

## 北京城区PM<sub>2.5</sub>各组分污染特征及来源分析

安欣欣, 曹阳, 王琴, 富佳明, 王陈婧, 景宽, 刘保献

### PM<sub>2.5</sub> 化学组成

SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> NH<sub>4</sub><sup>+</sup> NO<sub>3</sub><sup>-</sup>  
元素碳 Cl<sup>-</sup> 有机物 地壳元素

### 源解析

二次  
颗粒物  
机动车  
扬尘  
工业  
燃煤  
生物质  
燃烧



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年5月

第43卷 第5期  
Vol.43 No.5

目次

|                                                                                                                          |                                                              |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------|
| 北京城区 PM <sub>2.5</sub> 各组分污染特征及来源分析 .....                                                                                | 安欣欣, 曹阳, 王琴, 富佳明, 王陈婧, 景宽, 刘保献 (2251)                        |
| 基于时空混合效应模型的京津冀 PM <sub>2.5</sub> 浓度变化模拟 .....                                                                            | 范丽行, 杨晓辉, 宋春杰, 李梦诗, 段继福, 王卫, 李夫星, 李伟妙 (2262)                 |
| 2000~2018 年京津冀城市群 PM <sub>2.5</sub> 时空演变及其与城市扩张的关联 .....                                                                 | 赵安周, 相恺政, 刘宪锋, 张向蕊 (2274)                                    |
| 海-陆大气交汇作用下青岛冬季大气 PM <sub>2.5</sub> 污染特征与来源解析 .....                                                                       | 虞雄, 杨凌霄, 张婉, 齐安安, 王滢铭, 王鹏程, 黄琦, 赵彤, 张雄飞, 徐鹏, 张天琪, 王文兴 (2284) |
| 硫酸盐非均相机制对颗粒物污染的影响: 上海典型污染事件的 WRF-Chem 模拟 .....                                                                           | 张茹涵, 张皓然, 冯伟航, 汤克勤, 马亚平, 王红丽, 黄成, 胡建林, 张宏亮, 李楠 (2294)        |
| 省会城市不同功能区大气 PM <sub>2.5</sub> 化学组分季节变化及来源分析 .....                                                                        | 孙友敏, 范晶, 徐标, 李彦, 韩红, 张桂芹 (2304)                              |
| 太原市冬季不同污染程度下 PM <sub>2.5</sub> 的化学组成、消光特征及氧化潜势 .....                                                                     | 任娇, 赵荣荣, 王铭, 张欢欢, 尹诗杰, 薛永刚 (2317)                            |
| 郑州市冬季大气 PM <sub>2.5</sub> 金属元素来源及健康风险评价 .....                                                                            | 姚森, 王乾恒, 薛妍, 史来文, 张俊美, 杨书申 (2329)                            |
| 淄博市冬季 PM <sub>2.5</sub> 载带金属元素污染特征、生态风险评价及来源分析 .....                                                                     | 白雯宇, 徐勃, 郭丽瑶, 殷宝辉, 马银红, 李丽明, 杨文, 赵雪艳 (2336)                  |
| 承德市 PM <sub>2.5</sub> 中多环芳烃的季节分布特征、来源解析及健康风险评价 .....                                                                     | 贺博文, 聂赛赛, 李仪琳, 郭睿瑶, 姚波, 崔建升, 冯亚平, 王帅, 侯晓松 (2343)             |
| 珠三角大气中二噁英污染水平与区域迁移 .....                                                                                                 | 付建平, 谢丹平, 黄锦琼, 杨艳艳, 冯桂贤, 周长风, 廖海婷, 青亮, 张漫雯, 吴明亮, 张素坤 (2355)  |
| 华北平原南部农村地区黑碳气溶胶浓度及来源 .....                                                                                               | 张玲, 孔少飞, 郑煌, 胡尧, 曾昕, 程溢, 祁士华 (2363)                          |
| 基于模式过程分析技术天津地区 PM <sub>2.5</sub> 污染气象成因分析 .....                                                                          | 郝团, 蔡子颖, 韩素芹, 杨旭, 樊文雁, 姚青, 邱晓滨 (2373)                        |
| 基于排放量和大气反应活性的 VOCs 污染源分级控制 .....                                                                                         | 陈鹏, 张月, 邢敏, 李珊珊 (2383)                                       |
| 基于复杂网络的中国臭氧拓扑特征 .....                                                                                                    | 菅娜, 陈建华, 李冬, 王迪, 薛志钢 (2395)                                  |
| 基于前体物多情景排放的兰州市 2030 年夏季臭氧预测 .....                                                                                        | 陈天雷, 吴敏, 潘成珂, 常莉敏, 李洪, 刘鹏, 高宏, 黄韬, 马建民 (2403)                |
| 基于源反演和气溶胶同化方法天津空气质量模式预报能力改进 .....                                                                                        | 蔡子颖, 唐邈, 肖致美, 杨旭, 朱玉强, 韩素芹, 徐虹, 邱晓滨 (2415)                   |
| 基于空气质量监测数据的钢铁行业污染源识别方法 .....                                                                                             | 石耀耀, 胡京南, 褚咏晰, 段青春, 胡丙鑫, 殷丽娜, 吕玲玲 (2427)                     |
| 重污染天气应对“绩效分级、差异化管控”措施首次实践效果后评估 .....                                                                                     | 曾景海, 王灿 (2436)                                               |
| 黄河流域水污染风险分区 .....                                                                                                        | 周夏飞, 曹国志, 於方, 杨威杉, 徐泽升 (2448)                                |
| 黄河流域甘肃段工业行业水污染物空间排放特征 .....                                                                                              | 李雪迎, 杨曦, 乔琦, 刘丹丹, 张玥, 赵若楠, 白璐 (2459)                         |
| 黄河沉积物重金属时空分布与污染评价 .....                                                                                                  | 王韬轶, 潘保柱, 韩语, 王雨竹, 李晨辉, 杜蕾 (2467)                            |
| APCS-MLR 结合 PMF 模型解析厦门杏林湾近郊流域沉积物金属来源 .....                                                                               | 沈宸宇, 闫钰, 于瑞莲, 胡恭任, 崔建勇, 颜妍, 黄华斌 (2476)                       |
| 河流底泥 DOM、营养盐与重金属空间分异特征及响应关系 .....                                                                                        | 肖艳春, 于会彬, 宋永会 (2489)                                         |
| 太原市汾河河岸带土壤重金属分布特征、评价与来源解析 .....                                                                                          | 胡杰, 赵心语, 王婷婷, 苟奎贤, 王春玲 (2500)                                |
| 洪泽湖溶解态有机质与重金属汞的结合特性 .....                                                                                                | 胡斌, 王沛芳, 张楠楠, 包天力, 金秋彤 (2510)                                |
| 富营养化驱动下西凉湖百年生态演化轨迹 .....                                                                                                 | 郑佳楠, 徐敏, 郑文秀, 朱可欣, 王荣, 张恩楼 (2518)                            |
| 基于 DGT 技术的黄河上游典型水库沉积物氮磷释放与污染源解析 .....                                                                                    | 马玉坤, 朱翔, 庞晴晴, 孔明, 韩天伦, 彭福全, 谢磊, 汪龙眠, 徐斌, 何斐 (2527)           |
| 暴雨前后河南北部河流水质分异特征及其污染源解析 .....                                                                                            | 张彦, 邹磊, 梁志杰, 姜明, 李平, 黄仲冬, 齐学斌 (2537)                         |
| 鄱阳湖流域水葫芦 ( <i>Eichhornia crassipes</i> ) 对水体微塑料的吸附截留效应 .....                                                             | 李文刚, 吴希恩, 简敏菲, 刘淑丽, 刘海球, 丁惠君 (2548)                          |
| 太湖塑料添加剂时空分布和生态风险评价 .....                                                                                                 | 刘舒娇, 丁剑楠, 石波哲, 张军毅, 庄严, 邹华 (2557)                            |
| 骆马湖表层沉积物微塑料的分布、来源及储量 .....                                                                                               | 姚明轩, 白雪, 徐振佳, 李凤杰, 陆滢, 李畅, 华祖林 (2566)                        |
| 太湖不同介质中磷的污染特征及其治理启示 .....                                                                                                | 蔡梅, 陆志华, 王元元, 钱旭 (2575)                                      |
| 辽河四平段流域河流沉积物微生物群落多样性和结构分析 .....                                                                                          | 李鹏洋, 安启睿, 王新皓, 孙思宇, 李青乾, 郑娜 (2586)                           |
| 面源污染诱导嘉陵江沉积物中细菌群落结构与功能异变 .....                                                                                           | 薛玉琴, 徐飞, 刘坤和, 王佳颖, 竹兰萍, 朱志豪, 张拓 (2595)                       |
| 微塑料对沉积物细菌群落组成和多样性的影响 .....                                                                                               | 李汶璐, 王志超, 杨文煊, 张博文, 李卫平 (2606)                               |
| 白洋淀冬季沉积物好氧反硝化菌垂直分布特征及群落构建 .....                                                                                          | 张甜娜, 陈召莹, 张紫薇, 周石磊, 孟佳靖, 陈哲, 张一凡, 董宛佳, 崔建升 (2614)            |
| 人工诱导水库分层水体提前混合对细菌群落结构和代谢活性的影响 .....                                                                                      | 高悦, 黄廷林, 李楠, 齐允之, 司凡, 杨斌 (2624)                              |
| 鄱阳湖典型区铜锈环螺体内微塑料分布特征 .....                                                                                                | 江为群, 胡启武, 简敏菲, 邹龙, 刘淑丽 (2633)                                |
| 负载多壁碳纳米管的多孔 Ti/SnO <sub>2</sub> -Sb-Ni 电极电催化氧化双酚 A .....                                                                 | 符远航, 刘安迪, 黄伟斌, 唐彬彬, 张进忠 (2640)                               |
| 磁性 Mn <sub>0.6</sub> Zn <sub>0.4</sub> Fe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> 催化 H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 降解亚甲基蓝效能及机制 ..... | 徐冬莹, 余静, 郝旗, 杨迎春, 方淑红 (2650)                                 |
| 两种纳米颗粒对沸石吸附环丙沙星的影响 .....                                                                                                 | 蒋兰翠, 孟昭福, 刘贤, 刘欣, 王新欣, 曹雪雯 (2662)                            |
| AMD 污泥复合材料吸附 As(V) 的机制及其影响因素 .....                                                                                       | 张亚辉, 张瑞雪, 吴攀, 陈世万, 杨艳, 安丽, 傅渝然, 张子豪 (2673)                   |
| 三氯生及其降解中间产物对活性污泥中微生物群落变化和硝化反硝化功能基因的影响 .....                                                                              | 卢英源, 董小琦, 彭星星, 贾晓珊 (2685)                                    |
| 污染场地风险管控可持续评价指标体系构建及关键影响因素分析 .....                                                                                       | 李笑诺, 易诗懿, 陈卫平 (2699)                                         |
| 基于生态功能的滨海湿地土壤质量综合评价方法构建及实证分析 .....                                                                                       | 张雪, 孔范龙, 姜志翔 (2709)                                          |
| 铜山矿区周边农田土壤重金属来源解析及污染评价 .....                                                                                             | 陈航, 王颖, 王澍 (2719)                                            |
| 典型铁、锰矿物对稻田土壤砷形态与酶活性的影响 .....                                                                                             | 周一敏, 黄雅媛, 刘凯, 赵儒乐, 李冰玉, 雷鸣 (2732)                            |
| 两种油菜施肥水溶性壳聚糖修复典型铅污染农田土壤 .....                                                                                            | 孟晓飞, 郑国砥, 陈同斌, 杨俊兴, 郭俊梅, 刘杰 (2741)                           |
| 基于贝叶斯理论的小麦籽粒镉铅超标风险预测 .....                                                                                               | 王天齐, 李艳玲, 杨阳, 牛硕, 王美娥, 陈卫平 (2751)                            |
| 紫色土旱坡地油菜/玉米轮作下氮流失的年度变化特征 .....                                                                                           | 徐曼, 高明, 余添, 朱浩宇, 邓华, 王子芳 (2758)                              |
| 不同原料生物炭的理化特性及其作炭基肥缓释载体的潜力评价 .....                                                                                        | 邢莉彬, 成洁, 耿增超, 张宏伟, 梁宏旭, 王强, 孙倩倩, 李艳 (2770)                   |
| 木醋液酸化生物炭与氮素配施对盐渍土壤活性氮及氨挥发的影响 .....                                                                                       | 申书伟, 张丹丹, 王敏鸽, 王旭东 (2779)                                    |
| 生物可降解地膜覆盖对关中地区小麦-玉米农田温室气体排放的影响 .....                                                                                     | 郭怡婷, 罗晓琦, 王锐, 陈海心, 冯浩 (2788)                                 |
| 戴云山南坡不同海拔森林土壤微生物群落结构特征和影响因素 .....                                                                                        | 何中声, 王紫薇, 朱静, 陈佳嘉, 谷新光, 江蓝, 陈博, 吴则焰, 刘金福, 陈文伟 (2802)         |
| 模拟增温和降雨增加对撂荒草地土壤胞外酶活性及计量特征的影响 .....                                                                                      | 王兴, 钟泽坤, 简俊楠, 张硕宏, 杨改河, 任成杰, 冯永忠, 任广鑫, 王晓娇, 韩新辉 (2812)       |
| 中国主要城市的城市化对局地增温的贡献 .....                                                                                                 | 李宇, 周德成, 闫章美, 张良侠 (2822)                                     |
| 《环境科学》征订启事 (2293)                                                                                                        |                                                              |
| 《环境科学》征稿简则 (2426)                                                                                                        |                                                              |
| 信息 (2585, 2672, 2708)                                                                                                    |                                                              |

# 北京城区 PM<sub>2.5</sub> 各组分污染特征及来源分析

安欣欣<sup>1</sup>, 曹阳<sup>1</sup>, 王琴<sup>1</sup>, 富佳明<sup>1</sup>, 王陈婧<sup>1</sup>, 景宽<sup>1</sup>, 刘保献<sup>1,2\*</sup>

(1. 北京市生态环境监测中心, 大气颗粒物监测技术北京市重点实验室, 北京 100048; 2. 清华大学环境学院, 北京 100084)

**摘要:** 为探索北京城区大气细颗粒物(PM<sub>2.5</sub>)及其各组分的浓度特征,于2019年全年在车公庄地区开展了PM<sub>2.5</sub>及水溶性离子、碳质组分及金属元素的连续在线监测。结果表明,2019年北京城区 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 平均值为 $46.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,化学组分中 $\rho[\text{有机物(OM)}]$ 、 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 、 $\rho(\text{SO}_4^{2-})$ 、 $\rho(\text{NH}_4^+)$ 、 $\rho(\text{EC})$ 、 $\rho(\text{Cl}^-)$ 、 $\rho(\text{微量元素})$ 和 $\rho(\text{地壳物质})$ 分别为9.1、11.1、5.7、5.4、1.4、0.9、1.6和 $7.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,SNA( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 和 $\text{NH}_4^+$ )合计占到了PM<sub>2.5</sub>的47.4%,而碳质组分较以往研究质量分数偏低,体现出北京城区PM<sub>2.5</sub>具有较强的二次污染特征,其中 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 为1.96,与以往的研究结果相比放大明显。SNA在4个季节中均占有较高比例,其中 $\text{NO}_3^-$ 为春、夏和秋季最主要组分,在PM<sub>2.5</sub>中质量分数为27.8%、23.2%和23.1%;受一次排放影响,冬季 $\rho[\text{TCA(OM+EC)}]$ 和 $\rho(\text{Cl}^-)$ 较高,为 $14.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $2.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,分别是夏季的2倍和11倍。从季节日变化特征上看,各组分冬季日变化曲线均呈单峰分布特征,这与冬季燃烧源排放时间集中在夜间以及夜间边界层下降有关;其他三季OM日变化曲线特征较相似呈双峰型分布, $\text{NO}_3^-$ 在春夏季(06:00~09:00)浓度突出, $\text{SO}_4^{2-}$ 、EC和 $\text{Cl}^-$ 日变化幅度较小。随着污染等级增加,SNA质量分数呈逐渐增加趋势,在五级重度污染时段, $\text{SO}_4^{2-}$ 和 $\text{Cl}^-$ 质量分数升高, $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 下降,体现出区域污染影响。通过研究潜在源区发现,河北中南部地区为主要的潜在源区,相对贡献最大;其中冬季 $\text{SO}_4^{2-}$ 的高值区域主要集中在东部和东南部,分布范围更广且距离北京市较近。基于PMF的源解析结果表明,2019年北京城区PM<sub>2.5</sub>的来源依次为二次硝酸盐、二次硫酸盐+二次有机物、机动车源、扬尘源、工业源和燃煤+生物质源,贡献率分别为39%、24%、17%、7%、7%和5%;二次源是北京市的最主要来源,总贡献率达63%。

**关键词:** 北京城区; PM<sub>2.5</sub>; 水溶性离子; 碳质组分; 污染特征; 来源分析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)05-2251-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.202109142

## Chemical Characteristics and Source Apportionment of PM<sub>2.5</sub> in Urban Area of Beijing

AN Xin-xin<sup>1</sup>, CAO Yang<sup>1</sup>, WANG Qin<sup>1</sup>, FU Jia-ming<sup>1</sup>, WANG Chen-jing<sup>1</sup>, JING Kuan<sup>1</sup>, LIU Bao-xian<sup>1,2\*</sup>

(1. Beijing Key Laboratory of Airborne Particulate Matter Monitoring Technology, Beijing Municipal Ecological and Environmental Monitoring Center, Beijing 100048, China; 2. School of Environment, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

**Abstract:** To explore the concentration characteristics of fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) and its components in a Beijing urban area, PM<sub>2.5</sub> and water-soluble ions, carbonaceous components, and metal elements were continuously measured online in the Chegongzhuang area throughout 2019. The results showed that the average  $\rho(\text{PM}_{2.5})$  in the Beijing urban area in 2019 was  $46.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , and the  $\rho[\text{organic matter (OM)}]$ ,  $\rho(\text{NO}_3^-)$ ,  $\rho(\text{SO}_4^{2-})$ ,  $\rho(\text{NH}_4^+)$ ,  $\rho(\text{EC})$ ,  $\rho(\text{Cl}^-)$ ,  $\rho(\text{trace elements})$ , and  $\rho(\text{crustal matter})$  were 9.1, 11.1, 5.7, 5.4, 1.4, 0.9, 1.6, and  $7.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , respectively. The SNA including  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ , and  $\text{NH}_4^+$  accounted for 47.4% of PM<sub>2.5</sub>, and the proportion of carbonaceous components was lower than that of the previous results, which showed significant secondary pollution characteristics of PM<sub>2.5</sub> in Beijing. Additionally, the ratio of  $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  was 1.96, which was obviously larger than that of the previous results. In terms of the characteristics of different seasons, SNA accounted for a large proportion in all seasons, and  $\text{NO}_3^-$  was the main component in spring, summer, and autumn, accounting for 27.8%, 23.2%, and 23.1% in PM<sub>2.5</sub>, whereas the concentrations of TCA(OM+EC) and  $\text{Cl}^-$  in winter were  $14.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  and  $2.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , which were 2 and 11 times those in summer. The characteristics of seasonal diurnal variation indicated that all components showed a single-peak distribution of diurnal variation in winter, which was related to the emission of combustion sources and the decrease in the boundary layer at night. In the other three seasons, the diurnal variation in OM showed a double-peak distribution, and  $\text{NO}_3^-$  was higher from 06:00-09:00 in spring and summer, whereas there were no obvious variations in  $\text{SO}_4^{2-}$ , EC, and  $\text{Cl}^-$ . With the increase in pollution levels, SNA fractions gradually increased. During the heavy pollution, the proportion of  $\text{SO}_4^{2-}$  and  $\text{Cl}^-$  increased, whereas the ratio of  $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  decreased, reflecting the influence of regional pollution. Potential source region analyses suggested that the air mass from the south-central area of Hebei province contributed most to the high PM<sub>2.5</sub> concentrations in the urban area of Beijing. Furthermore, the high WPSCF value of  $\text{SO}_4^{2-}$  in winter was mainly concentrated in the east and southeast, with a wider distribution and a closer distance to Beijing. The PMF model showed the sources of PM<sub>2.5</sub> in Beijing in 2019 as: secondary nitrate, secondary sulfate + secondary organic matter, vehicle sources, dust sources, industrial sources, and coal combustion + biomass sources, with the contributions of 39%, 24%, 17%, 7%, 7%, and 5%, respectively. Secondary sources were the main source in Beijing, with a total contribution of 63%.

**Key words:** Beijing urban area; PM<sub>2.5</sub>; water-soluble ions; carbonaceous components; pollution characteristics; source analysis

近年来,随着我国大气污染治理力度的不断加大,空气质量呈逐年改善趋势,2013~2018年全国细颗粒物(PM<sub>2.5</sub>)浓度平均下降42%,但2018年,我国338个地级及以上城市中,仍有217个城市环境空气质量超标,京津冀区域是我国PM<sub>2.5</sub>浓度较高区

收稿日期: 2021-09-15; 修订日期: 2021-10-16

基金项目: 北京市科技重点研发计划首都蓝天行动培育项目(Z191100009119014, Z191100009119001)

作者简介: 安欣欣(1980~),男,高级工程师,主要研究方向为大气环境监测与污染成因分析, E-mail: anxinxin2002@163.com

\* 通信作者, E-mail: liubaixian28@163.com

域; 338 个地级及以上城市发生重度污染 1 899 天次, 其中  $\text{PM}_{2.5}$  为首要污染物的天数占重度及以上污染天数的 60%<sup>[1~4]</sup>. 研究  $\text{PM}_{2.5}$  的组分变化特征和来源, 对掌握城市整体污染水平进而科学制定防治措施、进一步改善空气质量状况具有现实意义.

国内外专家学者开展过大量关于  $\text{PM}_{2.5}$  组分和来源的研究, 张会涛等<sup>[5]</sup> 的研究通过对武汉市  $\text{PM}_{2.5}$  化学组分进行分析, 发现  $\text{OC}$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$  和  $\text{NH}_4^+$  质量分数排名前三, 总计达到 40%, 主要受到工业及机动车排放的影响, 扬尘的影响也不容忽视; 肖致美等<sup>[6]</sup> 的研究通过 2017~2019 年天津市  $\text{PM}_{2.5}$  主要组分进行分析, 发现  $\text{NO}_3^-$  和  $\text{NH}_4^+$  质量分数逐年上升,  $\text{OC}$  和  $\text{SO}_4^{2-}$  质量分数逐年下降, 结果显示机动车排放贡献分担率上升, 工业和燃煤源的贡献分担率略降; 周静博等<sup>[7]</sup> 的研究通过对石家庄市重污染过程  $\text{PM}_{2.5}$  污染特征和来源进行分析, 获得  $\text{PM}_{2.5}$  主要成分为二次无机离子和有机物, 主要来源为燃煤和工业工艺源, 随污染加重  $\text{SO}_4^{2-}$  质量分数和二次无机源贡献均大幅增加. Zamora 等<sup>[8]</sup> 的研究针对北京市冬季重污染过程进行了综合观测, 分析了气象条件、局地排放和颗粒物二次生成过程对污染的影响, 证实了核模态下颗粒物的增长和形成过程, 认为减少气态前体物排放对抑制污染过程中颗粒物增长至关重要. Li 等<sup>[9]</sup> 的研究通过模型分析了京津冀地区城市群污染过程, 发现来自区域传输的老化二次离子是北京市颗粒物浓度快速增长的关键因素, 而碳质颗粒物主要来自本地排放. Liu 等<sup>[10]</sup> 的研究通过对天津在线组分数据进行源解析, 发现 PMF 和 ME2 模型结果较一致, 二次源和机动车源在夏季贡献较大.

北京市是我国的首都, 也是国际交往中心, 空气质量状况受到全世界的广泛关注, 其  $\text{PM}_{2.5}$  浓度虽然呈逐年下降趋势, 但 2018 年  $\text{PM}_{2.5}$  浓度仍然远超国家二级标准限值. 为控制颗粒物的污染, 众多专家学者进行过很多针对性的分析<sup>[11~17]</sup>, 但以上研究大多基于手工方法且间隔采集, 缺少基于在线连续长时间监测的变化趋势研究, 特别是在 2017 年和 2018 年秋冬季攻坚行动后北京市污染源发生较大变化. 本研究选取北京市城区基于 2019 年全年  $\text{PM}_{2.5}$  及其各组分在线高时间分辨率监测结果, 探讨不同季节  $\text{PM}_{2.5}$  的化学组分浓度特征, 并分析其来源和源区位置, 以期为北京市大气的污染控制提供数据支撑和科学依据.

## 1 材料与方法

### 1.1 采样点位及时间

本研究采样点位于北京市海淀区车公庄地区北京

市生态环境监测中心 6 楼楼顶, 测点距离地面高度 25 m, 地处北京市城区西部二环与三环之间, 周围主要是居住区, 北面 80 m 为车公庄西路, 周围没有明显的工业污染源, 满足监测规范的各项要求, 基本代表了北京城市环境的污染状况. 监测的时间为 2019 年 1 月 1 日~12 月 31 日, 时间分辨率为 1 h. 分别用 3~5 月代表春季、6~8 月代表夏季、9~11 月代表秋季、1~2 月和 12 月代表冬季. 监测点位见图 1.

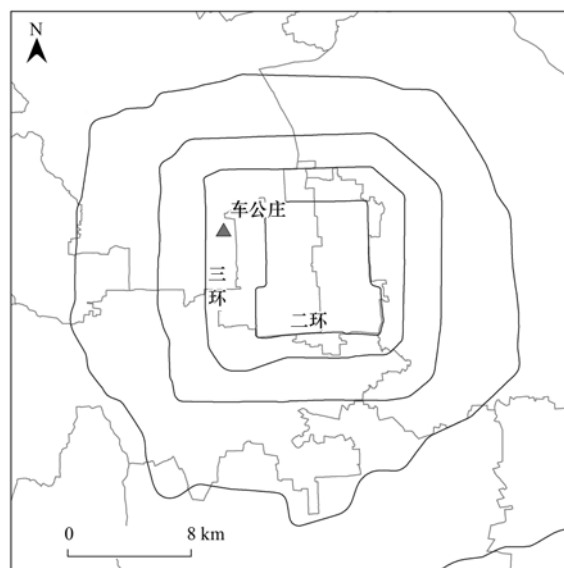


图 1 本研究监测点位示意

Fig. 1 Location of the research monitor station

### 1.2 分析方法及质量保证质量控制

在线  $\text{PM}_{2.5}$  浓度监测仪为 Thermo Fisher 公司的 1405 + FDMS, 原理是微量振荡天平 (TEOM) 法, FDMS 装置用于补偿 TEOM 方法导致挥发性成分损失而引起的监测结果的偏差, 该仪器可以获得  $\text{PM}_{2.5}$  的小时浓度, 仪器检出限为  $1.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ .

$\text{PM}_{2.5}$  中水溶性离子监测仪为 Thermo Fisher 公司的在线离子色谱仪 (在线采样系统 URG-9000D、离子色谱仪 ICS-1100、2100), 可以测定  $\text{PM}_{2.5}$  中  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  和  $\text{NH}_4^+$  等多种水溶性离子, 时间分辨率为 1 h, 不同离子检出限范围在  $0.001 \sim 0.01 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$  之间.

$\text{PM}_{2.5}$  中 OC 和 EC 浓度分析选用 Sunset 公司生产的 RT-4 型热光透射法 (NIOSH TOT) 在线监测仪, 时间分辨率为 1 h, 其中 OC 检出限为  $0.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ , EC 检出限为  $0.1 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ .

$\text{PM}_{2.5}$  中金属元素分析使用 Xact 在线监测仪 (Xact 625; Cooper Environmental, USA), 该仪器通过对滤带采集的颗粒物进行连续 XRF (X 射线荧光法) 分析, 得到时间分辨率为 1 h 的多金属元素浓度数据, 不同元素检出限差异较大, 范围在  $0.1 \sim 13.3 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$  之间.

SO<sub>2</sub> 分析仪器选用 Thermo Fisher 43i 分析仪,原理是紫外脉冲荧光法,仪器检出限为 1.0 μg·m<sup>-3</sup>; NO<sub>x</sub> 分析仪器选用 Thermo Fisher 42i 分析仪,原理是化学发光法,仪器检出限为 1.0 μg·m<sup>-3</sup>.

本研究期间,按照《环境空气颗粒物(PM<sub>10</sub>和 PM<sub>2.5</sub>)连续自动监测系统运行和质控技术规范》(HJ 817-2018)的要求对 PM<sub>2.5</sub>自动监测仪器进行系统地试漏以及温度、压力、湿度和流量的校准;对水溶性离子组分在线监测仪进行采样切割器的清理、流量的校准和混合标准液的校准;对 OCEC 在线监测仪进行采样切割器的清理、流量的校准和标准蔗糖溶液的校准;对重金属仪器进行采样器的清洗、流量校准和标准滤膜的校准;使用 Thermo Fisher 146i 动态气体校准仪和 111 零气发生器每天对 SO<sub>2</sub> 和 NO<sub>x</sub> 气态分析仪器自动进行零点和跨度点的校准。

### 1.3 质量重构方法

为更好表征多种组分与 PM<sub>2.5</sub> 浓度的关系,对 PM<sub>2.5</sub> 进行组分重构: PM<sub>2.5</sub> = NO<sub>3</sub><sup>-</sup> + SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> + NH<sub>4</sub><sup>+</sup> + 有机物(OM) + EC + Cl<sup>-</sup> + 地壳物质 + 微量元素 + 其他,其中 OM 用 OC 的 1.4 倍估算;地壳物质 = Al × 2.2 + Si × 2.49 + Ca × 1.63 + Fe × 2.42 + Ti × 1.94 + Mg<sup>2+</sup> × 1.93;“微量元素”为: K、F<sup>-</sup>、Ba、Cd、Sn、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Se、Pb、P、Na<sup>+</sup> 和 Hg 浓度之和;“其他”为 PM<sub>2.5</sub> 浓度与所有重组分浓度之差。

### 1.4 PM<sub>2.5</sub> 传输路径及潜在源区分析方法

后向轨迹模式 HYSPLIT 是一种用于模拟分析气流运动、沉降和扩散的模式,在大气污染物的扩散和传输分析中已得到了广泛运用<sup>[18~20]</sup>. 本研究在模型中输入 GDAS 全球同化气象数据(ftp://arlftp.arl.hq.noaa.gov/pub/archives/gdas1/),以车公庄站为起始点,以距离地面 500 m 为起始高度,以每天的 00:00、01:00、02:00、03:00、…、21:00、22:00 和 23:00 为时间计算起点,对 2019 年全年气团的 24 h 后向轨迹进行模拟,并根据气团轨迹的方向和长度,依据欧拉法将春、夏、秋和冬这 4 个季节的气团轨迹进行聚类,聚类分析组间差异临界值设置为 30%.

潜在源区贡献因子分析(potential source contribution function analysis, PSCF)是基于条件概率函数发展而来的方法,通过结合气团轨迹和对应的污染物浓度,来定性分析可能的源区位置. 对研究区域划分为 0.5° × 0.5° 的网格, PSCF 定义为传输至监测点位的气团在途经网格  $ij$  时,对应的污染物浓度超过阈值的条件概率<sup>[21]</sup>,计算公式如下:

$$\text{PSCF}_{ij} = m_{ij}/n_{ij} \quad (1)$$

式中,  $n_{ij}$  为网格内全部经过的轨迹节点数量,  $m_{ij}$  为污染物浓度高于设定阈值(本研究中设为观测期间污染物浓度的 75% 分位数)的轨迹节点的数量.

为了降低条件概率的不确定性,本研究引入了权重因子  $W_{ij}$ , 计算公式如下:

$$\text{WPSCF}_{ij} = W_{ij} \times \text{PSCF}_{ij} \quad (2)$$

$$W_{ij} = \begin{cases} 1.00, & 4a \leq n_{ij}, \\ 0.70, & a \leq n_{ij} < 4a, \\ 0.42, & a/2 \leq n_{ij} < a, \\ 0.05, & n_{ij} < a/2. \end{cases} \quad (3)$$

式中,  $a$  为研究区域中每一个网格内经过的轨迹节点的平均数量,即为轨迹节点总数与网格总数之商. 本研究中春、夏、秋、冬这 4 个季节  $a$  分别取 18、32、24、20,后向轨迹聚类和潜在源区分析均通过 Meteoinfo(V3.0.1)进行<sup>[22]</sup>.

### 1.5 PMF 来源解析方法

正定矩阵因子分析(PMF)模型是基于受体点的大量观测数据来估算污染源的组成和对环境浓度的贡献,假设  $X$  为  $n \times m$  矩阵,  $n$  为样品数,  $m$  为污染物组分,那么  $X$  可分解为  $X = GF + E$ ,其中  $G$  为  $n \times p$  矩阵,  $F$  为  $p \times m$  矩阵,  $p$  为主要污染源的数目,  $E$  为残数矩阵,定义为:

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \quad (4)$$

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left[ \frac{x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj}}{u_{ij}} \right]^2 \quad (5)$$

式中,  $x_{ij}$  表示  $i$  样品中  $j$  组分的浓度;  $g_{ik}$  是第  $k$  个源对第  $i$  个样品的相对贡献;  $f_{kj}$  是第  $k$  个排放源中  $j$  组分的含量;  $e_{ij}$  是残差. PMF 算法以  $G$ (污染源载荷)和  $F$ (源廓线)中元素非负为约束条件,通过加权最小二乘法使  $Q$  达到最小为最优,进而求解  $G$  和  $F$ .

基于 1 h 分辨率的 PM<sub>2.5</sub> 化学组分数据,具有更大的样本量,且更能有效地反映出源的日变化信息,能有效地支撑 PMF 受体源解析<sup>[23]</sup>. 随着 PM<sub>2.5</sub> 化学组成在线监测技术的日趋成熟,逐渐有学者开展在线多组分数据与 PMF 模型的联用,获得时间信息更全面的 PM<sub>2.5</sub> 来源解析结果<sup>[24~26]</sup>. 本研究基于 2019 年全年 1 h 分辨率的 PM<sub>2.5</sub> 及化学组分数据,利用美国 EPA 的推荐的 EPA PMF5.0 软件开展 PM<sub>2.5</sub> 的来源解析. 根据数据质量及组分特性,对参与模拟的样本及化学组分进行筛选,共 7 820 个环境样本纳入分析,参与模型计算的组分包括 OC、EC、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Cl<sup>-</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Si、K、Mn、Fe、Cu、Zn、Ba、Hg、Mg、Mn、Pb 等组分和 PM<sub>2.5</sub> 浓度

及气态污染物  $\text{NO}_x$ , 测量不确定度使用基于公式的方法计算得到. 在 PMF 模型计算中, 尝试 3 ~ 10 个因子, 进行多次优化计算, 最终确定 6 个因子能合理解释其污染源类别, 且此时解析结果稳定、大部分残差值分布在 -3 ~ 3 间, 进一步在 -5 ~ 5 间调整  $F_{\text{peak}}$  值, 寻找因子旋转的空间, 发现  $F_{\text{peak}}$  值的变化对解析结果并无明显影响, 故选择  $F_{\text{peak}} = 0$  时 PMF 的解析结果进行分析.

## 2 结果与讨论

### 2.1 $\text{PM}_{2.5}$ 及各组分浓度状况

2019 年, 北京城区  $\rho(\text{PM}_{2.5})$  为  $46.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 较全市平均浓度略高,  $\text{PM}_{2.5}$  中  $\rho[\text{有机物(OM)}]$ 、 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 、 $\rho(\text{SO}_4^{2-})$ 、 $\rho(\text{NH}_4^+)$ 、 $\rho(\text{EC})$ 、 $\rho(\text{Cl}^-)$ 、 $\rho(\text{微量元素})$  和  $\rho(\text{地壳物质})$  分别为 9.1、11.1、5.7、5.4、1.4、0.9、1.6 和  $7.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 分别占  $\text{PM}_{2.5}$  的 19.5%、23.7%、12.1%、11.5%、3.1%、1.9%、3.5% 和 15.7%,  $\text{NO}_3^-$  为  $\text{PM}_{2.5}$  的首要组分, 见图 2.  $\text{PM}_{2.5}$  中  $\text{SNA}(\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^- + \text{NH}_4^+)$  的 3 种主要水溶性离子大小为:  $\text{NO}_3^- > \text{SO}_4^{2-} > \text{NH}_4^+$ , 共占总量的 47.4%, 与丁萌萌等<sup>[27]</sup> 于 2015 年在北京观测结果相比, 结果进一步上升, 且高于我国华北、东部和南部等重点城市的结果<sup>[28-31]</sup>, 说明近年来北京  $\text{PM}_{2.5}$  具有较强的二次污染特征.  $\text{PM}_{2.5}$  中  $\rho[\text{TCA}(\text{OM} + \text{EC})]$  为  $10.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 远低于李立伟等<sup>[32]</sup> 于 2015 ~ 2016 年在北京、天津、石家庄、保定和沧州的监测结果以及张俊峰等<sup>[33]</sup> 于 2016 ~ 2017 年在北京和石家庄的结果, 说明经过全面实施燃煤、工业、机动车和散乱污等综合治理, 北京市燃烧源排放降低明显.

$\text{PM}_{2.5}$  中的  $\text{NO}_3^-$  作为移动源排放的指标,  $\text{SO}_4^{2-}$  作为固定源排放的指标, 常用  $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  来判断城市是以何种源污染为主, 数值大于 1, 移动源影响大, 反之, 固定源影响大. 2019 年, 北京城区  $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  为 1.96, 与刘保献等<sup>[34]</sup> 在 2012 年北京城区的研究结果(1.08)相比, 放大明显, 由此可见, 随着近几年的机动车保有量的不断增加以及固定源的有效治理,  $\text{NO}_3^-$  的气态前体物将是北京地区急需加大控制力度的方向. 使用  $\text{PM}_{2.5}$  中  $\text{OC}/\text{EC}$  来识别碳的排放和转化, 用于表征二次污染的程度. 有研究学者认为, 当  $\text{OC}/\text{EC}$  超过 2.0 的时候, 表明有 SOC 的存在<sup>[35]</sup>. 2019 年, 北京城区  $\text{OC}/\text{EC}$  为 4.6, 这说明北京大气中存在较为明显的 SOC 污染. 使用硫氧化率 (SOR) 和氮氧化率 (NOR) 来反映  $\text{SO}_4^{2-}$  和  $\text{NO}_3^-$  的形成转化过程. 有研究表明, 当  $\text{SOR} > 0.1$ , 说明大气

中有光化学氧化反应发生; 当  $\text{SOR} < 0.1$ , 表示大气中以一次污染物为主<sup>[36]</sup>, SOR 和 NOR 的值越高, 表示  $\text{SO}_2$  和  $\text{NO}_x$  转化成二次气溶胶就越多. 2019 年, 北京城区 SOR 和 NOR 分别为 0.48 和 0.14, 均大于 0.1, 说明二次反应明显.

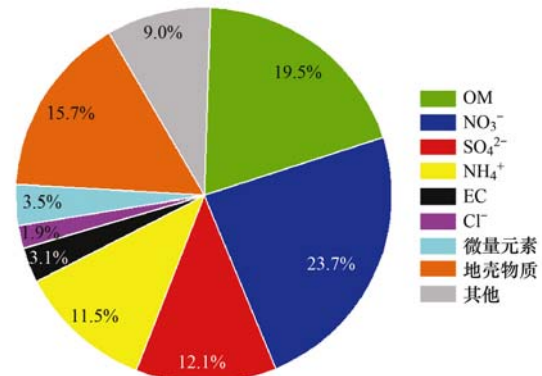


图2 北京市城区  $\text{PM}_{2.5}$  组分重构结果

Fig. 2 Reconstruction results of  $\text{PM}_{2.5}$  components in an urban area of Beijing

### 2.2 $\text{PM}_{2.5}$ 及各组分浓度变化特征

#### 2.2.1 $\text{PM}_{2.5}$ 及各组分浓度季节变化特征

2019 年, 北京城区 4 个季节  $\text{PM}_{2.5}$  及其中组分浓度见表 1,  $\text{PM}_{2.5}$  呈现冬春高、秋夏低的季节分布特征, 其中冬季 > 春季 > 秋季 > 夏季. 从  $\text{PM}_{2.5}$  组成来看, 4 个季节二次离子 (SNA) 均占有较高比例, 夏季 (51.6%) 最高, 春季 (50.6%) 次之, 冬季 (44.3%) 和秋季 (43.9%) 基本相当, 体现了全年尤其是夏季二次盐类对  $\text{PM}_{2.5}$  的重要贡献. 不同季节  $\text{NO}_3^-$  浓度从高到低分别为: 春季 > 冬季 > 秋季 > 夏季, 夏季  $\text{NO}_3^-$  浓度低值与较好的扩散条件及  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  的高温分解有一定关系<sup>[37]</sup>;  $\text{NO}_3^-$  在  $\text{PM}_{2.5}$  中的质量分数从高到低为: 春季 (27.8%) > 夏季 (23.2%) > 秋季 (23.1%) > 冬季 (20.8%),  $\text{NO}_3^-$  为春、夏、秋季最主要组分, 说明以其前体物  $\text{NO}_x$  排放为主要产物的机动车和工业源是影响北京大气污染的最重要因素. 而  $\text{SO}_4^{2-}$  冬季最高, 夏季和春季次之, 秋季最低, 由于冬季处于供暖期, 区域前体物  $\text{SO}_2$  的显著增加是  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度增加的主要原因. TCA 和  $\text{Cl}^-$  绝大部分来自煤或生物质燃烧的一次排放<sup>[38]</sup>, 平均浓度均表现为冬季最高, 春、秋季相当, 夏季最低, 体现出冬季一次排放强度明显偏高. 冬季 TCA 是夏季的 2 倍左右,  $\text{Cl}^-$  作为燃煤指示组分, 浓度在冬季约是夏季 11 倍, 区域燃煤取暖是造成冬季浓度显著升高的原因. 地壳物质主要来自土壤和扬尘, 沙尘高发的春季浓度最高, 夏季在湿沉降等因素作用下浓度最低.

$\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$  秋季最高、夏季最低, 可能是由于秋

季气温和大气条件适合 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 形成<sup>[39]</sup>, 而夏季高温引起了 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 分解以及 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 相对稳定而使比值降低. OC/EC 在 4 个季节差异不大, 夏季最高, 为 5.9, 与夏季高温下较多二次有机颗粒生成有关<sup>[40]</sup>. 从 NOR 来

看, NOR 春季和夏季较高, 秋季和冬季较低, 这可能是由于春夏温度较高, 二次反应强, 转化效率相对较高; 而 SOR 夏季较高, 这与夏季高温高湿 SO<sub>2</sub> 的氧化反应增强, 且不易受热分解及挥发有关.

表 1 不同季节 PM<sub>2.5</sub> 组分浓度和相关参数<sup>1)</sup>

| Table 1 Concentration of PM <sub>2.5</sub> components and related parameters during different seasons |      |                              |                               |                              |     |                 |      |      |                   |      |      |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------|------|------------------------------|-------------------------------|------------------------------|-----|-----------------|------|------|-------------------|------|------|
| 季节                                                                                                    | OM   | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> | EC  | Cl <sup>-</sup> | 微量元素 | 地壳物质 | PM <sub>2.5</sub> | SOR  | NOR  |
| 春季                                                                                                    | 8.6  | 14.3                         | 5.7                           | 6.0                          | 1.4 | 0.8             | 1.9  | 9.9  | 51.4              | 0.41 | 0.17 |
| 夏季                                                                                                    | 7.4  | 8.7                          | 6.0                           | 4.6                          | 1.0 | 0.2             | 1.1  | 5.4  | 37.6              | 0.66 | 0.16 |
| 秋季                                                                                                    | 8.2  | 10.2                         | 4.5                           | 4.7                          | 1.4 | 0.6             | 1.5  | 7.6  | 44.3              | 0.51 | 0.12 |
| 冬季                                                                                                    | 12.2 | 11.2                         | 6.4                           | 6.2                          | 1.9 | 2.1             | 2.0  | 6.5  | 53.7              | 0.33 | 0.11 |
| 平均值                                                                                                   | 9.1  | 11.1                         | 5.7                           | 5.4                          | 1.4 | 0.9             | 1.6  | 7.3  | 46.7              | 0.48 | 0.14 |

1) PM<sub>2.5</sub> 及其组分单位为 μg·m<sup>-3</sup>, SOR 和 NOR 无量纲

2.2.2 PM<sub>2.5</sub> 及各组分浓度季节日变化特征

对于各组分的日变化研究有利于更好地识别其浓度变化与源排放及物理化学过程的关系, 结果如图 3 所示. 总体来看, PM<sub>2.5</sub> 冬季夜间浓度较高, 春季上午浓度较高, 夏季和秋季日变化幅度较小. 在冬季, 各组分日变化曲线均呈单峰分布特征, 峰值出现在凌晨前后, 谷值出现在午后, 这可能与冬季燃烧源一次排放时间集中在夜间, 以及夜间边界层下降有关. 从 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 日变化曲线看, 春、夏季 (06:00 ~

09:00) 浓度出现峰值随后下降, 这与多地春夏季节研究结果相似, 可能与清晨边界层活动导致的颗粒物积累及低温环境下的 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 气-粒转化相关<sup>[41]</sup>, 秋季 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 变化较为平缓, 峰值出现在中午 12:00 前后, 可能与二次生成相关. SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 日变化幅度较小, 特别是在春季, 夏、秋两季 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 高值多发生在午后, 这与午后高温以及大气氧化性增强促进 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 生成有关. 除冬季外, OM 日变化曲线特征较相似, 呈双峰型分布, 峰值时间分别在 12:00 和

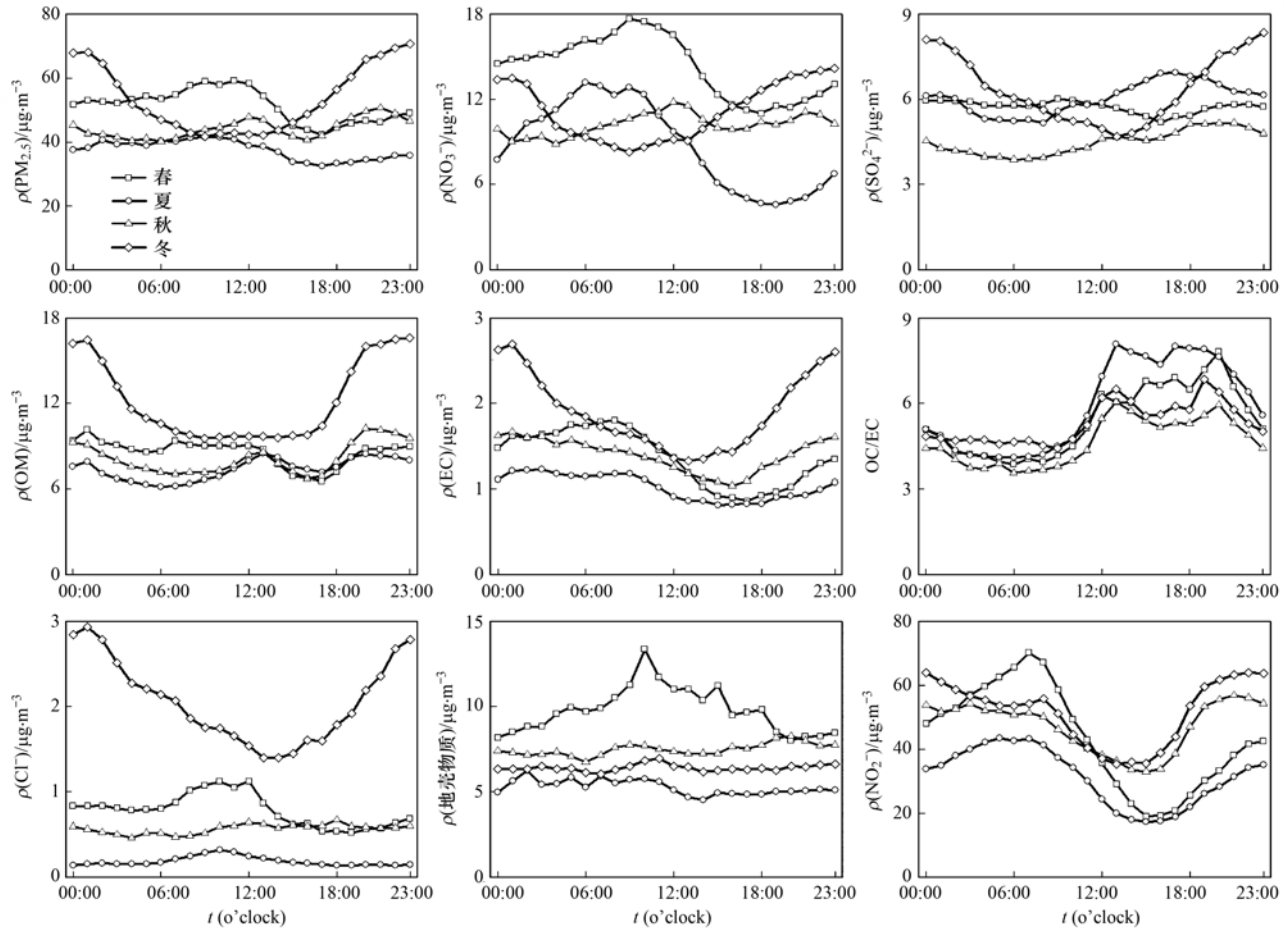


图 3 不同季节 PM<sub>2.5</sub> 组分日变化

Fig. 3 Diurnal variations in PM<sub>2.5</sub> components during different seasons

19:00前后,且与 OC/EC 高值时间基本一致,二次 OM 生成以及相关源排放可能是重要影响因素,相关研究者也发现了类似日变化特征,午间峰值主要来自餐饮排放和二次生成<sup>[42]</sup>,晚间峰值是机动车、餐饮排放和二次生成综合作用的结果<sup>[43]</sup>. EC 日变化曲线显示冬季浓度凌晨峰值突出,其他季节在早高峰时段浓度较高,这可能是由于燃煤和机动车在不同季节对 EC 的贡献差异造成的<sup>[44]</sup>. 除冬季以外,Cl<sup>-</sup> 浓度全天波动较小,且保持低值;而冬季具有明显夜间高值,其峰值浓度是谷值浓度的 2 倍左右. 地壳物质春季 10:00 出现尖锐峰值可能与瞬时沙尘过程相关,其他季节日变化曲线平缓. NO<sub>2</sub> 浓度变化与机动车活动时间较吻合,早高峰和凌晨时段出现浓度峰值. 综上,冬季夜间燃煤排放、早高峰时段的污染物积累以及正午前后的前体物二次转化是颗粒物各组分浓度升高的主要原因.

### 2.3 不同空气质量级别下 PM<sub>2.5</sub> 各主要组分变化特征

根据《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)和《环境空气质量指数(AQI)技术规定》(HJ 633-2012)的规定,以 PM<sub>2.5</sub> 日均值对采样日期进行污染级别划分. 2019 年,北京城区 PM<sub>2.5</sub> 一级天数为 137 d,占比 37.7%;二级天数为 169 d,占比 46.6%;三级天数为 39 d,占比 10.7%;四级天数为 12 d,占比 3.3%;五级天数为 6 d,占比 1.7%;未出现六级天气.

分别对不同浓度级别下 PM<sub>2.5</sub> 组分质量分数进行分析,结果见图 4. 一级天气时,OM 和地壳物质的质量分数较高,分别为 25.8% 和 27.8%,SNA 质量分数为 33.8%,一次污染特征较为突出. 随着污染加重,二次污染特征逐渐加强,二级和三级天气时 SNA 质量分数为 47.2% 和 53.7%,而 OM、地壳物质和微量元素等质量分数降低. 当达到四级和五级污染级别时,SNA 仍处于较高质量分数;五级天气时 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 和 Cl<sup>-</sup> 质量分数达到最高,分别为 13.9% 和 2.7%,由此反映出在重污染时期,北京城区在二次污染凸显的同时,燃煤源贡献也明显上升. 在北京市大部分区域“煤改气”和“煤改电”等措施下,重污染期间燃煤源相关贡献的提升,体现出区域污染传输的影响,更加凸显了京津冀联防联控的必要性.

### 2.4 后向轨迹和潜在源分析

#### 2.4.1 后向轨迹聚类分析

2019 年,北京市城区 4 个季节气团后向轨迹聚类结果如图 5 所示,整体来看,北京市 4 个季节气团来向变化明显,春季、冬季偏北气团相对较多,传输距离较长;而夏季、秋季分别以东部、南部气流为

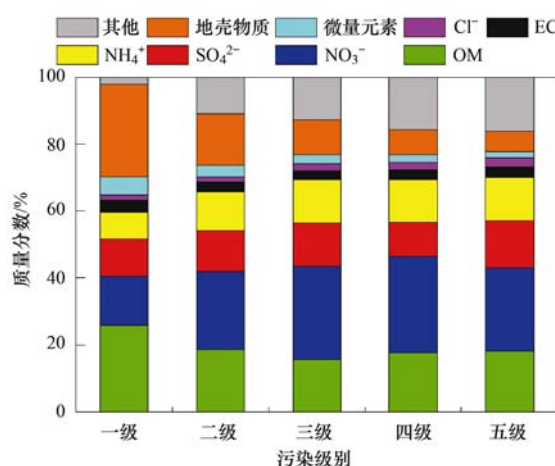


图 4 不同污染级别下 PM<sub>2.5</sub> 组分重构

Fig. 4 Reconstruction results of PM<sub>2.5</sub> components at different pollution levels

主,轨迹较短. 从季节上看,春季西北气流较为突出,所占比例约为 46.7%,西北部的气团较为清洁,对北京市空气质量的改善有一定作用,但气团较为干燥,也容易带来沙尘颗粒;南部和东部气流约占 26.6% 和 26.7%,途经邯郸、保定、天津和唐山等地,这些地区工业分布较为密集,燃煤消耗量较大<sup>[45]</sup>,易带来污染气团. 夏季受温带季风性气候影响,以东部和南部气流为主,占比达到 68.6%,来自东部的气团途经渤海和天津等地,含水丰富,使得夏季湿沉降作用明显,对污染物的去除有一定贡献. 秋季则以南部气流贡献最为突出,约占 42.8%,途经南部高污染区,其携带的污染物易在北京市累积,形成重污染天气,为主要的传输通道. 冬季偏北气流约占 55.1%,扩散条件相对有利,这一定程度上降低了冬季重污染天气发生的频率.

#### 2.4.2 潜在源区分析

为了解 2019 年北京市 PM<sub>2.5</sub> 的潜在源区分布及相对贡献,本研究利用 PSCF 模式进行了估算,结果如图 6 所示. 从区域上看,WPSCF 的高值区域主要分布在河北的中部、南部和东部,河南北部,山东北部及天津市等地,其中河北中部和南部地区 4 个季节 WPSCF 值均较高,相对贡献最大. 从不同季节上看,春、秋和冬季 WPSCF 高值分布区域相似,以河北中部和南部等地区为主要潜在源区. 其中春季 PM<sub>2.5</sub> 潜在源区分布广,秋季和冬季较为集中,而冬季虽以西北方向气团为主,但南部和东南部来向的气流途经工业较为密集、燃煤消耗量大的区域,对北京市冬季 PM<sub>2.5</sub> 浓度的贡献较为显著. 夏季受东南部气流影响,以东南方向上的天津和山东北部等地为 PM<sub>2.5</sub> 主要的潜在源区.

从 SNA 的潜在源区贡献因子分布来看,NO<sub>3</sub><sup>-</sup>

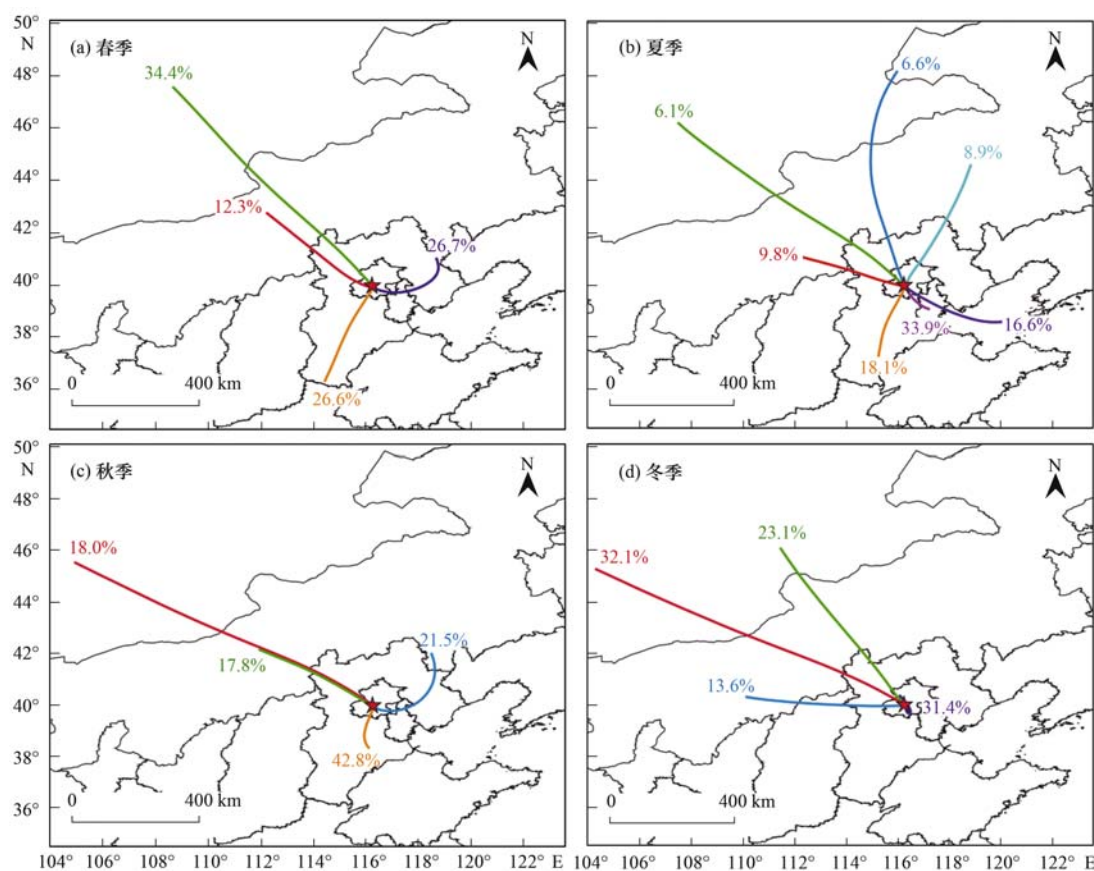


图5 不同季节后向轨迹聚类结果

Fig. 5 Back trajectory clusters in different seasons

和  $\text{NH}_4^+$  的 WPSCF 高值区域分布与  $\text{PM}_{2.5}$  基本一致, 而  $\text{SO}_4^{2-}$  则略有不同. 春季  $\text{SO}_4^{2-}$  最主要的潜在源区分布在山东与河北交界一带, 与  $\text{NO}_3^-$  和  $\text{NH}_4^+$  的潜在源区地理位置相比更偏东; 夏季和秋季  $\text{SO}_4^{2-}$  高值区域相对距离较远且高值浓度偏低; 而冬季  $\text{SO}_4^{2-}$  的 WPSCF 高值区域主要集中在东部和东南部, 分布范围更广且距离北京市较近. 因此, 如果冬季出现偏东偏南风, 区域的燃煤源高排放区域极易在较短时间内向北京市汇集.

## 2.5 $\text{PM}_{2.5}$ 来源解析

基于 PMF 分析确定 6 类主要因子, 依据成分谱和贡献率识别各类污染源, 如图 7 所示. 因子 1 对二次无机离子  $\text{NO}_3^-$  和  $\text{NH}_4^+$  有显著贡献, 为二次硝酸盐. 因子 2 以二次无机离子  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$  和 OC 为主, 为二次硫酸盐 + 二次有机物. 因子 3 对  $\text{Cl}^-$  和  $\text{NO}_x$  贡献突出, 同时对 K、Hg 和 Pb 等一些无机元素也有一定贡献, 通常  $\text{Cl}^-$  一般认为是燃煤的特征组分<sup>[46]</sup>, 且燃煤也是 Hg 和 Pb 的主要来源<sup>[47]</sup>, 此外生物质燃烧也以 K 和 Cl 为典型排放特征<sup>[48]</sup>, 可确认该因子为燃煤源和生物质燃烧源. 因子 4 主要包括 OC、EC 和 Cu、Fe、Ba、Mn 等无机元素, 且为  $\text{NO}_x$  最大贡献源, Cu 为机动车润滑油的主要添加

剂, 而 Ba 和 Mn 也广泛地用于刹车片和轮胎中<sup>[49]</sup>, 且该源具有明显的不完全燃烧特征, 可认为因子 4 为机动车源. 因子 5 为工业源, 其贡献率较大的组分为 Zn、Mn、Hg、Pb、Fe 和 Cu 等金属元素, 同时对硫酸盐和  $\text{NO}_x$  也有一定贡献, 主要来自于与金属加工相关的工业源排放. 因子 6 为扬尘源, 特征元素为  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、Si 和 Fe 等地壳组分及金属元素.

2019 年, 北京城区  $\text{PM}_{2.5}$  的来源组成如图 8 所示. 从全年上看,  $\text{PM}_{2.5}$  的来源以二次源为主, 总贡献率达到 63%; 一次源中以机动车源为最主要来源. 各类源占比从大到小依次为: 二次硝酸盐、二次硫酸盐 + 二次有机物、机动车源、扬尘源、工业源和燃煤 + 生物质源, 贡献率分别为 39%、25%、17%、7%、7% 和 5%. 二次来源是机动车、工业、燃煤等一次源排放的污染物通过化学反应生成的, 其占比较高. 一次来源中, 机动车源是最主要来源, 而燃煤 + 生物质燃烧源贡献最低, 工业源贡献也处于较低水平, 反映出近年来北京市燃煤清洁能源改造和“散乱污”企业整治等措施起到明显效果<sup>[50]</sup>, 而机动车源的贡献逐渐凸显. 此外, 由于监测原理限制, 扬尘典型示踪组分 Si 和 Al 测量准确度偏低, 且 Al 未纳入模型计算, 扬尘源存在低估可能. 从季节上看,  $\text{PM}_{2.5}$  的来源季节变化也较为显著. 4 个季节中, 二

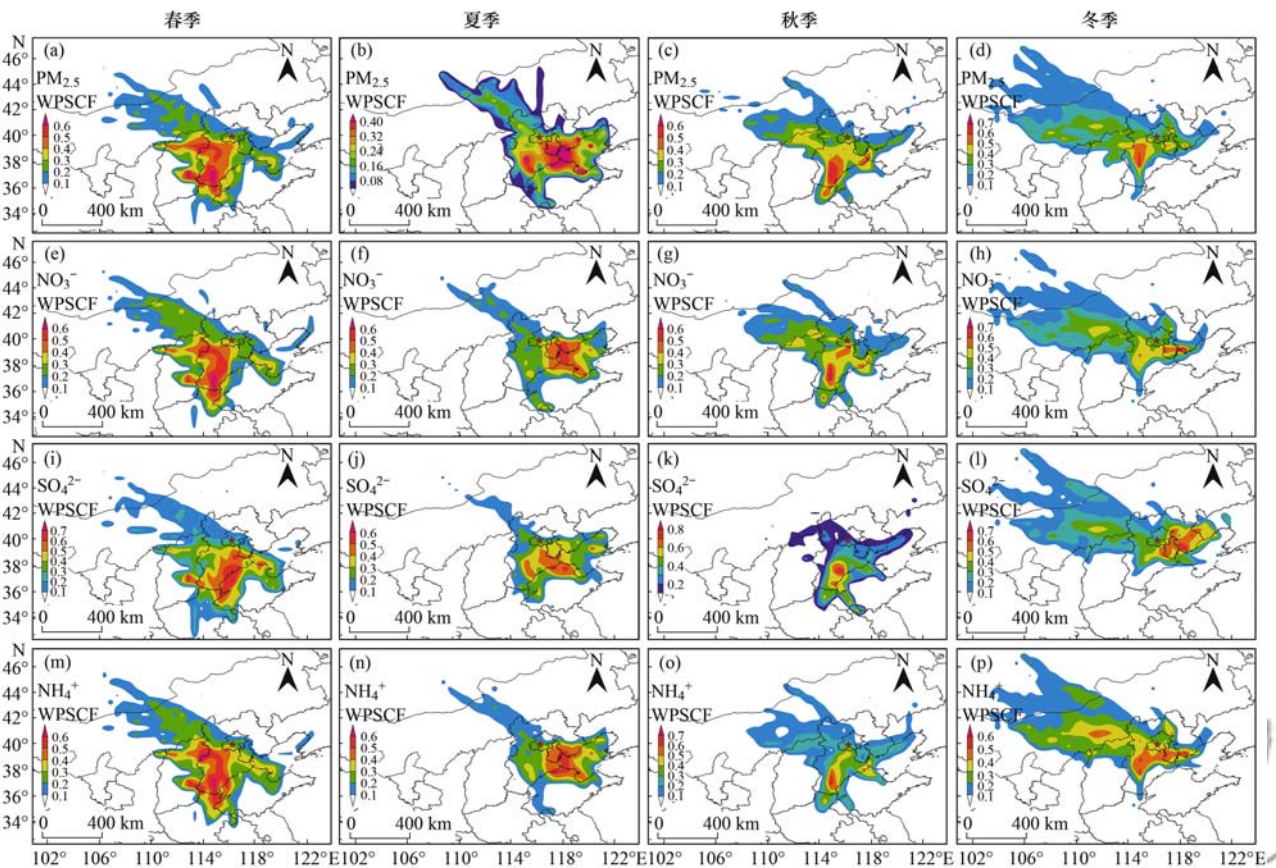


图 6 不同季节  $PM_{2.5}$  及 SNA 潜在源区贡献因子分布

Fig. 6 Regional distribution of WPSCF for  $PM_{2.5}$  and SNA in different seasons

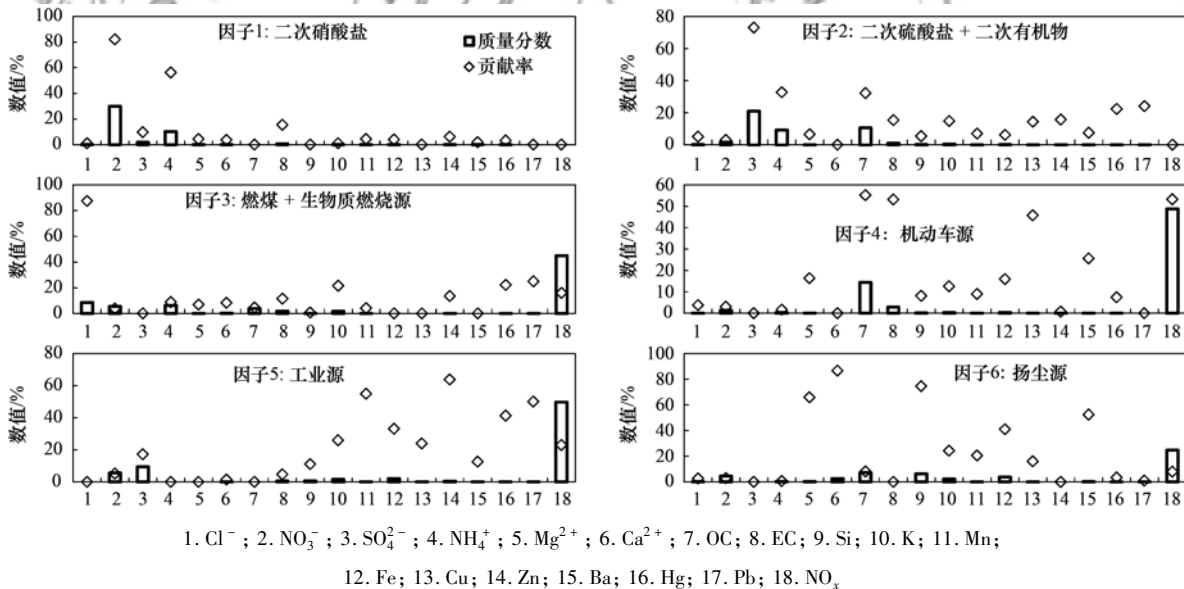
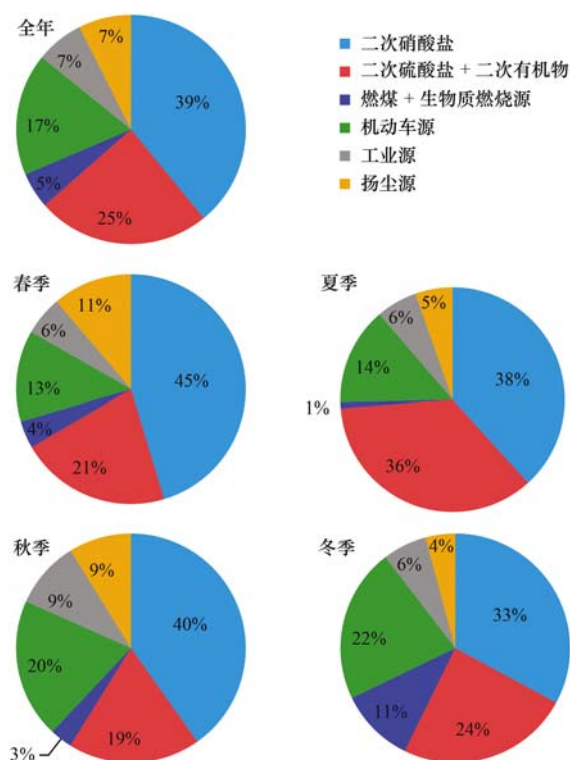


图 7 PMF 解析的因子谱及因子贡献

Fig. 7 Profiles and contributions of the factors resolved by PMF model

次硝酸盐均为首要来源,其中春秋季节二次硝酸盐贡献高达 45% 和 40%,高于冬夏季的 33% 和 38%. 而夏季处于高温、光化学反应活跃期,二次硫酸盐 + 二次有机物源的相对贡献最高,达到 36%,绝对贡献与冬季相当. 机动车源在秋冬季贡献率略高于春夏,机动车源排放强度相对稳定,但其属于低层污染

源,秋冬季逆温等不利气象条件出现相对频繁,易造成局地机动车排放的  $PM_{2.5}$  积累. 春季为风沙季,扬尘源贡献率为 11%,达到全年最高,此外 2019 年秋季也发生多次沙尘过程,导致秋季扬尘源贡献也达到 9%. 冬季采暖期燃煤 + 生物质燃烧源贡献量明显高于非采暖期,贡献率为 11%,但绝对贡献量和

图8 全年和各季节 PM<sub>2.5</sub> 主要来源贡献率Fig. 8 Annual and seasonal average source contributions to PM<sub>2.5</sub>

相对贡献率已显著低于以往研究水平。

### 3 结论

(1) 2019 年,北京城区  $\rho(\text{PM}_{2.5})$  为  $46.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,  $\rho(\text{OM})$ 、 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 、 $\rho(\text{SO}_4^{2-})$ 、 $\rho(\text{NH}_4^+)$ 、 $\rho(\text{EC})$ 、 $\rho(\text{Cl}^-)$ 、 $\rho(\text{微量元素})$  和  $\rho(\text{地壳物质})$  分别为 9.1、11.1、5.7、5.4、1.4、0.9、1.6 和  $7.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。PM<sub>2.5</sub> 中 SNA 年均质量分数为 47.4%,具有较强的二次污染特征;TCA 浓度远低于此前的研究结果,体现出一氧化碳燃烧源排放降低明显。

(2) 北京城区 PM<sub>2.5</sub> 浓度呈现冬春高、秋夏低的季节分布特征,全年 SNA 对 PM<sub>2.5</sub> 均有重要贡献。NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 为春、夏、秋季最主要组分,TCA 在冬季浓度最高。从各组分日变化上看,在冬季各组分日变化曲线均呈单峰分布特征,峰值出现在凌晨前后,谷值出现在午后;其他三季 OM 日变化曲线特征较相似呈双峰型分布,NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 在春夏季(06:00~09:00)浓度突出,SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、EC 和 Cl<sup>-</sup> 日变化幅度较小。一级天气时 PM<sub>2.5</sub> 的一次污染特征较突出。随着污染等级增加,二次污染特征逐渐加强,SNA 质量分数为 50% 以上。五级重度污染时,SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 和 Cl<sup>-</sup> 质量分数升高,北京城区在二次污染凸显的同时,区域燃煤源贡献也明显上升。

(3) 后向轨迹聚类分析结果显示,春季和冬季偏北气团相对较多,而夏季和秋季分别以东部和南

部气团输送为主。通过潜在源区分析发现,河北中南部地区为主要的潜在源区,相对贡献最大;其中冬季 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 的高值区域主要集中在东部和东南部,分布范围更广且距离北京市较近。

(4) 基于 PMF 的源解析结果表明,2019 年北京城区 PM<sub>2.5</sub> 的来源中二次源是最主要来源,总贡献率达 63%。4 个季节中,二次硝酸盐均为首要污染来源,此外,春季扬尘源贡献率达到 11%,夏季二次硫酸盐和二次有机物贡献率达全年最高为 36%,冬季采暖期燃煤和生物质燃烧源贡献量明显高于非采暖期,贡献率为 11%。

### 参考文献:

- [1] 王金南,雷宇,宁森.改善空气质量的中国模式:“大气十条”实施与评价[J].环境保护,2018,46(2):7-11.  
Wang J N, Lei Y, Ning M. Chinese model for improving air quality: An assessment of action plan of air pollution prevention and control[J]. Environmental Protection, 2018, 46(2): 7-11.
- [2] 王文兴,柴发合,任阵海,等.新中国成立70年来我国大气污染防治历程、成就与经验[J].环境科学研究,2019,32(10):1621-1635.  
Wang W X, Chai F H, Ren Z H, et al. Process, achievements and experience of air pollution control in China since the founding of the People's Republic of China 70 years ago[J]. Research of Environmental Sciences, 2019, 32(10): 1621-1635.
- [3] 刀谓,吉东生,张显,等.京津冀及周边地区采暖季 PM<sub>2.5</sub> 化学组分变化特征[J].环境科学研究,2021,34(1):1-10.  
Dao X, Ji D S, Zhang X, et al. Characteristics of chemical composition of PM<sub>2.5</sub> in Beijing-Tianjin-Hebei and its surrounding areas during the heating period[J]. Research of Environmental Sciences, 2021, 34(1): 1-10.
- [4] 生态环境部.生态环境部发布《中国空气质量改善报告(2013-2018年)》[EB/OL].(2019-06-06).http://www.gov.cn/xinwen/2019-06/06/content\_5397950.htm.
- [5] 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.
- [6] 肖致美,徐虹,李立伟,等.基于在线观测的天津市 PM<sub>2.5</sub> 污染特征及来源解析[J].环境科学,2020,41(10):4355-4363.  
Xiao Z M, Xu H, Li L W, et al. Characterization and source apportionment of PM<sub>2.5</sub> based on the online observation in Tianjin[J]. Environmental Science, 2020, 41(10): 4355-4363.
- [7] 周静博,段青春,王建国,等.2019年元旦前后石家庄市重污染过程 PM<sub>2.5</sub> 污染特征及来源解析[J].环境科学,2020,41(1):39-49.  
Zhou J B, Duan J C, Wang J G, et al. Analysis of pollution characteristics and sources of PM<sub>2.5</sub> during heavy pollution in Shijiazhuang city around New Year's Day 2019[J]. Environmental Science, 2020, 41(1): 39-49.
- [8] Zamora M L, Peng J F, Hu M, et al. Wintertime aerosol properties in Beijing[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, 19(22): 14329-14338.
- [9] Li J, Du H Y, Wang Z F, et al. Rapid formation of a severe regional winter haze episode over a mega-city cluster on the North

- China Plain [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **223**: 605-615.
- [10] Liu B S, Yang J M, Yuan J, *et al.* Source apportionment of atmospheric pollutants based on the online data by using PMF and ME2 models at a megacity, China [J]. *Atmospheric Research*, 2017, **185**: 22-31.
- [11] 李欢, 唐贵谦, 张军科, 等. 2017-2018 年北京大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性无机离子特征 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(10): 4364-4373.
- Li H, Tang G Q, Zhang J K, *et al.* Characteristics of water-soluble inorganic ions in PM<sub>2.5</sub> in Beijing during 2017-2018 [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(10): 4364-4373.
- [12] 安欣欣, 张大伟, 冯鹏, 等. 北京城区夏季 PM<sub>2.5</sub> 中碳组分和二次水溶性无机离子浓度特征 [J]. *环境化学*, 2016, **35**(4): 713-720.
- An X X, Zhang D W, Feng P, *et al.* Characteristics of carbon components and secondary water-soluble inorganic ions in PM<sub>2.5</sub> in summer in urban Beijing [J]. *Environmental Chemistry*, 2016, **35**(4): 713-720.
- [13] 尹晓梅, 乔林, 朱晓婉, 等. 北京地区偏南风 and 偏东风条件下污染特征差异 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(11): 4844-4854.
- Yin X M, Qiao L, Zhu X W, *et al.* Differences in pollution characteristics under the southerly and easterly wind in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(11): 4844-4854.
- [14] 徐冉, 张恒德, 杨孝文, 等. 北京地区秋冬季大气污染特征及成因分析 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(8): 3405-3414.
- Xu R, Zhang H D, Yang X W, *et al.* Concentration characteristics of PM<sub>2.5</sub> and the causes of heavy air pollution events in Beijing during autumn and winter [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(8): 3405-3414.
- [15] 徐楠, 王甜甜, 李晓, 等. 北京冬季 PM<sub>2.5</sub> 中有机气溶胶的化学特征和来源解析 [J]. *环境科学*, 2021, **42**(5): 2101-2109.
- Xu N, Wang T T, Li X, *et al.* Chemical characteristics and source apportionment of organic aerosols in atmospheric PM<sub>2.5</sub> in Winter in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(5): 2101-2109.
- [16] 王琴, 张大伟, 刘保献, 等. 基于 PMF 模型的北京市 PM<sub>2.5</sub> 来源的时空分布特征 [J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(10): 2917-2924.
- Wang Q, Zhang D W, Liu B X, *et al.* Spatial and temporal variations of ambient PM<sub>2.5</sub> source contributions using positive matrix factorization [J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(10): 2917-2924.
- [17] 曹云擎, 王体健, 韩军彩, 等. “2+26” 城市一次污染过程 PM<sub>2.5</sub> 化学组分和来源解析研究 [J]. *环境科学学报*, 2020, **40**(2): 361-372.
- Cao Y Q, Wang T J, Han J C, *et al.* Study on chemical composition and source apportionment of PM<sub>2.5</sub> during a pollution episode in “2+26” cities [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2020, **40**(2): 361-372.
- [18] Stein A F, Draxler R R, Rolph G D, *et al.* NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system [J]. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 2015, **96**(12): 2059-2077.
- [19] 杜朋, 李德平, 刘建国, 等. APEC 前后北京郊区大气颗粒物变化特征及其潜在源区分析 [J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(10): 3846-3855.
- Du P, Li D P, Liu J G, *et al.* Pollution characteristics and potential source region analysis of atmospheric particulate matter during 2014 APEC in Beijing Suburban [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(10): 3846-3855.
- [20] 王郭臣, 王东启, 陈振楼. 北京冬季严重污染过程的 PM<sub>2.5</sub> 污染特征和输送路径及潜在源区 [J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(7): 1931-1937.
- Wang G C, Wang D Q, Chen Z L. Characteristics and transportation pathways and potential sources of a severe PM<sub>2.5</sub> episodes during winter in Beijing [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(7): 1931-1937.
- [21] Polissar A V, Hopke P K, Paatero P, *et al.* The aerosol at Barrow, Alaska: long-term trends and source locations [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(16): 2441-2458.
- [22] Wang Y Q. MeteoInfo: GIS software for meteorological data visualization and analysis [J]. *Meteorological Applications*, 2014, **21**(2): 360-368.
- [23] Wang Q Q, Qiao L P, Zhou M, *et al.* Source apportionment of PM<sub>2.5</sub> using hourly measurements of elemental tracers and major constituents in an urban environment: investigation of time-resolution influence [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2018, **123**(10): 5284-5300.
- [24] 元洁, 刘保双, 程渊, 等. 2017 年 1 月天津市 PM<sub>2.5</sub> 化学组分特征及高时间分辨率来源解析研究 [J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(3): 1090-1101.
- Yuan J, Liu B S, Cheng Y, *et al.* Study on characteristics of PM<sub>2.5</sub> and chemical components and source apportionment of high temporal resolution in January 2017 in Tianjin urban area [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(3): 1090-1101.
- [25] 王晓浩, 赵倩彪, 崔虎雄. 基于在线监测的上海郊区冬季 PM<sub>2.5</sub> 来源解析 [J]. *南京大学学报(自然科学)*, 2015, **51**(3): 517-523.
- Wang X H, Zhao Q B, Cui H X. PM<sub>2.5</sub> source apportionment at suburb of Shanghai in winter based on real time monitoring [J]. *Journal of Nanjing University (Natural Sciences)*, 2015, **51**(3): 517-523.
- [26] Gao J, Peng X, Chen G, *et al.* Insights into the chemical characterization and sources of PM<sub>2.5</sub> in Beijing at a 1-h time resolution [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **542**: 162-171.
- [27] 丁萌萌, 周健楠, 刘保献, 等. 2015 年北京城区大气 PM<sub>2.5</sub> 中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 及前体气体的污染特征 [J]. *环境科学*, 2017, **38**(4): 1307-1316.
- Ding M M, Zhou J N, Liu B X, *et al.* Pollution characteristics of NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> in PM<sub>2.5</sub> and their precursor gases during 2015 in an urban area of Beijing [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(4): 1307-1316.
- [28] 贾佳, 韩力慧, 程水源, 等. 京津冀区域 PM<sub>2.5</sub> 及二次无机组分污染特征研究 [J]. *中国环境科学*, 2018, **38**(3): 801-811.
- Jia J, Han L H, Cheng S Y, *et al.* Pollution characteristic of PM<sub>2.5</sub> and secondary inorganic ions in Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. *China Environmental Science*, 2018, **38**(3): 801-811.
- [29] 刘军, 陆晓波, 陈新星, 等. 南京市城区 PM<sub>2.5</sub> 中化学组分演变特征 [J]. *环境监控与预警*, 2020, **12**(4): 40-44.
- Liu J, Lu X B, Chen X X, *et al.* Study on the Evolution characteristics of chemical components in PM<sub>2.5</sub> in urban area of Nanjing [J]. *Environmental Monitoring and Forewarning*, 2020, **12**(4): 40-44.
- [30] 刘叶新, 陈伟华, 王雪梅, 等. 广州 PM<sub>2.5</sub> 化学组分特征及其与气象因子的关系 [J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(1): 53-63.
- Liu Y X, Chen W H, Wang X M, *et al.* Chemical composition of

- PM<sub>2.5</sub> and its relations with meteorological factors in Guangzhou [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(1): 53-63.
- [31] 江家豪, 彭杏, 朱波, 等. 深圳大气 PM<sub>2.5</sub> 化学组成的长期变化特征[J]. *中国环境科学*, 2021, **41**(2): 574-579.
- Jiang J H, Peng X, Zhu B, *et al.* Long-term variational characteristics of the chemical composition of PM<sub>2.5</sub> in Shenzhen [J]. *China Environmental Science*, 2021, **41**(2): 574-579.
- [32] 李立伟, 肖致美, 陈魁, 等. 京津冀区域 PM<sub>2.5</sub> 中碳组分污染特征研究[J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(4): 1306-1316.
- Li L W, Xiao Z M, Chen K, *et al.* Characteristics of carbonaceous species of PM<sub>2.5</sub> in the region of Beijing, Tianjin and Hebei, China[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(4): 1306-1316.
- [33] 张俊峰, 韩力慧, 程水源, 等. 京津冀地区典型城市大气细颗粒物碳质组分污染特征及来源[J]. *环境科学研究*, 2020, **33**(8): 1729-1739.
- Zhang J F, Han L H, Cheng S Y, *et al.* Characteristics and sources of carbon pollution of fine particulate matter in typical cities in Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2020, **33**(8): 1729-1739.
- [34] 刘保献, 杨懂艳, 张大伟, 等. 北京城区大气 PM<sub>2.5</sub> 主要化学组分构成研究[J]. *环境科学*, 2015, **36**(7): 2346-2352.
- Liu B X, Yang D Y, Zhang D W, *et al.* Chemical species of PM<sub>2.5</sub> in the urban area of Beijing[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(7): 2346-2352.
- [35] Castro L M, Pio C A, Harrison R M, *et al.* Carbonaceous aerosol in urban and rural European atmospheres: estimation of secondary organic carbon concentrations [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(17): 2771-2781.
- [36] Ohta S, Okita T. A chemical characterization of atmospheric aerosol in Sapporo [J]. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1990, **24**(4): 815-822.
- [37] 孙有昌, 姜楠, 王申博, 等. 安阳市大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子季节特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2020, **41**(1): 75-81.
- Sun Y C, Jiang N, Wang S B, *et al.* Seasonal characteristics and source analysis of water-soluble ions in PM<sub>2.5</sub> of Anyang city [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(1): 75-81.
- [38] Dai Q L, Bi X H, Liu B S, *et al.* Chemical nature of PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> in Xi'an, China: Insights into primary emissions and secondary particle formation[J]. *Environmental Pollution*, 2018, **240**: 155-166.
- [39] 刘保献, 张大伟, 陈添, 等. 北京市 PM<sub>2.5</sub> 主要化学组分浓度水平研究与特征分析[J]. *环境科学学报*, 2015, **35**(12): 4053-4060.
- Liu B X, Zhang D W, Chen T, *et al.* Characteristics and major chemical compositions of PM<sub>2.5</sub> in Beijing [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, **35**(12): 4053-4060.
- [40] Liu B S, Song N, Dai Q L, *et al.* Chemical composition and source apportionment of ambient PM<sub>2.5</sub> during the non-heating period in Taian, China[J]. *Atmospheric Research*, 2016, **170**: 23-33.
- [41] Hu W, Hu M, Hu W W, *et al.* Seasonal variations in high time-resolved chemical compositions, sources, and evolution of atmospheric submicron aerosols in the megacity Beijing [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(16): 9979-10000.
- [42] Zhu W F, Zhou M, Cheng Z, *et al.* Seasonal variation of aerosol compositions in Shanghai, China: Insights from particle aerosol mass spectrometer observations [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, **771**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.144948.
- [43] Cui Y, Cao W, Ji D S, *et al.* Estimated contribution of vehicular emissions to carbonaceous aerosols in urban Beijing, China[J]. *Atmospheric Research*, 2021, **248**, doi: 10.1016/j.atmosres.2020.105153.
- [44] 曹阳, 安欣欣, 刘保献, 等. 北京市黑碳气溶胶浓度特征及其主要影响因素 [J]. *环境科学*, 2021, **42**(12): 5633-5643.
- Cao Y, An X X, Liu B X, *et al.* Characteristics and main influencing factors of black carbon aerosol in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(12): 5633-5643.
- [45] 伯鑫, 赵春丽, 吴铁, 等. 京津冀地区钢铁行业高时空分辨率排放清单方法研究[J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(8): 2554-2560.
- Bo X, Zhao C L, Wu T, *et al.* Emission inventory with high temporal and spatial resolution of steel industry in the Beijing-Tianjin-Hebei Region [J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(8): 2554-2560.
- [46] Duan F K, He K B, Ma Y L, *et al.* Concentration and chemical characteristics of PM<sub>2.5</sub> in Beijing, China: 2001-2002 [J]. *Science of the Total Environment*, 2006, **355**(1-3): 264-275.
- [47] 王树民, 白孝轩, 宋畅, 等. 燃煤电厂大气汞及其他痕量元素排放标准研究[J]. *中国环境科学*, 2021, **41**(4): 1949-1958.
- Wang S M, Bai X X, Song C, *et al.* Study of atmospheric trace elements emission standards for coal-fired power plants in China [J]. *China Environmental Science*, 2021, **41**(4): 1949-1958.
- [48] Bi X H, Dai Q L, Wu J H, *et al.* Characteristics of the main primary source profiles of particulate matter across China from 1987 to 2017 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, **19**(5): 3223-3243.
- [49] Yu L D, Wang G F, Zhang R J, *et al.* Characterization and source apportionment of PM<sub>2.5</sub> in an urban environment in Beijing [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2013, **13**(2): 574-583.
- [50] Li J Y, Gao W K, Cao L M, *et al.* Significant changes in autumn and winter aerosol composition and sources in Beijing from 2012 to 2018: effects of clean air actions [J]. *Environmental Pollution*, 2021, **268**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.115855.

## CONTENTS

|                                                                                                                                                                                                               |                                                                    |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------|
| Chemical Characteristics and Source Apportionment of PM <sub>2.5</sub> in Urban Area of Beijing .....                                                                                                         | AN Xin-xin, CAO Yang, WANG Qin, <i>et al.</i> (2251)               |
| Modeling of PM <sub>2.5</sub> Concentrations in the Beijing-Tianjin-Hebei Region Using a Space-time Linear Mixed Effects Model .....                                                                          | FAN Li-hang, YANG Xiao-hui, SONG Chun-jie, <i>et al.</i> (2262)    |
| Spatio-temporal Evolution Patterns of PM <sub>2.5</sub> and Relationship with Urban Expansion in Beijing-Tianjin-Hebei Urban Agglomeration from 2000 to 2018 .....                                            | ZHAO An-zhou, XIANG Kai-zheng, LIU Xian-feng, <i>et al.</i> (2274) |
| Characteristics and Source Analysis of PM <sub>2.5</sub> in Qingdao in Winter Under the Action of Sea-Land-Atmosphere Convergence .....                                                                       | TUO Xiong, YANG Ling-xiao, ZHANG Wan, <i>et al.</i> (2284)         |
| Impacts of Heterogeneous Uptake Pathway on Sulfate Formation: A Case Study in Shanghai Based on WRF-Chem .....                                                                                                | ZHANG Ru-han, ZHANG Hao-ran, FENG Wei-hang, <i>et al.</i> (2294)   |
| Source Apportionment and Seasonal Changes in PM <sub>2.5</sub> Chemical Components from Different Functional Areas of a Provincial Capital City .....                                                         | SUN You-min, FAN Jing, XU Biao, <i>et al.</i> (2304)               |
| Chemical Compositions, Light Extinction Effect, and Oxidative Potential of PM <sub>2.5</sub> Under Different Pollution Levels During Winter in Taiyuan .....                                                  | REN Jiao, ZHAO Rong-rong, WANG Ming, <i>et al.</i> (2317)          |
| Source Apportionment and Health Risk Assessment of Metal Elements in Ambient PM <sub>2.5</sub> in the Winter of Zhengzhou .....                                                                               | YAO Sen, WANG Qian-heng, XUE Yan, <i>et al.</i> (2329)             |
| Characteristics, Ecological Risk Assessment, and Sources of the Polluted Metallic Elements in PM <sub>2.5</sub> During Winter in Zibo City .....                                                              | BAI Wen-yu, XU Bo, GUO Li-yao, <i>et al.</i> (2336)                |
| Seasonal Distribution Characteristics, Source Analysis, and Health Risk Evaluation of PAHs in PM <sub>2.5</sub> in Chengde .....                                                                              | HE Bo-wen, NIE Sai-sai, LI Yi-lin, <i>et al.</i> (2343)            |
| Pollution Level and Regional Migration of PCDD/Fs in Ambient Air from Pearl River Delta, China .....                                                                                                          | FU Jian-ping, XIE Dan-ping, HUANG Jin-qiong, <i>et al.</i> (2355)  |
| Concentrations and Sources of Black Carbon Aerosols in Rural Areas of Southern North China Plain .....                                                                                                        | ZHANG Ling, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, <i>et al.</i> (2363)       |
| Research on Causes of Severely Polluted Weather in Tianjin Based on Process Analytical Technology .....                                                                                                       | HAO Jian, CAI Zi-ying, HAN Su-qin, <i>et al.</i> (2373)            |
| Classification Control of Volatile Organic Compounds (VOCs) Emission Pollution Sources Based on Emission Amounts and Atmospheric Reactivity .....                                                             | CHEN Peng, ZHANG Yue, XING Min, <i>et al.</i> (2383)               |
| Complex Networks Reveal the Characteristics of Ozone in China .....                                                                                                                                           | YING Na, CHEN Jian-hua, LI Dong, <i>et al.</i> (2395)              |
| Ozone Simulation of Lanzhou City Based on Multi-scenario Emission Forecast of Ozone Precursors in the Summer of 2030 .....                                                                                    | CHEN Tian-lei, WU Min, PAN Cheng-ke, <i>et al.</i> (2403)          |
| Improvement of Environmental Model Prediction Based on Inversion and Aerosol Assimilation .....                                                                                                               | CAI Zi-ying, TANG Miao, XIAO Zhi-mei, <i>et al.</i> (2415)         |
| Method of Identifying Air Pollution from Iron and Steel Industry Based on Ambient Air Quality Monitoring Data Analysis .....                                                                                  | SHI Yao-peng, HU Jing-nan, CHU Yang-xi, <i>et al.</i> (2427)       |
| Assessment of "Differentiated Response Requirement Based on Performance Grading" Policy During Heavy Air Pollution Alert .....                                                                                | ZENG Jing-hai, WANG Can (2436)                                     |
| Risk Zoning of Water Pollution in the Yellow River Basin .....                                                                                                                                                | ZHOU Xia-fei, CAO Guo-zhi, YU Fang, <i>et al.</i> (2448)           |
| Emission Characteristics of Industrial Water Pollutants in Gansu Section of the Yellow River Basin .....                                                                                                      | LI Xue-ying, YANG Xi, QIAO Qi, <i>et al.</i> (2459)                |
| Spatial-temporal Distribution and Pollution Assessment of Heavy Metals in Sediments of the Yellow River .....                                                                                                 | WANG Tao-yi, PAN Bao-zhu, HAN Xu, <i>et al.</i> (2467)             |
| APCS-MLR Combined with PMF Model to Analyze the Source of Metals in Sediment of Xinglin Bay Suburban Watershed, Xiamen .....                                                                                  | SHEN Chen-yu, YAN Yu, YU Rui-lian, <i>et al.</i> (2476)            |
| Spatial Differentiation Characteristics and Response Relationship of DOM, Nutrients, and Heavy Metals in River Sediments .....                                                                                | XIAO Yan-chun, YU Hui-bin, SONG Yong-hui (2489)                    |
| Distribution Characteristics, Evaluation, and Source Analysis of Heavy Metals in Soils of Fenhe Riparian Zone in Taiyuan City .....                                                                           | HU Jie, ZHAO Xin-yu, WANG Ting-ting, <i>et al.</i> (2500)          |
| Binding Affinity Between Heavy Metal Hg and Dissolved Organic Matter in Hongze Lake .....                                                                                                                     | HU Bin, WANG Pei-fang, ZHANG Nan-nan, <i>et al.</i> (2510)         |
| Ecosystem Evolutionary Trajectory of Lake Xiliang over the Past Century Driven by Eutrophication .....                                                                                                        | ZHENG Jia-nan, XU Min, ZHENG Wen-xiu, <i>et al.</i> (2518)         |
| Sediment Release and Pollution Source Analysis of Typical Reservoirs in the Upper Reaches of the Yellow River Based on DGT Technology .....                                                                   | MA Yu-shen, ZHU Xiang, PANG Qing-qing, <i>et al.</i> (2527)        |
| Differential Characteristics and Source Identification of Water Quality of the Rivers in Northern Henan Before and After Rainstorm .....                                                                      | ZHANG Yan, ZOU Lei, LIANG Zhi-jie, <i>et al.</i> (2537)            |
| Adsorption and Interception Effects of <i>Eichhornia crassipes</i> on Microplastics in Water of the Poyang Lake Basin .....                                                                                   | LI Wen-gang, WU Xi-en, JIAN Min-fei, <i>et al.</i> (2548)          |
| Spatiotemporal Distribution and Ecological Risk Assessment of Plastic Additives in Taihu Lake .....                                                                                                           | LIU Shu-jiao, DING Jian-nan, SHI Jun-zhe, <i>et al.</i> (2557)     |
| Distribution Characteristics, Sources, and Storage of Microplastics in Surface Sediments of Luoma Lake .....                                                                                                  | YAO Ming-xuan, BAI Xue, XU Zhen-jia, <i>et al.</i> (2566)          |
| Pollution Characteristics of Phosphorus in Different Media in Taihu Lake and Its Treatment Enlightenment .....                                                                                                | CAI Mei, LU Zhi-hua, WANG Yuan-yuan, <i>et al.</i> (2575)          |
| Analysis on Diversity and Structure of Microbial Community in River Sediment of Siping Section of Liaohe River .....                                                                                          | LI Peng-yang, AN Qi-rui, WANG Xin-hao, <i>et al.</i> (2586)        |
| Non-point Source Pollution (NPSP) Induces Structural and Functional Variation in Bacterial Communities in Sediments of Jialing River .....                                                                    | XUE Yu-qin, XU Fei, LIU Kun-he, <i>et al.</i> (2595)               |
| Effects of Microplastics on Bacterial Community Composition and Diversity in Sediments .....                                                                                                                  | LI Wen-lu, WANG Zhi-chao, YANG Wen-huan, <i>et al.</i> (2606)      |
| Vertical Distribution Characteristics and Community Construction of Aerobic Denitrification Bacteria from the Sediments of Baiyangdian Lake During the Winter Freezing Period .....                           | ZHANG Tian-na, CHEN Zhao-ying, ZHANG Zi-wei, <i>et al.</i> (2614)  |
| Effect of Induced Mixing on Bacterial Community Structure and Metabolic Activity in Reservoir .....                                                                                                           | GAO Yue, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2624)              |
| Distribution Characteristics of Microplastics in <i>Bellamyia aeruginosa</i> in Typical Area of Poyang Lake .....                                                                                             | JIANG Wei-qun, HU Qi-wu, JIAN Min-fei, <i>et al.</i> (2633)        |
| Electrocatalytic Oxidation of Bisphenol A by Porous Ti/SnO <sub>2</sub> -Sb-Ni Electrode Loaded with Multi-wall Carbon Nanotubes .....                                                                        | FU Yuan-hang, LIU An-di, HUANG Wei-bin, <i>et al.</i> (2640)       |
| Efficiency and Mechanism of Degradation of Methylene Blue with H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> Catalyzed by Magnetic Mn <sub>0.4</sub> Zn <sub>0.4</sub> Fe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> @SiO <sub>2</sub> ..... | XU Dong-ying, YU Jing, HAO Qi, <i>et al.</i> (2650)                |
| Effect of Two Types of Nanoparticles on the Adsorption of Ciprofloxacin on Zeolite .....                                                                                                                      | JIANG Lan-cui, MENG Zhao-fu, LIU Xian, <i>et al.</i> (2662)        |
| Adsorption Mechanisms and Effect Factors of As(V) by AMD Sludge Composite Material .....                                                                                                                      | ZHANG Ya-hui, ZHANG Rui-xue, WU Pan, <i>et al.</i> (2673)          |
| Shifts in Microbial Community and Variation in Functional Genes for Nitrification and Denitrification in Activated Sludge Affected by Triclosan and Its Transformed Intermediates .....                       | LU Ying-yuan, DONG Xiao-qi, PENG Xing-xing, <i>et al.</i> (2685)   |
| Construction of Sustainability Evaluation Index System for Contaminated Site Risk Management and Analysis on Key Influential Factors .....                                                                    | LI Xiao-nuo, YI Shi-yi, CHEN Wei-ping (2699)                       |
| Construction and Empirical Analysis of a Comprehensive Evaluation Method of Coastal Wetland Soil Quality Based on Ecological Functions .....                                                                  | ZHANG Xue, KONG Fan-long, JIANG Zhi-xiang (2709)                   |
| Source Analysis and Pollution Assessment of Heavy Metals in Farmland Soil Around Tongshan Mining Area .....                                                                                                   | CHEN Hang, WANG Ying, WANG Shu (2719)                              |
| Effects of Typical Iron and Manganese Minerals on Arsenic Speciation and Enzyme Activities in Paddy Soil .....                                                                                                | ZHOU Yi-min, HUANG Ya-yuan, LIU Kai, <i>et al.</i> (2732)          |
| Phytoremediation Efficiency of Two Cultivars of <i>Brassica napus</i> L. Under Water-soluble Chitosan Treatment in Typical Pb-contaminated Farmland Soils .....                                               | MENG Xiao-fei, ZHENG Guo-di, CHEN Tong-bin, <i>et al.</i> (2741)   |
| Risk Prediction of Cadmium and Lead in Wheat Grains Based on Bayes Theorem .....                                                                                                                              | WANG Tian-qi, LI Yan-ling, YANG Yang, <i>et al.</i> (2751)         |
| Interannual Variation Characteristics of Nitrogen Loss Under Rapeseed/Maize Rotation in Purple Soil Sloping Field .....                                                                                       | XU Man, GAO Ming, YU Luo, <i>et al.</i> (2758)                     |
| Physicochemical Properties of Biochars Prepared from Different Feedstocks and Evaluation of Its Potential as A Slow-release Carriers for Biochar-based Fertilizers .....                                      | XING Li-bin, CHENG Jie, GENG Zeng-chao, <i>et al.</i> (2770)       |
| Effects of Combined Application of Wood Vinegar-Acidified Biochar and Nitrogen on Active Nitrogen and Ammonia Volatilization in Saline Soil .....                                                             | SHEN Shu-wei, ZHANG Dan-dan, WANG Min-ge, <i>et al.</i> (2779)     |
| Effects of Biodegradable Plastic Film Mulching on Greenhouse Gas Emissions Under Wheat-Maize Rotation System in the Guanzhong Plain .....                                                                     | GUO Yi-ting, LUO Xiao-qi, WANG Rui, <i>et al.</i> (2788)           |
| Forest Soil Microbial Community Structure Characteristics and Its Influencing Factors at Different Elevations on the Southern Slope of Daiyun Mountain .....                                                  | HE Zhong-sheng, WANG Zi-wei, ZHU Jing, <i>et al.</i> (2802)        |
| Effects of Simulated Warming and Increased Precipitation on Soil Extracellular Enzyme Activity and Enzymatic Stoichiometry of Abandoned Grassland .....                                                       | WANG Xing, ZHONG Ze-kun, JIAN Jun-nan, <i>et al.</i> (2812)        |
| Contribution of Urbanization to Local Warming in Major Cities of China .....                                                                                                                                  | LI Yu, ZHOU De-cheng, YAN Zhang-mei, <i>et al.</i> (2822)          |