prei}}$  为第  $i$  个预测值,  $X_{\text{obsi}}$  为第  $i$  个真实值,  $n$  为数据样本量.

## 2 结果与讨论

### 2.1 PM<sub>2.5</sub>及其化学组分的质量浓度特征

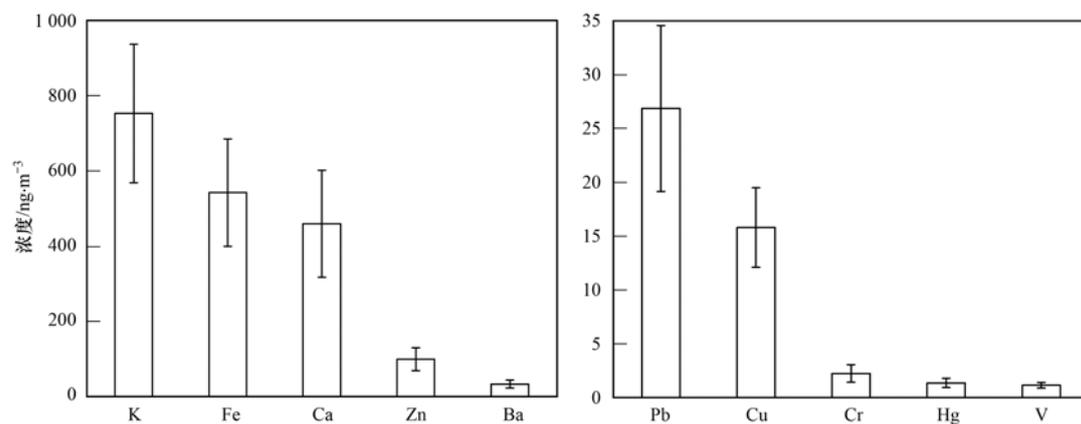
如图 1 所示,武汉市城区大气  $\rho(\text{PM}_{2.5})$  年均值为  $(37.93 \pm 21.28) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,其中冬季平均值为  $(61.33 \pm 35.32) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,  $\rho(\text{PM}_{2.5})$  日最高值也出现在冬季,达到  $190 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ;春季平均值为  $(34.56 \pm 13.93) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ;秋季平均值为  $(35.64 \pm 19.86) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ;夏季平均值为  $(17.87 \pm 10.06) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ .全年呈现出明显的季节趋势,即冬季浓度最高、夏季浓度最低.这种趋势与我国大部分主要城市季节特征变化相一致<sup>[23]</sup>.在 PM<sub>2.5</sub>的化学成分全年平均占比中,碳质组分质量分数约为 21%,离子组分质量分数约为 72%,元素组分质量分数约为 6%.

由图 2 中可以看出,  $\rho(\text{OC})$  为  $(7.27 \pm 3.51) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,  $\rho(\text{EC})$  为  $(0.96 \pm 0.31) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,碳质组

图1 武汉市 2019-12 ~ 2020-11 期间 PM<sub>2.5</sub> 浓度变化趋势Fig. 1 Variation in PM<sub>2.5</sub> mass concentrations during Dec. 2019 to Nov. 2020 in Wuhan图2 PM<sub>2.5</sub> 中碳质组分与离子组分的年度均值Fig. 2 Annual concentrations of carbonaceous and ionic components in PM<sub>2.5</sub>

分中 OC 浓度远远高于 EC. 对比之前其他城市的统计, OC 和 EC 浓度之比特征相似, 但总体上碳质组分浓度属于较低水平<sup>[24]</sup>. 离子组分中, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 这 3 种二次离子占据主要比例, 远高于其它离子, 浓度分别为 (11.55 ± 3.86)、(7.55 ± 1.53) 和 (7.34 ± 1.99) μg·m<sup>-3</sup>. ρ(Cl<sup>-</sup>) 为 (1.25 ± 0.41) μg·m<sup>-3</sup>, 排在 3 种二次离子之后. ρ(K<sup>+</sup>)、ρ(Na<sup>+</sup>)、ρ(Ca<sup>2+</sup>) 和 ρ(Mg<sup>2+</sup>) 都在 1 μg·m<sup>-3</sup> 以下, 分别为 (0.60 ± 0.19)、(0.28 ± 0.14)、(0.27 ±

0.17) 和 (0.23 ± 0.12) μg·m<sup>-3</sup>. 图 3 为 PM<sub>2.5</sub> 中元素组分的年均值. 其中 K、Fe 和 Ca 这 3 种元素占比最高, 是 PM<sub>2.5</sub> 的主要元素, 浓度分别为 (752.80 ± 183.98)、(542.34 ± 142.55) 和 (459.70 ± 141.99) ng·m<sup>-3</sup>. 其次 Zn、Ba、Pb 和 Cu 浓度较高, 分别为 (99.67 ± 30.41)、(33.47 ± 10.72)、(26.86 ± 7.70) 和 (15.80 ± 3.69) ng·m<sup>-3</sup>. Cr、Hg 和 V 占比微量, 浓度分别为 (2.24 ± 0.82)、(1.36 ± 0.43) 和 (1.15 ± 0.27) ng·m<sup>-3</sup>.

图3 PM<sub>2.5</sub> 中元素组分的年度均值Fig. 3 Annual concentrations of elemental components in PM<sub>2.5</sub>

## 2.2 PM<sub>2.5</sub>来源识别

利用主成分分析法对 PM<sub>2.5</sub> 化学成分浓度进行数据处理,使用正交最大旋转最终提取得到特征值

>1 的主成分共有 5 组,累计贡献率达到 80% 以上, KMO( Kaiser-Meyer-Olkin) 检验值为 0.831,满足分析要求.表 1 为得到的主成分旋转因子载荷矩阵.

表 1 主成分旋转后因子载荷矩阵<sup>1)</sup>

Table 1 Rotated principal component factors loading matrix

化学组分	因子 1	因子 2	因子 3	因子 4	因子 5
OC	0.30	0.53	0.12	0.08	0.29
EC	0.31	0.49	0.23	-0.07	0.34
Cl <sup>-</sup>	0.05	<b>0.68</b>	0.36	-0.10	0.21
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.18	<b>0.91</b>	0.03	-0.03	0.09
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.07	<b>0.84</b>	0.02	0.02	0.16
Na <sup>+</sup>	0.08	-0.04	-0.20	<b>0.66</b>	-0.02
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0.12	<b>0.85</b>	0.01	-0.03	0.09
K <sup>+</sup>	0.07	0.49	-0.19	0.03	<b>0.83</b>
Mg <sup>2+</sup>	0.26	-0.14	0.33	<b>0.71</b>	0.08
Ca <sup>2+</sup>	0.34	-0.26	0.34	<b>0.65</b>	0.17
K	0.25	0.42	0.01	0.08	<b>0.81</b>
Ca	0.53	-0.02	0.40	<b>0.72</b>	0.16
V	0.51	0.07	-0.04	-0.10	0.06
Cr	<b>0.63</b>	0.08	-0.12	0.06	0.11
Fe	<b>0.84</b>	0.13	0.28	0.17	0.13
Cu	<b>0.71</b>	0.15	<b>0.61</b>	-0.15	0.38
Zn	<b>0.62</b>	0.22	<b>0.75</b>	0.01	0.01
Ba	0.55	0.05	0.35	0.04	0.38
Hg	0.49	0.28	-0.19	-0.01	0.08
Pb	0.28	0.29	<b>0.71</b>	-0.13	0.18
特征值	7.80	3.45	1.66	1.19	1.06
方差贡献率/%	37.46	18.68	10.68	7.51	6.80
累计贡献率/%	37.46	56.14	66.82	74.33	81.13

1) 黑体字表示载荷 >0.6 的组分因子

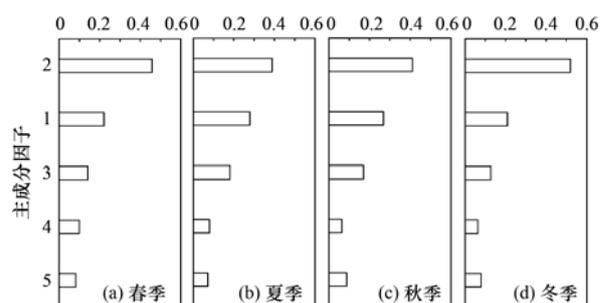
因子 1 中载荷较高的组分有 Cu、Fe、Zn、Cr 和 Ba 等组分,这些金属元素多来自于车辆的磨损和腐蚀以及尾气排放<sup>[25]</sup>,另外该因子分配有较高的 OC 与 EC 载荷,因此将因子 1 定为机动车排放源. OC、EC、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 的载荷在因子 2 中比重较高,其中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 为典型的二次生成气溶胶离子<sup>[26,27]</sup>,而 EC 源于燃料的不充分燃烧,OC 源于一次排放和二次生成<sup>[28]</sup>,另外 Cl<sup>-</sup> 为燃煤排放标志物,所以将因子 2 归为燃煤与二次污染源. 因子 3 中占比较高的组分有 Cu、Zn 和 Pb,其中 Cu 在工业上应用比较广泛<sup>[29]</sup>,痕量元素 Pb 来源于工业燃煤排放<sup>[30]</sup>,Zn 多存在于工业废气,将因子 3 定为工业排放源. Na<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup> 和 Ca<sup>2+</sup> 这 3 种离子在因子 4 中贡献较大,它们是建筑扬尘的主要离子成分<sup>[31]</sup>,另外 Ca 是典型地壳元素<sup>[32]</sup>,为扬尘源的示踪物,所以因子 4 代表道路或建筑扬尘源. 因子 5 中贡献较高的 K<sup>+</sup> 是生物质燃烧的标志物<sup>[33]</sup>,另外 K 也是燃烧源的标志元素<sup>[34]</sup>,因此将因子 5 定为生物质燃烧源.

## 2.3 污染源对 PM<sub>2.5</sub> 的贡献率

基于 PCA 分析得到 5 种污染源,为进一步精确

每种污染源所占的比重,建立随机森林回归(RF)模型,其中 RF 模型输入特征变量(自变量)为 PM<sub>2.5</sub> 组分浓度经过 PCA 分析所得标准化后的因子得分,另外将 PM<sub>2.5</sub> 浓度作 z-score 标准化处理,作为预测变量(因变量).

分别对 4 个季节各自建立单独模型,提取模型“特征重要性”参数,用于分析各输入特征(即各污染源)所占比重.由图 4 所示,因子 2 在 4 个季节 RF 模型特征占比均排在首位,其次是因子 1 与因子 3,另外两个因子重要程度相差不大.将每种因子重要



横坐标为主成分因子在 RF 模型中特征重要性的相对值

图 4 RF 模型特征重要性参数

Fig. 4 Feature importance parameters of RF model

性参数与总和作比,得到各个污染源的贡献率如图 5.

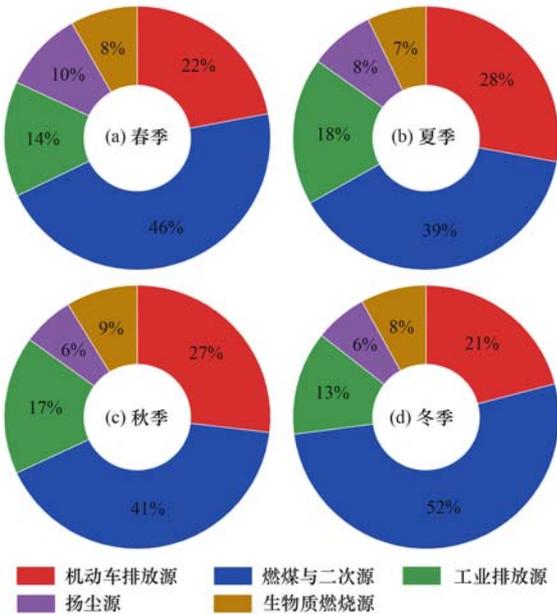
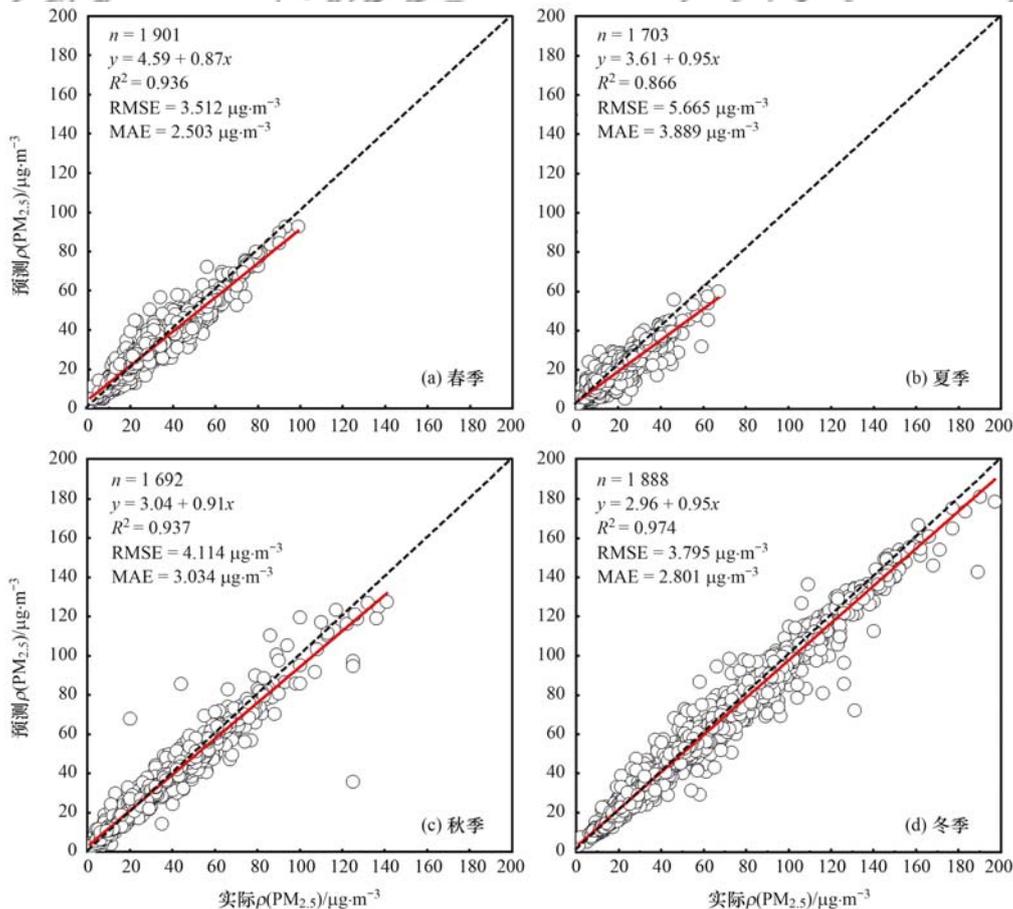


图 5 各污染源贡献率

Fig. 5 Contribution rate of various pollution sources

结果表明,燃煤与二次源在 4 个季节中贡献率

均为最大,其中冬季的贡献率最高达到 52%,接着依次为春季(46%)、秋季(41%)和夏季(39%)。作为主要的污染组分,SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>这 3 种离子浓度占 PM<sub>2.5</sub>组分比例最高,与程渊等<sup>[35]</sup>的研究结果一致。其中在冬季,大气层结构稳定,二次离子的前体物能够在大气中滞留较长时间<sup>[36]</sup>,这对于二次转化提供了便利。另外,武汉冬、春季节以北风与西北风为主<sup>[35]</sup>,又因北方冬季集中供暖,燃煤燃烧等排放的污染气团传输至武汉,部分二次离子的前体物在传输过程中被二次氧化<sup>[37]</sup>。夏秋季节气温较高,不利于二次离子形成颗粒态<sup>[38]</sup>,因而二次离子在 PM<sub>2.5</sub>中浓度有所降低。机动车排放源贡献大小为:夏季(28%)>秋季(27%)>春季(22%)>冬季(21%),与已有的武汉市 PM<sub>2.5</sub>来源解析的结果一致<sup>[39,40]</sup>。另外,工业排放源贡献大小为:夏季(18%)>秋季(17%)>春季(14%)>冬季(13%)。以上结果表明,机动车排放源和工业排放源对 PM<sub>2.5</sub>的贡献在冬季和春季所占比例小于夏秋两季,这可能是由于 2020 年受到新冠疫情影响,武汉市于 1 月 23 日实施了长达 76 d 的封城措施。由于封锁期间交通出行受限与工厂停工,机动车排放和工厂排放显现出



n 表示样本数量

图 6 PM<sub>2.5</sub>实际浓度与预测浓度散点拟合

Fig. 6 Scatter-fitting plot for actual monitoring value and predicted values of PM<sub>2.5</sub> mass concentration

骤减态势. 近些年武汉市为了减轻机动车排放污染, 已大力推动新能源汽车更新, 落实更严苛的机动车排放标准, 王瑜婷<sup>[41]</sup>的研究通过对比近几年 PM<sub>2.5</sub> 源解析结果发现, 机动车排放的贡献率呈现下降趋势. 扬尘源(6%~10%)和生物质燃烧源(7%~8%)这2种污染源在4个季节当中贡献率稳定, 受季节影响比较小. 生物质燃烧多来源于武汉周边农田秸秆燃烧<sup>[41]</sup>; 扬尘源则多来源于武汉市较为密集的交通基础设施建设及房屋建设施工<sup>[35]</sup>.

## 2.4 结果评价

为了验证 RF 模型的准确性和特征重要性参数的合理性, 将 RF 得到的 PM<sub>2.5</sub> 预测浓度与其实际浓度做回归分析, 得到  $R^2$ 、RMSE 和 MAE 回归评价指标, 如图 6 所示. 春、夏、秋、冬这 4 个季节对应的 RF 模型的  $R^2$  分别为 0.936、0.866、0.937 和 0.974. 从整体来看, 4 个季节得到的结果均在 0.85 以上表现较好. 作为机器学习算法中的决策树集成模型, RF 模型在对 PM<sub>2.5</sub> 来源解析方面效果令人满意. 机器学习训练需要大量数据做支撑, 增加训练模型所用的观测数据会提升模型效果, 因此对分析海量的空气污染物的历史观测值有很好使用前景. 另外, 对比 4 个季节发现, 其中冬季模型对 PM<sub>2.5</sub> 拟合效果最好, 拥有最高的  $R^2$  及最低的 RMSE ( $3.795 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) 和 MAE ( $2.801 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ), 而夏季拟合效果最差, 在四季当中  $R^2$  最低且 RMSE ( $5.665 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) 和 MAE ( $3.889 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) 也最高. 另外, 春季 (RMSE =  $3.512 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , MAE =  $2.503 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) 和秋季 (RMSE =  $4.114 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , MAE =  $3.034 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) 的模型拟合效果相近且都介于冬季和夏季之间. 另外, 从图 6 中可以看出, 冬季 PM<sub>2.5</sub> 浓度普遍偏高, 且最小值和最大值之间跨度较大, RF 模型构建过程中能够对各浓度范围进行全面学习和拟合, 因而表现效果较好; 相反, 夏季 PM<sub>2.5</sub> 浓度普遍偏低且跨度范围较窄, 相较于冬季而言, 在模型训练过程中无法学习到较为详细的有效信息, 构建春季 RF 模型过程中学习能力有所削弱, 因而表现效果较弱.

## 3 结论

(1) 武汉市城区  $\rho(\text{PM}_{2.5})$  年均值为 ( $37.93 \pm 21.28$ )  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 其中冬季最高 [ $(61.33 \pm 35.32)$   $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ], 春季 [ $(34.56 \pm 13.93)$   $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ] 和秋季 [ $(35.64 \pm 19.86)$   $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ] 次之, 夏季最低 [ $(17.87 \pm 10.06)$   $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ].

(2) PM<sub>2.5</sub> 中碳质组分质量分数约为 21%, 以 OC [ $(7.27 \pm 3.51)$   $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ] 为主; 离子组分质量分数

约为 72%, 其中以  $\text{NO}_3^-$  [ $(11.55 \pm 3.86)$   $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ]、 $\text{SO}_4^{2-}$  [ $(7.55 \pm 1.53)$   $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ] 和  $\text{NH}_4^+$  [ $(7.34 \pm 1.99)$   $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ] 这 3 种二次离子为主; 元素组分质量分数约为 6%, 其中 K [ $(752.80 \pm 183.98)$   $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ ]、Fe [ $(542.34 \pm 142.55)$   $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ ] 和 Ca [ $(459.70 \pm 141.99)$   $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ ] 最高.

(3) 通过 PCA 方法和 RF 模型对 PM<sub>2.5</sub> 进行源解析, 并计算污染源贡献率. 燃煤与二次源贡献率最高, 其在冬季 (52%) 和春季 (46%) 较高, 而夏季 (39%) 和秋季 (41%) 较低; 其次为机动车排放源和工业排放源, 它们的季节变化相似, 在夏 (28% 和 18%)、秋 (27% 和 17%) 两季较高, 而春 (22% 和 14%)、冬 (21% 和 13%) 两季较低; 另外扬尘源 (6%~10%) 和生物质燃烧源 (7%~9%) 占比较少并且季节变化不大.

(4) 利用 3 种指标对 4 个季节的 RF 模型进行评估, 冬季表现最好 ( $R^2 = 0.974$ , RMSE =  $3.795 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , MAE =  $2.801 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ), 春季 ( $R^2 = 0.936$ , RMSE =  $3.512 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , MAE =  $2.503 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) 和秋季 ( $R^2 = 0.937$ , RMSE =  $4.114 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , MAE =  $3.034 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) 表现中等, 而夏季结果表现相对较弱 ( $R^2 = 0.866$ , RMSE =  $5.665 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , MAE =  $3.889 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

## 参考文献:

- [1] Giorgini P, Rubenfire M, Das R, et al. Particulate matter air pollution and ambient temperature: opposing effects on blood pressure in high-risk cardiac patients [J]. *Journal of Hypertension*, 2015, **33**(10): 2032-2038.
- [2] 李勇, 廖琴, 赵秀阁, 等. PM<sub>2.5</sub> 污染对我国健康负担和经济损失的影响[J]. *环境科学*, 2021, **42**(4): 1688-1695.  
Li Y, Liao Q, Zhao X G, et al. Influence of PM<sub>2.5</sub> pollution on health burden and economic loss in China [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(4): 1688-1695.
- [3] Luo G W, Zhang L Y, Hu X S, et al. Quantifying public health benefits of PM<sub>2.5</sub> reduction and spatial distribution analysis in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **719**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.137445.
- [4] 郑玫, 张延君, 闫才青, 等. 中国 PM<sub>2.5</sub> 来源解析方法综述 [J]. *北京大学学报(自然科学版)*, 2014, **50**(6): 1141-1154.  
Zheng M, Zhang Y J, Yan C Q, et al. Review of PM<sub>2.5</sub> source apportionment methods in China [J]. *Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Pekinensis*, 2014, **50**(6): 1141-1154.
- [5] 周成, 李少洛, 孙友敏, 等. 基于 CMAQ 空气质量模型研究机动车对济南市空气质量的影响 [J]. *环境科学研究*, 2019, **32**(12): 2031-2039.  
Zhou C, Li S L, Sun Y M, et al. Influence of motor vehicles on air quality in urban areas based on the CMAQ model [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2019, **32**(12): 2031-2039.
- [6] 周敏. 上海大气 PM<sub>2.5</sub> 来源解析对比: 基于在线数据运用 3 种受体模型 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(5): 1997-2005.  
Zhou M. Comparison of three receptor models for source

- apportionment of PM<sub>2.5</sub> in Shanghai: using hourly resolved PM<sub>2.5</sub> chemical composition data [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(5): 1997-2005.
- [ 7 ] Hutengs C, Vohland M. Downscaling land surface temperatures at regional scales with random forest regression [J]. *Remote Sensing of Environment*, 2016, **178**: 127-141.
- [ 8 ] Breiman L. Random forests [J]. *Machine Learning*, 2001, **45**(1): 5-32.
- [ 9 ] Zhu Q Y, Xia B, Zhao Y Y, *et al.* Predicting gestational personal exposure to PM<sub>2.5</sub> from satellite-driven ambient concentrations in Shanghai [J]. *Chemosphere*, 2019, **233**: 452-461.
- [ 10 ] Stojić A, Stojić S S, Reljin I, *et al.* Comprehensive analysis of PM<sub>10</sub> in Belgrade urban area on the basis of long-term measurements [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(11): 10722-10732.
- [ 11 ] Chen J, De Hoogh K, Gulliver J, *et al.* Development of Europe-wide models for particle elemental composition using supervised linear regression and random forest [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, **54**(24): 15698-15709.
- [ 12 ] Feng R, Zheng H J, Gao H, *et al.* Recurrent neural network and random forest for analysis and accurate forecast of atmospheric pollutants: a case study in Hangzhou, China [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2019, **231**: 1005-1015.
- [ 13 ] Zheng H, Kong S F, Chen N, *et al.* Significant changes in the chemical compositions and sources of PM<sub>2.5</sub> in Wuhan since the city lockdown as COVID-19 [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **739**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140000.
- [ 14 ] Viana M, Querol X, Götschi T, *et al.* Source apportionment of ambient PM<sub>2.5</sub> at five Spanish centres of the European community respiratory health survey (ECRHS II) [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(7): 1395-1406.
- [ 15 ] 陈亦辉. 基于机器学习的上海市大气污染源解析研究 [D]. 上海: 华东师范大学, 2018.
- [ 16 ] Liu D R, Deng Q L, Ren Z G, *et al.* Variation trends and principal component analysis of nitrogen oxide emissions from motor vehicles in Wuhan City from 2012 to 2017 [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **704**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.134987.
- [ 17 ] Liao W J, Zhou J B, Zhu S J, *et al.* Characterization of aerosol chemical composition and the reconstruction of light extinction coefficients during winter in Wuhan, China [J]. *Chemosphere*, 2020, **241**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.125033.
- [ 18 ] Zhang F, Wang Z W, Cheng H R, *et al.* Seasonal variations and chemical characteristics of PM<sub>2.5</sub> in Wuhan, central China [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **518-519**: 97-105.
- [ 19 ] 张会涛, 田瑛泽, 刘保双, 等. 武汉市 PM<sub>2.5</sub> 化学组分时空分布及聚类分析 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(11): 4764-4773. Zhang H T, Tian Y Z, Liu B S, *et al.* Spatial temporal characteristics and cluster analysis of chemical components for ambient PM<sub>2.5</sub> in Wuhan [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(11): 4764-4773.
- [ 20 ] 张帆. 武汉大气 PM<sub>2.5</sub> 的化学特性及其在典型灰霾过程中的污染特征 [D]. 武汉: 武汉大学, 2014.
- [ 21 ] 袁畅, 周家斌, 熊鹰, 等. 武汉城区大气 PM<sub>2.5</sub> 的化学组成特征与区域传输 [J]. *环境科学与技术*, 2018, **41**(8): 79-86. Yuan C, Zhou J B, Xiong Y, *et al.* Chemical compositions and long-range transport of PM<sub>2.5</sub> in downtown area of Wuhan [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **41**(8): 79-86.
- [ 22 ] Huang L, Zhu Y H, Zhai H E, *et al.* Recommendations on benchmarks for numerical air quality model applications in China-Part 1: PM<sub>2.5</sub> and chemical species [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2021, **21**(4): 2725-2743.
- [ 23 ] Wang P, Cao J J, Shen Z X, *et al.* Spatial and seasonal variations of PM<sub>2.5</sub> mass and species during 2010 in Xi'an, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **508**: 477-487.
- [ 24 ] 王成, 曹靖原, 段小琳, 等. 山西省四城市冬季 PM<sub>2.5</sub> 中碳质组分特征及来源分析 [J]. *环境工程*, 2021, **39**(6): 114-121. Wang C, Cao J Y, Duan X L, *et al.* Characteristics and sources analysis of carbonaceous components in PM<sub>2.5</sub> in winter in four cities of Shanxi province [J]. *Environmental Engineering*, 2021, **39**(6): 114-121.
- [ 25 ] Castanheiro A, Wuyts K, Hofman J, *et al.* Morphological and elemental characterization of leaf-deposited particulate matter from different source types: a microscopic investigation [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2021, **28**(20): 25716-25732.
- [ 26 ] Buekers J, Deutsch F, Veldeman N, *et al.* Fine atmospheric particles from agricultural practices in Flanders: from emissions to health effects and limit values [J]. *Outlook on Agriculture*, 2014, **43**(1): 39-44.
- [ 27 ] Vercauteren J, Matheeußen C, Wauters E, *et al.* Chemkar PM<sub>10</sub>: an extensive look at the local differences in chemical composition of PM<sub>10</sub> in Flanders, Belgium [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(1): 108-116.
- [ 28 ] Pachauri T, Singla V, Satsangi A, *et al.* Characterization of carbonaceous aerosols with special reference to episodic events at Agra, India [J]. *Atmospheric Research*, 2013, **128**: 98-110.
- [ 29 ] 邹丛阳, 蒋妮娜, 李兆堃. 基于 PCA 模型的苏州市古城区 PM<sub>2.5</sub> 来源解析 [J]. *山东农业大学学报(自然科学版)*, 2019, **50**(1): 70-74. Zou C Y, Jiang N S, Li Z K. PM<sub>2.5</sub> source apportionment of historic district using principal component analysis in Suzhou City [J]. *Journal of Shandong Agricultural University (Natural Science Edition)*, 2019, **50**(1): 70-74.
- [ 30 ] 陈展乐, 田倩, 毛瑶, 等. 华中地区黄冈市一次重度污染期间 PM<sub>2.5</sub> 中 12 种微量元素特征及来源解析 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(8): 3475-3483. Chen Z L, Tian Q, Mao Y, *et al.* Characteristics and sources of 12 trace amount elements in PM<sub>2.5</sub> during a period of heavy pollution in Huanggang, central China [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(8): 3475-3483.
- [ 31 ] Gao X M, Yang L X, Cheng S H, *et al.* Semi-continuous measurement of water-soluble ions in PM<sub>2.5</sub> in Jinan, China: Temporal variations and source apportionments [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(33): 6048-6056.
- [ 32 ] Tsiouridou R, Samara C. First results of acidic and alkaline constituents determination in air particulates of Thessaloniki, Greece [J]. *Atmospheric Environment. Part B. Urban Atmosphere*, 1993, **27**(3): 313-319.
- [ 33 ] Zhou S Z, Davy P K, Huang M J, *et al.* High-resolution sampling and analysis of ambient particulate matter in the Pearl River Delta region of southern China: source apportionment and health risk implications [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(3): 2049-2064.
- [ 34 ] 刘桓嘉, 贾梦珂, 刘永丽, 等. 新乡市大气 PM<sub>2.5</sub> 携带金属元素季节分布、来源特征与健康风险 [J]. *环境科学*, 2021, **42**(9): 4140-4150. Liu H J, Jia M K, Liu Y L, *et al.* Seasonal variation, source identification, and health risk of PM<sub>2.5</sub>-bound metals in Xinxiang

- [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(9): 4140-4150.
- [35] 程渊, 吴建会, 毕晓辉, 等. 武汉市大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子污染特征及来源[J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(1): 189-196.
- Cheng Y, Wu J H, Bi X H, *et al.* Characteristics and source apportionment of water-soluble ions in ambient PM<sub>2.5</sub> in Wuhan, China[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(1): 189-196.
- [36] 曹军骥. PM<sub>2.5</sub> 与环境[M]. 北京: 科学出版社, 2014.
- [37] 王念飞, 陈阳, 郝庆菊, 等. 苏州市 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子的季节变化及来源分析[J]. *环境科学*, 2016, **37**(12): 4482-4489.
- Wang N F, Chen Y, Hao Q J, *et al.* Seasonal variation and source analysis of the water-soluble inorganic ions in fine particulate matter in Suzhou[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(12): 4482-4489.
- [38] Ho K F, Lee S C, Chan C K, *et al.* Characterization of chemical species in PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> aerosols in Hong Kong [J]. *Atmospheric Environment*, 2003, **37**(1): 31-39.
- [39] 刘立. 东莞/武汉城市大气颗粒物的理化特性与来源解析[D]. 武汉: 华中科技大学, 2016.
- [40] 黄凡, 陈楠, 周家斌, 等. 2016—2017 年武汉市城区大气 PM<sub>2.5</sub> 污染特征及来源解析[J]. *中国环境监测*, 2019, **35**(1): 17-25.
- Huang F, Chen N, Zhou J B, *et al.* Characteristics and source apportionment of PM<sub>2.5</sub> in urban areas of Wuhan during 2016-2017[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2019, **35**(1): 17-25.
- [41] 王瑜婷. 武汉市大气细颗粒物化学组成及源解析研究[D]. 武汉: 湖北工业大学, 2020.



## CONTENTS

Analysis of Change and Driving Factors of PM <sub>2.5</sub> Mass Concentration in Tianjin from 2000 to 2020 .....	CAI Zi-ying, HAO Jian, HAN Su-qin, <i>et al.</i> (1129)
Characteristics and Sources of PM <sub>2.5</sub> -O <sub>3</sub> Compound Pollution in Tianjin .....	XIAO Zhi-mei, XU Hong, GAO Jing-yun, <i>et al.</i> (1140)
Source Analysis of Ambient PM <sub>2.5</sub> in Wuhan City Based on Random Forest Model .....	ZHANG Zhi-hao, CHEN Nan, ZHU Bo, <i>et al.</i> (1151)
Chemical Characteristics and Sources of Atmospheric Aerosols in the Surrounding District of a Heavily Polluted City in the Southern Part of North China .....	REN Xiu-long, HU Wei, WU Chun-miao, <i>et al.</i> (1159)
Characteristics of Water-soluble Ions in an Autumn Haze Process in the Southern Sichuan Urban Agglomeration After the Implementation of China's Air Pollution Prevention and Control Action Plan .....	WU An-nan, HUANG Xiao-juan, HE Ren-jiang, <i>et al.</i> (1170)
Concentration, Source, and Health Risk Assessment of PM <sub>1</sub> Heavy Metals in Typical Pollution Processes in Zhengzhou .....	ZHAI Shi-ting, WANG Shen-bo, ZHANG Dong, <i>et al.</i> (1180)
Geographical Detection of Spatial Heterogeneity and Drivers of PM <sub>2.5</sub> in the Yangtze River Economic Belt .....	WANG Li-li, LIU Xiao-jie, LI Ding, <i>et al.</i> (1190)
Spatial Heterogeneity of PM <sub>2.5</sub> Concentration in Response to Land Use/Cover Conversion in the Yangtze River Delta Region .....	ZHOU Li-xia, WU Tao, JIANG Guo-jun, <i>et al.</i> (1201)
Analysis of Pollution Characteristics, Meteorological Impact, and Forecast Retrospective During the Spring Festival and the Lantern Festival in "2 + 26" Cities .....	ZHU Yuan-yuan, WANG Xiao-fei, WANG Wei, <i>et al.</i> (1212)
Pollution Characteristics and Influencing Factors of PM <sub>2.5</sub> in Shanxi Province Based on Wavelet Transform .....	ZHANG Ke-ke, HU Dong-mei, YAN Yu-long, <i>et al.</i> (1226)
Estimation of Surface Ozone Concentration and Health Impact Assessment in China .....	ZHAO Nan, LU Yi-min (1235)
Analysis of Ozone Pollution Spatio-temporal Evolution Characteristics and Identification of Its Long-term Variation Driving Factor over Hunan Province .....	LIU Yan-yan, YANG Lei-feng, XIE Dan-ping, <i>et al.</i> (1246)
Temporal and Spatial Variation in O <sub>3</sub> Concentration Near the Surface of Shandong Peninsula and Analysis of Potential Source Areas .....	LI Le, LIU Min-xia, XIAO Shi-ni, <i>et al.</i> (1256)
Characteristics, Ozone Formation Potential, and Source Apportionment of VOCs During the COVID-19 Epidemic in Xiong'an .....	LIU Xin-jun, WANG Shu-juan, LIU Cheng, <i>et al.</i> (1268)
Characteristics and Source Analysis of VOCs Pollution During the Period of Ozone Exceeding the Standard in Zibo City .....	WANG Shuai, WANG Xiu-yan, YANG Wen, <i>et al.</i> (1277)
Comparison of VOCs Pollution Characteristics Between an Urban Site and a Background Site in Summer in Zibo .....	QIN Tao, XU Bo, WANG Xin-wu, <i>et al.</i> (1286)
Emission Characteristics and Inventory of Volatile Organic Compounds from Cooking in Sichuan Province .....	QIAN Jun, HAN Li, CHEN Jun-hui, <i>et al.</i> (1296)
Emission Characteristics of Gas-and Particle-Phase Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from Cooking .....	LI Yuan-ju, WU Ai-hua, TONG Meng-xue, <i>et al.</i> (1307)
Diversity and Community Structure of Airborne Fungi in Different Working Areas of Composting Plants .....	YU Ao-yuan, XING Li-jun, SUN Xing-bin, <i>et al.</i> (1315)
Main Problems and Refined Solutions of Urban Fugitive Dust Pollution in China .....	LI Ting-kun, FENG Yin-chang, BI Xiao-hui, <i>et al.</i> (1323)
Water Quality Assessment and Spatial-temporal Variation Analysis in Yellow River Basin .....	LIU Yan-long, ZHENG Yi-an (1332)
Spatial Distribution and Influential Factors of Nutrients in Rivers of a Typical Mountainous City: A Case Study of the Qingshuixi River in Chongqing .....	WANG Chao, YE Qiu, JIA Bo-yang, <i>et al.</i> (1346)
River-Lake States in the Tributary of the Three Gorges Reservoir Area and Their Effects on the Phosphorus Content of Different Forms in the Sediment .....	HUANG Wei, ZHANG Xing, LUO Xiao-jiao, <i>et al.</i> (1356)
Molecular Signatures of Dissolved Organic Matter in the Paihe River and Its Tributaries .....	ZHAN Ya, YIN Hao, FENG Jing-wei, <i>et al.</i> (1365)
Multiphase Spatial Distribution Characteristics of Cd Morphology in Typical Intertidal Zones in the Guanglong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area and Its Influencing Factors .....	CUI Xin-yue, MO Wu-qiu, LIAO Jian-bo (1375)
Occurrence Characteristics and Risk Assessment of Antibiotics in the Surface Water of Luoma Lake and Its Main Inflow Rivers .....	GONG Run-qiang, ZHAO Hua-jin, GAO Zhan-qi, <i>et al.</i> (1384)
Contamination Characteristics and Ecological Risk Assessment of Antibiotics in the Third Drain of Ningxia .....	LI Fu-juan, GAO Li, LI Ling-yun, <i>et al.</i> (1394)
Historical Changes and Responses to Human Activities of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Lake Sediments from Northern China During the Past 100 Years .....	GONG Xiong-hu, ZHAO Zhong-hua, DING Qi-qi, <i>et al.</i> (1404)
Characteristics of Bacterioplankton Community Between River and Lake/Reservoir in the Yangtze River Basin .....	HU Yu-xin, ZHANG Jing, HUANG Jie, <i>et al.</i> (1414)
Characteristics of Bacterial Community Structure in Wuliangs Lake During an Irrigation Interval in Hetao Plain .....	SHI Yu-jiao, LI Wen-bao, ZHANG Bo-yao, <i>et al.</i> (1424)
Effects of Landscape Structures on Bacterioplankton Communities at Multi-spatial Scales in the Yuanhe River .....	SHU Wang, WANG Peng, DING Ming-jun, <i>et al.</i> (1434)
Microbial Community Structure on Microplastic Surface in the <i>Grus leucogeranus</i> Reserve of Poyang Lake .....	LIU Shu-li, JIAN Min-fei, ZOU Long, <i>et al.</i> (1447)
Influence of Microplastics on the Development of <i>Proteus</i> Biofilm .....	TAO Hui, QI Yi-ting, YU Duo, <i>et al.</i> (1455)
Deposition Law of Low-Density Microplastics Aggregation in Wuliangs Lake .....	LIU Yu, SHI Xiao-hong, ZHANG Sheng, <i>et al.</i> (1463)
Adsorption of Fulvic Acid on Virgin and Aging Microplastics .....	SONG Ya-li, YU Ya, ZHENG Lei, <i>et al.</i> (1472)
Diffusive Fluxes and Controls of N <sub>2</sub> O from Coastal Rivers in Tianjin City .....	TANG Meng-yao, HU Xiao-kang, WANG Hong-wei, <i>et al.</i> (1481)
Effects of Hematite and Biochar Addition on Wastewater Treatment Efficiency, Greenhouse Gas Emission, and Microbial Community in Subsurface Flow Constructed Wetland .....	CHEN Xin-tong, HAO Qing-ju, XIONG Yan-fang, <i>et al.</i> (1492)
Identification and Optimization Method of Rainfall-Runoff Pollution Risk Level .....	QI Xiao-tian, ZHANG Zhi-ming, ZHAO Xin, <i>et al.</i> (1500)
Factor Analysis of Disinfection Byproduct Formation in Drinking Water Distribution Systems Through the Bayesian Network .....	JIANG Shan-shan, WANG Zhen-yu, GAO Quan, <i>et al.</i> (1512)
Selective Adsorption of Au(III) by Activated Carbon Supported Polythioamides and Adsorption Mechanism .....	ZHAO Wen-jin, ZHANG Shen, AN Xiao-qiang, <i>et al.</i> (1521)
Impacts of F/M Ratio on Microbial Networks in Activated Sludge .....	ZHANG Bing, SUN Chen-xiang, WEN Xiang-hua (1529)
Geochemical Characteristics and Source Apportionment of Soil Elements in an Urban-rural Integration Area: A Case Study in the Qinglong Area of Tianfu New District .....	LIU Shu-huai, WANG De-wei, SHI Ze-ming, <i>et al.</i> (1535)
Ecological and Health Risk Assessments Based on the Total Amount and Speciation of Heavy Metals in Soils Around Mining Areas .....	WANG Rui, CHEN Nan, ZHANG Er-xi (1546)
Characteristics of Antimony Migration and Transformation and Pollution Evaluation in a Soil-Crop System Around a Tin Mine in Hunan Province .....	ZHANG Long, SONG Bo, HUANG Feng-yan, <i>et al.</i> (1558)
Effect of Controlling Heavy Metals in Soil of Rare Earth Mining Area by Biochar Supported Graphene Oxide .....	YANG Shi, LIU Zu-wen, LONG Bei, <i>et al.</i> (1567)
Enhanced Remediation of Cd Contaminated Soil by Cotton with DOM .....	MIN Tao, LUO Tong, CHEN Li-li, <i>et al.</i> (1577)
Novel Insight into the Adsorption Mechanism of Fe-Mn Oxide-Microbe Combined Biochar for Cd(II) and As(III) .....	LIAN Bin, WU Ji-zi, ZHAO Ke-li, <i>et al.</i> (1584)
Variations in Cadmium Accumulation and Transport and Ionic Traits Among Different Winter Wheat Varieties .....	LIU Chang, XU Ying-ming, HUANG Qing-qing, <i>et al.</i> (1596)
Cadmium Accumulation Characteristics of Different Heat Varieties Under Cadmium Stress .....	REN Chao, REN Yu-zhong, WANG Hao, <i>et al.</i> (1606)
Effect of Different Land Use Types on the Diversity of Soil Bacterial Community in the Coastal Zone of Jialing River .....	LIU Kun-he, XUE Yu-qin, ZHU Lan-ping, <i>et al.</i> (1620)
Effects of Earthworms/Biochar on Bacterial Diversity and Community in As-contaminated Red Soil .....	SU Qian-qian, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, <i>et al.</i> (1630)
Effects of DA-6 and EDDS on Growth and Cd Uptake by <i>Solanum nigrum</i> L. and on the Soil Bacterial Community Structure .....	LUO Yang, SUN Li, LIU Fang, <i>et al.</i> (1641)
Effects of Plastic Mulch Film on Soil Nutrients and Ecological Enzyme Stoichiometry in Farmland .....	HU Zhi-e, XIAO Mou-liang, WANG Shuang, <i>et al.</i> (1649)
Effects of Warming and Increased Precipitation on Soil Respiration of Abandoned Grassland in the Loess-Hilly Regions .....	WANG Xing, ZHONG Ze-kun, ZHU Yu-fan, <i>et al.</i> (1657)
Effect of Film Mulching, Straw Retention, and Nitrogen Fertilization on the N <sub>2</sub> O and N <sub>2</sub> Emission in a Winter Wheat Field .....	PENG Yi, LI Hui-tong, ZHANG Shao-wei, <i>et al.</i> (1668)
Effects of Straw Returning on Soil Ammonia Volatilization Under Different Production Conditions Based on Meta-analysis .....	ZHAO Zheng-xin, WANG Xiao-yun, TIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1678)
Impacts of Fertilization on Soil Antibiotic Resistance Genes Across Croplands: A Meta-Analysis .....	RAN Ji-wei, XIAO Qiong, HUANG Min, <i>et al.</i> (1688)