生态环境知识网
Eco-Environmental Knowledge Web

环境科学
ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征

陈其永，郜允兵，倪润祥，潘瑜春，阎跃观，杨晶，刘孝阳，顾晓鹤

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社

双奖期刊

2022年9月
第43卷 第9期
Vol.43 No.9

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第43卷 第9期
2022年9月15日

目 次

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征 …… 陈其永, 郜允兵, 倪润祥, 潘瑜春, 阎跃观, 杨晶, 刘孝阳, 顾晓鹤(4413)
面向二/三维城市形态指标的$PM_{2.5}$浓度调控模拟 …… 李莎, 邹滨, 刘宁, 冯徽徽, 陈军, 张鸿辉(4425)
减排背景下成都大气$PM_{2.5}$碳质组分特征 …… 陈璐瑶, 于阳春, 黄小娟, 董贵明, 张军科(4438)
青岛秋冬季PM_1中金属元素污染特征及健康风险评估 …… 刘子杨, 张宜升, 张厚勇, 马子轸, 陶文鑫, 王娇, 薛莲, 彭倩倩, 杜金花, 赵娇娇, 彭亮, 孙英杰(4448)
港口地区大气$PM_{2.5}$中多环芳烃污染特征及来源分析 …… 王鹏程, 杨凌霄, 别淑君, 黄琦, 齐安安, 庹雄, 王浥铭, 徐鹏, 张天琪, 王文兴(4458)
天津市冬季道路颗粒物粒径分布及来源解析 …… 张国涛, 殷宝辉, 白雯宇, 郭丽瑶, 王智宇, 张楠, 郑镇森, 张利文, 杨文, 韩斌, 白志鹏(4467)
北京市生物源一次气溶胶数浓度变化特征及影响因素 …… 梁林林, 刘畅, 刘旭艳, 徐婉筠, 张根, 程红兵, 刘雨思(4475)
北京市城区夏季VOCs变化特征分析与来源解析 …… 孟祥来, 孙扬, 廖婷婷, 张琛, 张成影(4484)
东莞工业集中区夏季臭氧污染与非污染期间VOCs组分特征及其来源 …… 周振, 肖林海, 费蕾蕾, 余纬, 林满, 黄筠钧, 张智胜, 陶俊(4497)
生活垃圾填埋场恶臭污染的时空变化与膜阻隔效果 …… 何品晶, 李健晨, 吕凡, 章骅, 邵立明(4506)
不同年份太湖水域全氟化合物健康风险源解析对比 …… 武婷, 孙善伟, 樊境朴, 鲁富蕾, 郭昌胜, 徐建(4513)
沱江流域典型及新兴全氟/多氟化合物的污染特征及来源解析 …… 宋娇娇, 汪艺梅, 孙静, 方淑红(4522)
白洋淀不同类型水体表层沉积物重金属的赋存形态及风险 …… 许梦雅, 张超, 单保庆, 刘操(4532)
喹诺酮类抗生素在城市典型水环境中的分配系数及其主要环境影响因子 …… 剧泽佳, 付雨, 赵鑫宇, 陈慧, 宋圆梦, 赵波, 张纪媛, 卢梦淇, 崔建升, 张璐璐(4543)
石家庄地下水中喹诺酮类抗生素生态风险及其与环境因子的相关性 …… 陈慧, 剧泽佳, 赵鑫宇, 付雨, 崔建升, 张璐璐(4556)
不同淹水环境下湖泊沉积物DOM的特征与来源 …… 陈佳, 李忠武, 金昌盛, 文佳骏, 聂小东, 王磊(4566)
晋城市沁河流域秋季浮游植物群落结构特征及其与环境因子的关系 …… 高梦蝶, 李艳粉, 李艳利, 孙昂, 田爽, 张春晖, 耿亚平, 李林霞(4576)
不同配置绿色屋顶径流水质特征及综合评价 …… 章孙逊, 张守红, 闫婧, 王任重远, 杨航(4587)
紫外活化过硫酸盐降解磷酸氯喹 …… 李阳, 许玻琿, 邓琳, 罗伟(4597)
微气泡臭氧化预处理实际制药废水去除SS和有机物性能 …… 刘春, 陈蕊, 张静, 杨旭, 陈晓轩, 郭延凯, 武明泽, 庞勃(4608)
废水排放对近海环境中抗生素抗性基因和微生物群落的影响 …… 陈嘉瑜, 苏志国, 姚鹏城, 黄备, 张永明, 温东辉(4616)
生物炭和秸秆还田对微咸水滴灌棉田土壤真菌群落结构多样性的影响 …… 郭晓雯, 陈静, 鲁晓宇, 李远, 陶一凡, 闵伟(4625)
有机物料投入对喀斯特地区土壤磷素赋存形态与含*phoD*基因细菌群落的影响 …… 夏鑫, 乔航, 孙琪, 刘坤平, 陈香碧, 何寻阳, 胡亚军, 苏以荣(4636)
煤矿矿区复垦植被类型对土壤微生物功能基因和酶活的影响 …… 宁岳伟, 刘勇, 张红, 李君剑(4647)
生物炭施用对黄壤土壤养分及酶活性的影响 …… 袁访, 李开钰, 杨慧, 邓承佳, 梁红, 宋理洪(4655)
黄河源区斑块化退化高寒草甸土壤细菌群落多样性变化 …… 孙华方, 李希来, 金立群, 赵玉蓉, 李成一, 张静, 宋梓涵, 苏晓雪, 刘凯(4662)
模拟氮沉降对三江平原小叶章湿地土壤微生物碳源利用能力的影响 …… 翁晓虹, 隋心, 李梦莎, 刘赢男, 张荣涛, 杨立宾(4674)
石家庄市土壤中喹诺酮类抗生素空间分布特征及其与微生物群落相关性 …… 赵鑫宇, 剧泽佳, 陈慧, 付雨, 宋圆梦, 赵波, 张纪媛, 卢梦淇, 崔建升, 张璐璐(4684)
典型氧化还原环境中微塑料表面的微生物群落组成特征与构建机制 …… 龚志伟, 马杰, 苏超, 林亚楠, 董鑫磊, 周立昌, 王宗平, 郭刚(4697)
作物秸秆材料处理养殖废水中氮的周年去除效果及其对氮循环微生物丰度的影响 …… 刘铭羽, 夏梦华, 蒋磊, 彭健, 陈坤, 赵聪芳, 李希, 孟岑, 曾睿, 王栋, 李裕元, 吴金水(4706)
不同外碳源对尾水极限脱氮性能及微生物群落结构的影响 …… 王伟, 赵中原, 张鑫, 由志鹏, 黄子晋, 彭永臻(4717)
总氮提标改造工程的微生物群落结构分析 …… 李海松, 王柯丹, 陈晓蕾, 阎登科, 许子聪, 胡培基(4727)
IFAS工艺处理南方低碳源污水的泥膜微生物互作规律分析 …… 赫俊国, 江伟勋, 何卓义, 刘新平, 吴世华, 储昭瑞, 冯杰(4736)
黄土高原土地利用方式对微塑料丰度和形态分布的影响 …… 郝永丽, 胡亚鲜, 白晓雄, 郭胜利(4748)
南方丘陵区土壤重金属含量、来源及潜在生态风险评价 …… 王玉, 辛存林, 于爽, 薛红蕾, 曾鹏, 孙平安, 刘凡(4756)
兰州市耕地"五毒"重金属的风险评价与归因分析 …… 张利瑞, 彭鑫波, 马延龙, 康乐, 张妍娥, 王泉灵, 张松林(4767)
石家庄市栾城区农田土壤重金属分布特征及作物风险评价 …… 孟晓飞, 郭俊姆, 杨俊兴, 郑国砥, 陈同斌, 刘杰(4779)
典型城市土壤中重金属锑(Sb)的含量分布特征及风险评价 …… 沈城, 叶文娟, 钱诗颖, 吴健, 朱旭东, 王敏(4791)
有色金属矿业城市典型村镇土壤重金属污染评价及来源解析 …… 汪峰, 黄言欢, 李如忠, 吴鸿飞(4800)
柠檬酸及刈割强化象草修复镉污染土壤的效应 …… 唐棋, 伍港繁, 辜娇峰, 周航, 曾鹏, 廖柏寒(4810)
稻田落干过程砷甲基化效率变化与关键影响因素分析 …… 张玥, 李令仪, 文炯, 曾希柏, 苏世鸣(4820)
外源茉莉酸对水稻幼苗根系砷积累及抗逆应答效应 …… 李颜, 黄益宗, 保琼莉, 黄永春, 张盛楠(4831)
秸秆还田配施化肥对土壤养分及冬小麦产量的影响 …… 宋佳杰, 徐郗阳, 白金泽, 于琦, 程伯豪, 冯永忠, 任广鑫(4839)
冬季绿肥对黄土高原旱作春玉米农田土壤温室气体排放的影响 …… 张少宏, 王俊, 方震文, 付鑫(4848)
庞泉沟自然保护区土壤呼吸空间分异性影响因素探测 …… 李晓敏, 严俊霞, 杜自强, 王琰(4858)
小型养殖塘水体中CH_4、CO_2和N_2O浓度的时空变化特征及影响因素 …… 石婕, 张弥, 邱吉丽, 万梓文, 赵若男, 谢燕红, 陈明健, 赵佳玉, 肖薇, 刘寿东(4867)
丁基黄药对选矿区土壤吸附铅镉的影响 …… 胡志浩, 郭朝晖, 冉洪珍, 肖细元, 彭驰, 李钰滢(4878)
秸秆生物炭吸附对乙酰氨基酚的机制及其位能分布特征 …… 商岑尧, 顾若婷, 张强, 谢慧芳, 王冰玉(4888)
黄土高原地区生态脆弱性时空变化及其驱动因子分析 …… 张良侠, 樊江文, 张海燕, 周德成(4902)
植物促生菌在重金属生物修复中的作用机制及应用 …… 马莹, 王玥, 石孝均, 陈新平, 李振轮(4911)
《环境科学》征订启事(4512) 《环境科学》征稿简则(4735) 信息(4696, 4790, 4887)

Eco-Environmental Knowledge Web
环 境 科 学
Environmental Science
第43卷第9期 2022年9月
Vol.43,No.9 Sep.,2022

减排背景下成都大气 $PM_{2.5}$ 碳质组分特征

陈璐瑶[1]，于阳春[2]，黄小娟[3]，董贵明[1]，张军科[1*]
(1.西南交通大学地球科学与环境工程学院，成都 611756；2.山东省生态环境规划研究院，济南 250101；3.成都信息工程大学大气科学学院，成都平原城市气象与环境四川省野外科学观测研究站，成都 610225)

摘要：近年来,国务院颁布的《大气污染防治行动计划》和《打赢蓝天保卫战三年行动计划》对我国空气质量的全面改善起到了重要作用,然而,当前鲜有对四川盆地两大政策实施效果进行评估以及对政策实施后 $PM_{2.5}$ 化学组分新特征的针对性研究.2017 年和 2020 年分别是两大污染减排政策实施效果评估的关键时期,为对两时期成都市大气 $PM_{2.5}$ 及其中碳质组分特征进行全面了解,分别于 2016 年 10 月至 2017 年 7 月和 2020 年 12 月在成都市区进行了 $PM_{2.5}$ 的连续采样,并对其中有机碳(OC)和元素碳(EC)进行了分析.结果表明：①2016～2017 年成都市 $\rho(PM_{2.5})$ 平均值为(114.0±76.4) μg·m^{-3},最高值出现在冬季,可达(193.3±98.5) μg·m^{-3},是浓度最低季节春季[(73.8±32.3) μg·m^{-3}]的 2.6 倍,而这种严重的冬季污染在 2020 年出现了明显改善,对应的 $\rho(PM_{2.5})$ 为(96.0±39.3) μg·m^{-3},降幅达 50.3%.②2016～2017 年 $\rho(OC)$ 和 $\rho(EC)$ 的平均值分别为(21.1±16.4) μg·m^{-3}和(1.9±1.3) μg·m^{-3},分别占 $PM_{2.5}$ 的质量分数为 18.5% 和 1.7%；$\rho(OC)$ 季节变化特征为：冬季[(40.6±21.5) μg·m^{-3}]＞秋季[(17.0±7.0) μg·m^{-3}]＞夏季[(14.4±3.9) μg·m^{-3}]＞春季[(12.6±6.0) μg·m^{-3}],而各季节 $\rho(EC)$ 水平接近(1.3～2.4 μg·m^{-3})；二次有机碳(SOC)是 OC 的重要组成,可占 OC 的质量分数为 44.5%.相比 2016 年冬季,2020 年冬季 $\rho(OC)$ 降至(19.2±9.1) μg·m^{-3},降幅达 52.7%,EC 则升高了 26.1%.③随污染加重,各碳质组分及其贡献变化趋势各异,相比 2016 年冬季,2020 年冬季 OC 随污染加重贡献更加趋于稳定,而 SOC 占比升高更为明显,二次有机组分贡献不容忽视.④各季节气团来向和污染物潜在源区均呈现出了明显差异;与 2016 年冬季相比,虽然 2020 年冬季主要气团来向未发生明显变化,但各轨迹对应的污染物浓度均出现了大幅降低,且污染物潜在源区向东部区域扩展明显.

关键词：$PM_{2.5}$；碳质组分；季节变化；区域传输；成都
中图分类号：X513 **文献标识码**：A **文章编号**：0250-3301(2022)09-4438-10 **DOI**：10.13227/j.hjkx.202112160

Characteristics of Carbonaceous Species in $PM_{2.5}$ in Chengdu Under the Background of Emission Reduction

CHEN Lu-yao[1], YU Yang-chun[2], HUANG Xiao-juan[3], DONG Gui-ming[1], ZHANG Jun-ke[1*]
(1. Faculty of Geosciences and Environmental Engineering, Southwest Jiaotong University, Chengdu 611756, China; 2. Shandong Academy for Environmental Planning, Ji'nan 250101, China; 3. Chengdu Plain Urban Meteorology and Environment Observation and Research Station of Sichuan Province, School of Atmospheric Sciences, Chengdu University of Information Technology, Chengdu 610225, China)

Abstract: The Air Pollution Prevention and Control Action Plan and Three-year Plan on Defending the Blue Sky promulgated by the State Council of the People's Republic of China have played an important role in the overall improvement of air quality in China. However, few studies have evaluated the implementation effects of these two policies in Sichuan Basin and the new characteristics of $PM_{2.5}$ chemical components after the implementation of these policies. The key periods for evaluating the implementation effects of these two pollution reduction policies are 2017 and 2020, respectively. In order to study the atmospheric $PM_{2.5}$ and carbonaceous species in Chengdu during these two periods, this study sampled the $PM_{2.5}$ in Chengdu from October 2016 to July 2017 and December 2020, respectively, and the organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) were analyzed. The results showed that the annual $\rho(PM_{2.5})$ from 2016-2017 in Chengdu was (114.0±76.4) μg·m^{-3}. The maximum value of the $\rho(PM_{2.5})$ appeared in winter [(193.3±98.5) μg·m^{-3}], and the minimum value appeared in spring [(73.8±32.3) μg·m^{-3}]. By contrast, the $\rho(PM_{2.5})$ in winter decreased significantly in 2020, with a value of (96.0±39.3) μg·m^{-3}. The annual $\rho(OC)$ and $\rho(EC)$ from 2016-2017 were (21.1±16.4) μg·m^{-3} and (1.9±1.3) μg·m^{-3}, which accounted for 18.5% and 1.7% of the $PM_{2.5}$ mass, respectively. The seasonal variation characteristic of $\rho(OC)$ was: winter [(40.6±21.5) μg·m^{-3}] > autumn [(17.0±7.0) μg·m^{-3}] > summer [(14.4±3.9) μg·m^{-3}] > spring [(12.6±6.0) μg·m^{-3}], whereas the $\rho(EC)$ in the four seasons were close, ranging from 1.3 to 2.4 μg·m^{-3}. The annual $\rho(SOC)$ was (9.4±9.1) μg·m^{-3}, which accounted for 44.5% of the OC mass. Compared with that in winter 2016, the $\rho(OC)$ decreased by 52.7% in winter 2020, whereas the $\rho(EC)$ increased by 26.1%. With the aggravation of pollution, the change trends of carbon species and their contributions were different. Compared with that in winter 2016, the variation in the contribution of OC with the aggravation of pollution in winter 2020 was more stable, whereas the proportion of SOC increased more obviously. There were obvious differences in the direction of air masses and the potential source area of pollutants in each season. Although there was no significant change in the direction of air masses in winter 2020 compared with those in winter 2016, the pollutant concentrations corresponding to each cluster decreased significantly, and the potential source area of pollutants expanded significantly to the eastern area.

Key words: $PM_{2.5}$; carbonaceous species; seasonal variation; regional transport; Chengdu

收稿日期：2021-12-17；**修订日期**：2022-01-20
基金项目：国家自然科学基金项目(41805095)；四川省科技计划重点研发项目(2019YFS0476)
作者简介：陈璐瑶(1997～),女,硕士研究生,主要研究方向为大气细颗粒物化学组成及来源解析,E-mail:chenluyao812@163.com
* 通信作者,E-mail:zhangjunke@home.swjtu.edu.cn

为实现我国空气质量的全面改善，国务院分别于 2013 年和 2018 年颁布了《大气污染防治行动计划》（“大气十条”）和《打赢蓝天保卫战三年行动计划》（“蓝天保卫战”），其针对生产和生活的多个方面，如污染治理、能源和产业结构优化、法律法规健全、区域协作和全民参与等，提出了严格的污染控制和减排措施. 有研究证实，这些措施的实施实现了我国各地区空气质量不同程度地改善[1,2]. 作为引发大气污染的主要物种，$PM_{2.5}$ 是各类污染减排政策的重要目标，其构成复杂，其中，碳质组分是 $PM_{2.5}$ 的重要组成，通常可占整体 $PM_{2.5}$ 的 10%～50%[3]，在部分地区该占比甚至可达 90%[4]，被认为是引发大气污染的重要组分. 除了对气候环境和城市能见度的影响[5～8]，碳质组分所富含的多种有毒有害物质还会对人体健康产生严重危害[9, 10]. 因此，对碳质组分的深入研究及减排对空气质量改善和公众健康均具有重要作用.

四川盆地地处我国西南，区内地势差异显著，西北高、东南低，盆地地形特征显著；同时，该区域四季静风频率高，相对湿度较高，雨雾天气频繁. 这种不利的地形及气候条件加之当地高浓度污染物的大量排放使得该区域成为我国重点灰霾区域之一[11～13]. 截止目前，已有诸多研究对我国部分地区“大气十条”或“蓝天保卫战”实施阶段或实施完成后大气污染特征进行了报道[14～16]. 然而，对于四川盆地的相关研究却非常少见. 2017 年和 2020 年分别是两大污染减排政策实施效果评估的关键年份，因此，为认识两大污染减排政策的实施对四川盆地大气 $PM_{2.5}$ 及其中碳质组分产生的影响，本研究以四川省省会成都市为研究对象，首先，于 2016～2017 年在成都市中心进行了 $PM_{2.5}$ 的分季节连续采样，并对其中碳质组分的季节演化进行了针对性分析；其次，在其他 3 个季节重污染天基本消除的背景下，以污染最重的冬季为研究目标，在 2020 年冬季进行了针对性的 $PM_{2.5}$ 采样和碳质组分分析，并与 2016 年冬季观测结果进行了对比分析，进一步评估了“蓝天保卫战”的实施对该污染最重季节碳质组分产生的影响. 以上结果对于认识这两大污染减排政策实施效果和未来空气质量的进一步改善具有重要参考价值.

1　材料与方法

1.1　样品采集

本研究采样站点设置于地处成都市中心的西南交通大学九里校区土木楼楼顶，站点周围分布有学校、道路、居民区、商业区、餐饮和公园等典型城市功能区，采样结果能够较好地反映成都市空气质量水平[17,18]. 分别于 2016 年 10 月、2017 年 1 月、2017 年 4 月、2017 年 7 月和 2020 年 12 月利用 TH-150C（武汉天虹，中国）采样器对该站点大气 $PM_{2.5}$ 进行了 28、29、27、29 和 30 d 的样品采集，获取样品可分别代表成都市 2016 年秋季、2016 年冬季、2017 年春季、2017 年夏季和 2020 年冬季大气 $PM_{2.5}$ 水平. 本研究采样流量为 100 $L\cdot min^{-1}$，采样膜为石英滤膜（Pall：d = 90 mm），每天采集两个样品，采样时间分别为每日 08:30～20:00 和 20:30～次日 08:00，最后，共获得 286 张膜样品. 此外，对采样时段的气态污染物（SO_2、NO_x、CO、O_3）和气象要素（温度、湿度、风速、能见度等）进行同步观测[19,20].

1.2　样品分析

1.2.1　质量分析

采样开始之前，将采样膜放置于马弗炉中，在 500℃下焙烧 4 h，从而降低温度、湿度和滤膜中的挥发组分以及其他杂质对称重和组分含量的影响，然后将其在恒温[(20±1)℃]和恒湿[(45±5)%]环境下平衡 48 h 后进行称重. 在采样完成后再次将样品在相同恒温恒湿条件下处理与称重. 最后，通过计算采样前后膜质量的净增加量与采样标况体积之比可获取大气 $PM_{2.5}$ 浓度信息.

1.2.2　化学分析

本研究 OC 和 EC 浓度分析采用热/光碳气溶胶分析仪（Sunset Lab Inc.）. 首先，在 He 载气环境下通过逐级升温，对 4 种 OC（即 OC1、OC2、OC3 和 OC4）进行测定，随后炉温降至 550℃，在 He/O_2 混合载气环境下通过逐级升温，对 6 种 EC（即 EC1、EC2、EC3、EC4、EC5 和 EC6）进行测定. 在此过程中，会产生一部分裂解碳（OPC），它主要是在无氧加热时 OC 裂解形成的 EC. 本研究 OC 定义为 OC1 + OC2 + OC3 + OC4 + OPC，EC 定义为 EC1 + EC2 + EC3 + EC4 + EC5 + EC6 − OPC.

1.3　数据分析

1.3.1　SOC 计算

本研究二次有机碳（secondary organic carbon，SOC）计算参考文献[21～23]，即 SOC = OC − EC $(OC/EC)_{min}$，式中，$(OC/EC)_{min}$ 为研究时段 OC 和 EC 的最小比值. 考虑到气象条件及污染源排放的季节差异，本研究的 SOC 进行分季节单独计算. 同时，$(OC/EC)_{min}$ 的选取排除降雨或大风天气所采集的样品.

1.3.2　HYSPLIT 模型

HYSPLIT 模型是由美国国家海洋和大气管理

局空气资源实验室(NOAA Air Resources Laboratory)联合开发的一种综合模式系统,被广泛应用于分析气流的运动沉降特征和大气污染物的输送扩散轨迹[24, 25]. 本研究利用 Hysplit 4.9 软件对到达成都市的气流进行了 48 h 后向轨迹模拟,以往研究指出, 500 m 风场能够有效地反映成都市边界层的平均流场特征和携带污染物的气团的输送特征[26],因此,本研究模拟起始高度设置为 500 m.

1.3.3 潜在源贡献因子(PSCF)及浓度权重轨迹(CWT)分析

PSCF 是基于条件概率函数发展而来的一种用于分析受体位点污染物的可能来源区域的方法[27]. 该方法利用污染轨迹与所有轨迹的比值来表示每个区域对受体点的污染贡献概率. 分析时将整个研究区域分为 $i \times j$ 个小网格,每个网格的 $PSCF_{ij}$ 计算公式便可表述为:

$$PSCF_{ij} = m_{ij}/n_{ij} \quad (1)$$

式中, n_{ij} 为落在此网格的所有轨迹数, m_{ij} 为污染轨迹数. 本研究所涵盖的区域范围为 28°~35°N 和 101°~110°E,网格的分辨率为 0.1°×0.1°. $PM_{2.5}$ 污染阈值为 75 μg·m^{-3},碳质组分污染阈值为 60% 分位数浓度水平.

由于 PSCF 结果只能体现经过网格区域的轨迹中污染轨迹的比率,无法衡量各个网格污染轨迹的污染浓度贡献. 为弥补此不足,本研究基于相同的输入数据和适用的网格分辨率,进一步利用 CWT 分析法,计算每条轨迹的平均权重浓度,计算公式如下:

$$CWT_{ij} = \left(\sum_{l=1}^{M} C_l T_{ijl}\right) \Big/ \left(\sum_{l=1}^{M} T_{ijl}\right) \quad (2)$$

式中, CWT_{ij} 是网格 ij 上的平均权重浓度; M 是轨迹总数; l 是轨迹; C_l 是轨迹 l 经过网格 ij 对应的污染物浓度; T_{ijl} 是轨迹 l 在网格 ij 的停留时间.

当 n_{ij} 较小时,会导致 PSCF 和 CWT 的计算结果的不确定性增大,为此,本研究将权重函数(W_{ij})引入到 PSCF 和 CWT 式中,即 $WPSCF_{ij} = W_{ij} \times m_{ij}/n_{ij}$ 和 $WCWT_{ij} = W_{ij} \times CWT_{ij}$,本研究中 W_{ij} 为:

$$W_{ij} = \begin{cases} 1.0, & n_{ij} > 3n_{ave}, \\ 0.7, & 1.5n_{ave} < n_{ij} \leqslant 3n_{ave}, \\ 0.4, & n_{ave} < n_{ij} \leqslant 1.5n_{ave}, \\ 0.17, & n_{ij} \leqslant n_{ave}. \end{cases} \quad (3)$$

式中, n_{ave} 为每个网格的平均轨迹端点数.

2 结果与讨论

如上所述,为对成都大气 $PM_{2.5}$ 及其中碳质组分季节特征及污染最重季节(冬季)污染物年际演化特征进行分析,本研究分别在 2016~2017 年四季和 2020 年冬季进行了 $PM_{2.5}$ 的采样与分析. 因此,结果与讨论各部分主要聚焦于两方面分析:一是基于 2016~2017 年全年结果对 $PM_{2.5}$ 和碳质组分的季节演化特征进行分析; 二是通过比较 2016 年和 2020 年冬季结果,评估"蓝天保卫战"的实施对该污染最重季节所产生的影响.

2.1 污染物季节变化及冬季年际演化特征

2.1.1 2016~2017 年气象及污染物季节变化特征

由表 1 可以看出, 2016~2017 年成都市最高和最低大气温度分别出现在夏季[(28.2±3.0)℃]和冬季[(10.0±1.2)℃],而相对湿度的最高和最低值分别出现在秋季[(86.8±7.0)%]和夏季[(68.0±12.4)%]. 各季节大气条件相对稳定,风速整体处于较低水平,变化范围为 1.5~1.9 m·s^{-1}. 与温度季节特征类似,夏季边界层要明显高于其他季节,是秋季和冬季的 2 倍以上. 受气象和污染物季节变化影响,能见度在春季达到最高[(4.4±2.2)km],最低值则出现在冬季[(2.8±1.8)km].

与气象条件类似,气态污染物浓度也呈现出了明显的季节变化. 其中, $\rho(NO_x)$ 最高值出现在冬季,达到了(192.9±122.7)μg·m^{-3},分别是春、夏和秋季的 1.8、2.7 和 1.8 倍. 虽然 $\rho(SO_2)$ 整体水平较低,但季节差异明显,在冬季达到了(29.6±17.2)μg·m^{-3},分别是春、夏和秋季的 2.0、2.0 和 2.6 倍. $\rho(CO)$ 最高值出现在冬季[(2.1±3.7)mg·m^{-3}],在其他季节则较为稳定,介于 0.8~1.0 mg·m^{-3}. $\rho(O_3)$ 较高值出现在春季和夏季,分别达到(83.4±64.9)μg·m^{-3}和(88.6±66.1)μg·m^{-3},该浓度水平远高于秋季[(14.8±14.2) μg·m^{-3}]和冬季[(12.6±16.4)μg·m^{-3})],春季的高值主要是受该季节平流层臭氧传输所引起,而夏季的高值主要与该季节较强的光化学反应密切相关[28].

2016~2017 年 $\rho(PM_{2.5})$ 平均值为(114.0±76.4)μg·m^{-3},日均值超标率高达 65.1%. 本研究中年均 $\rho(PM_{2.5})$ 明显高于同处四川盆地的宜宾(75.2 μg·m^{-3})[29]和重庆(76.4 μg·m^{-3})[30],以及华北的北京(109.9 μg·m^{-3})[31]、长三角的南京(51.2 μg·m^{-3})[32]和珠三角的珠海(31.0 μg·m^{-3})[33]等. 因此,在本研究观测时段成都市大气 $PM_{2.5}$ 污染处于较为严重的水平. $\rho(PM_{2.5})$ 随着春季向冬季演化呈现出了明显的升高趋势,春季平均值最低为(73.8±32.3)μg·m^{-3},而在冬季达到了(193.3±98.5)μg·m^{-3}.

2.1.2 污染物冬季年际演化特征

由表 1 可知,虽然 2020 年冬季大气温度、相对

表 1　各季节气象条件及污染物浓度

Table 1　Meteorological conditions and concentrations of pollutants in different seasons

组分	2017 年春季	2017 年夏季	2016 年秋季	2016 年冬季	2020 年冬季
温度/℃	19.7 ± 3.2	28.2 ± 3.0	17.9 ± 3.2	10.0 ± 1.2	9.4 ± 2.8
相对湿度/%	71.3 ± 14.5	68.0 ± 12.4	86.8 ± 7.0	74.9 ± 10.6	75.8 ± 17.1
风速/$m \cdot s^{-1}$	1.9 ± 0.8	1.6 ± 0.7	1.6 ± 0.7	1.5 ± 0.7	1.6 ± 1.2
边界层高度/km	1.9 ± 1.3	2.8 ± 1.4	1.2 ± 0.3	1.3 ± 0.5	1.4 ± 0.8
能见度/km	4.4 ± 2.2	3.1 ± 0.8	2.9 ± 1.4	2.8 ± 1.8	5.5 ± 3.3
$\rho(NO_x)$/$\mu g \cdot m^{-3}$	104.5 ± 112.6	71.5 ± 44.1	108.3 ± 63.3	192.9 ± 122.7	129.2 ± 86.9
$\rho(SO_2)$/$\mu g \cdot m^{-3}$	15.0 ± 7.6	14.7 ± 15.6	11.6 ± 7.9	29.6 ± 17.2	5.0 ± 2.9
$\rho(CO)$/$mg \cdot m^{-3}$	0.9 ± 0.5	0.8 ± 0.3	1.0 ± 0.5	2.1 ± 3.7	0.9 ± 1.0
$\rho(O_3)$/$\mu g \cdot m^{-3}$	83.4 ± 64.9	88.6 ± 66.1	14.8 ± 14.2	12.6 ± 16.4	13.9 ± 14.8
$\rho(PM_{2.5})$/$\mu g \cdot m^{-3}$	73.8 ± 32.3	82.7 ± 26.3	104.6 ± 51.4	193.3 ± 98.5	96.0 ± 39.3

湿度、风速和边界层高度等气象条件与 2016 年冬季接近，但污染物却呈现出了较大差异. 就气态污染物而言，2020 年冬季除 $\rho(O_3)$ 升高了 1.3 $\mu g \cdot m^{-3}$ 外，$\rho(NO_x)$、$\rho(SO_2)$ 和 $\rho(CO)$ 分别降至 (129.2 ± 86.9) $\mu g \cdot m^{-3}$、(5.0 ± 2.9) $\mu g \cdot m^{-3}$ 和 (0.9 ± 1.0) $mg \cdot m^{-3}$，相比 2016 年冬季，降幅分别达到 33.0%、83.1% 和 57.1%. 就 $\rho(PM_{2.5})$ 而言，2020 年冬季平均值为 (96.0 ± 39.3) $\mu g \cdot m^{-3}$，相比 2016 年冬季降幅达到 50.3%，相应的，2020 年冬季大气能见度几乎是 2016 年冬季的两倍，达到 (5.5 ± 3.3) km. 可见，在气象条件相似的情况下，各类污染要素（除 O_3）在 2020 年冬季均出现了大幅降低，这凸显了“蓝天保卫战”减排的有效性.

2.2　碳质组分季节变化及冬季年际演化特征

2.2.1　2016 ~ 2017 年碳质组分季节变化特征

2016 ~ 2017 年 $\rho(OC)$ 和 $\rho(EC)$ 变化范围分别为 12.6 ~ 40.6 $\mu g \cdot m^{-3}$ 和 1.3 ~ 2.4 $\mu g \cdot m^{-3}$，对应的平均值分别为 (21.1 ± 16.4) $\mu g \cdot m^{-3}$ 和 (1.9 ± 1.3) $\mu g \cdot m^{-3}$，该碳质组分浓度水平 (OC + EC) 虽低于天津 (31.4 $\mu g \cdot m^{-3}$) 和廊坊 (64.8 $\mu g \cdot m^{-3}$)[34]，却高于成都市 2013 ~ 2014 年的观测结果 (17.7 $\mu g \cdot m^{-3}$)[35]，这意味着成都大气 $PM_{2.5}$ 中碳质组分较以往有所增加，在污染减排过程中尤其值得注意. 如图 1 所示，$\rho(OC)$ 和 $\rho(EC)$ 呈现出了明显的季节变化，其中，$\rho(OC)$ 季节变化特征与 $\rho(PM_{2.5})$ 完全一致：冬季 [(40.6 ± 21.5) $\mu g \cdot m^{-3}$] > 秋季 [(17.0 ± 7.0) $\mu g \cdot m^{-3}$] > 夏季 [(14.4 ± 3.9) $\mu g \cdot m^{-3}$] > 春季 [(12.6 ± 6.0) $\mu g \cdot m^{-3}$]，而 $\rho(EC)$ 整体表现为秋冬季高于春夏季，整体变化规律为：秋季 [(2.4 ± 1.3) $\mu g \cdot m^{-3}$] > 冬季 [(2.3 ± 1.1) $\mu g \cdot m^{-3}$] > 春季 [(1.4 ± 1.5) $\mu g \cdot m^{-3}$] > 夏季 [(1.3 ± 0.6) $\mu g \cdot m^{-3}$]. 就对 $PM_{2.5}$ 贡献而言，整个观测时段 OC 和 EC 的平均占比分别为 18.5% 和 1.7%，其中，OC 在冬季占比略高于其他 3 个季节，四季占比分别为 17.1%（春）、17.4%（夏）、16.3%（秋）和 21.0%（冬），而 EC 对 $PM_{2.5}$ 贡献季节差异则较小，变化范围为 1.2% ~ 2.3%.

通过相关性分析可知：①成都市春、秋和冬季的 OC 和 EC 具有较强的相关性，对应的 R^2 分别为 0.60、0.68 和 0.60，两种碳质组分来源一致性较强，而在夏季，两者相关性则非常弱 (R^2 = 0.11)，这意味着在夏季两种组分的来源存在较大差异，如 SOC 的大量产生. ②成都市各季节 OC 与 $PM_{2.5}$ 均存在较强的相关性，整体 R^2 变化范围为 0.64 ~ 0.92；EC 与 $PM_{2.5}$ 相关性弱于 OC，R^2 变化范围为 0.35 ~ 0.57. 可见，碳质组分，尤其是 OC 始终是 $PM_{2.5}$ 的重

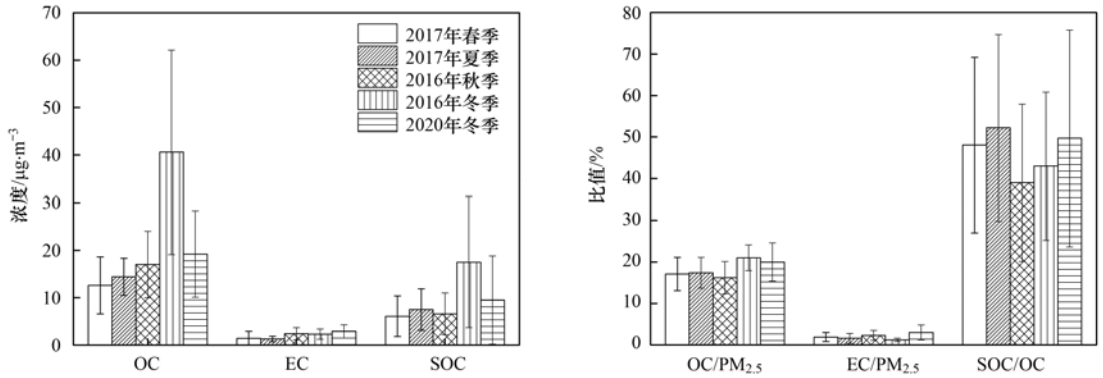


图 1　碳质组分浓度及贡献季节变化

Fig. 1　Seasonal variations of the concentrations and contributions of carbonaceous species

要构成,对 $PM_{2.5}$ 季节变化具有重要贡献.

OC/EC 比值通常被用于判断大气中是否生成了 SOC 以及两种碳质组分的来源[36,37]. 有研究表明,OC/EC > 2 时,即认为大气中有 SOC 生成[38];当 OC/EC 为 1.0 ~ 4.2 时,主要排放源为机动车尾气[39];比值为 2.5 ~ 10.5 时,主要排放源为燃煤源[40];比值为 3.8 ~ 13.2 或 16.8 ~ 40.0 时,主要排放源为生物质燃烧[41,42];比值为 32.9 ~ 81.6 时,主要排放源为烹调排放[42]. 本研究中,成都市春、夏、秋和冬季的 OC/EC 均值分别为 9.0、11.1、7.1 和 17.7,表明各季节均有 SOC 生成,其中,春季和秋季碳质组分主要来源于燃煤源和生物质燃烧,夏季和冬季碳质组分主要来源于生物质燃烧.

2016 ~ 2017 年 ρ(SOC)平均值为(9.4 ± 9.1) $\mu g \cdot m^{-3}$,可占 OC 的质量分数为 44.5%,其季节变化特征为:冬季[(17.5 ± 13.8) $\mu g \cdot m^{-3}$] > 夏季[(7.5 ± 4.4) $\mu g \cdot m^{-3}$] > 秋季[(6.6 ± 4.4) $\mu g \cdot m^{-3}$] > 春季[(6.1 ± 4.3) $\mu g \cdot m^{-3}$],与浓度季节变化特征不同,SOC 在夏季(52.1%)的占比高于其他季节,这主要与夏季更强的光化学反应有利于 SOC 的大量生成有关.

2.2.2 碳质组分冬季年际演化特征

就浓度而言,2020 年冬季 ρ(OC)和 ρ(SOC)分别为(19.2 ± 9.1) $\mu g \cdot m^{-3}$ 和(9.5 ± 9.3) $\mu g \cdot m^{-3}$,相比 2016 年冬季分别降低了 52.7% 和 45.7%;而 2020 年冬季 ρ(EC)为(2.9 ± 1.4) $\mu g \cdot m^{-3}$,较 2016 年冬季上升了 26.1%. 就相对贡献而言,OC 和 EC 各自对 $PM_{2.5}$ 的贡献在两个冬季较为接近(2016 冬 vs. 2020 冬:21.0% vs. 20.0% 和 1.2% vs. 3.0%),而 SOC 在 OC 中的占比在 2020 年冬季升高幅度较大(6.7%),凸显了二次有机组分在碳质组分中更为重要的贡献. 2020 年冬季 OC/EC 均值为 6.6,碳质组分来源由 2016 年的生物质燃烧转变为燃煤排放和生物质燃烧共同贡献.

2.3 碳质组分随污染演化特征

在污染加重过程中,随着气象要素、形成机制及源强的变化,各类污染物所扮演的作用通常处于动态变化中. 因此,对这些污染物在不同污染时段的对比分析,有利于全面认识其在污染形成中的作用,从而为污染形成机制分析和提出针对性减排建议提供科学支持. 按照我国《环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)》(HJ 633-2012)中 $PM_{2.5}$ 的分级标准,本研究将研究时段环境空气质量分为未污染(< 75 $\mu g \cdot m^{-3}$)、轻度污染(75 $\mu g \cdot m^{-3}$ ~ 115 $\mu g \cdot m^{-3}$)、中度污染(115 $\mu g \cdot m^{-3}$ ~ 150 $\mu g \cdot m^{-3}$)、重度污染(150 $\mu g \cdot m^{-3}$ ~ 250 $\mu g \cdot m^{-3}$)和严重污染(> 250 $\mu g \cdot m^{-3}$)这 5 个级别.

2.3.1 2016 ~ 2017 年碳质组分随污染演化特征

由图 2 可以看出,就 2016 ~ 2017 全年而言,随着污染加重,ρ(OC)大幅升高,空气质量为“非污染”时仅为(9.8 ± 2.8) $\mu g \cdot m^{-3}$,而在“严重污染”时段达到(69.7 ± 12.6) $\mu g \cdot m^{-3}$. 与 ρ(OC)不同,ρ(EC)则呈现出了先升高后稳定的变化趋势,当空气质量从“未污染”演变至“中度污染”,其值从(1.1 ± 0.6) $\mu g \cdot m^{-3}$ 升高至(3.1 ± 2.2) $\mu g \cdot m^{-3}$,随后,则保持在相对稳定的水平. SOC 浓度则呈现出了先升高后降低的趋势,最高值出现在“重度污染”时段. 就各组分贡献而言,OC 在 $PM_{2.5}$ 中的占比随污染加重微弱上升,最高值出现在“严重污染”时段,为 21.0%;EC 在 $PM_{2.5}$ 中的占比则与其浓度变化趋势相反,在“轻度污染”之前,整体较为稳定,而当污染更重时,贡献快速降低,最低值出现在“严重污染”

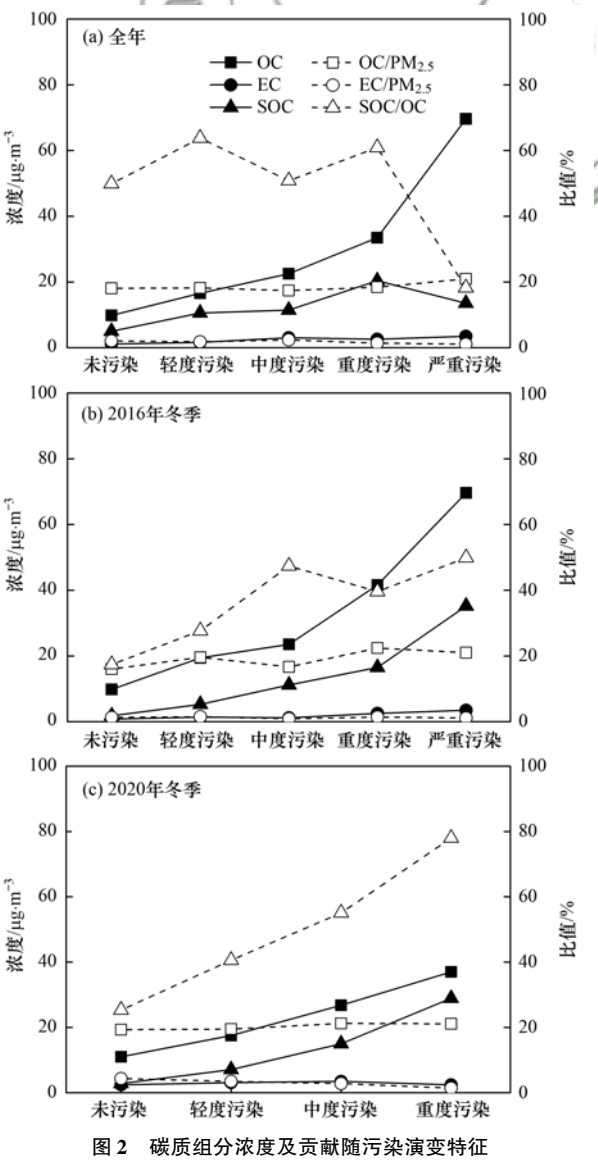


图 2 碳质组分浓度及贡献随污染演变特征

Fig. 2 Evolution characteristics of carbonaceous species concentrations and their contributions at different pollution level

时段，仅为 1.1%；SOC 在 OC 中的占比随污染加重呈波动性变化，且在污染最重时占比降到最低，仅为 18.3%.

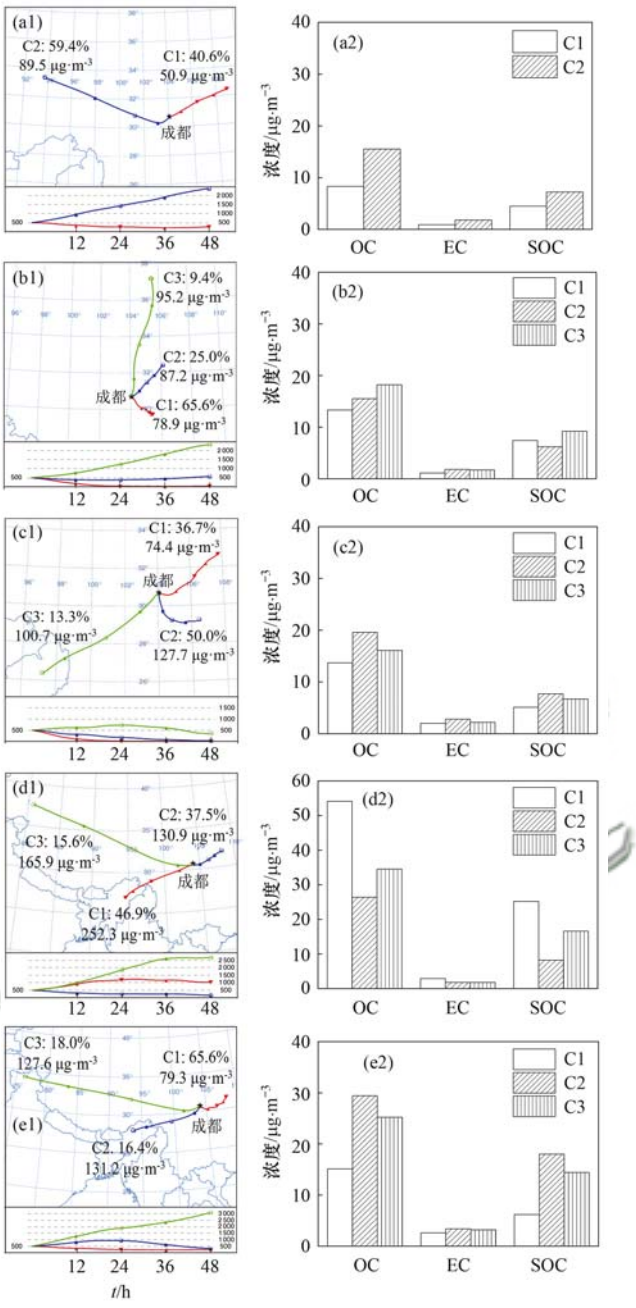
2.3.2　冬季碳质组分随污染演化特征

2016 年冬季三类碳质组分浓度随污染加重均呈升高趋势，ρ(OC)、ρ(EC)和ρ(SOC)分别从“非污染”时的(9.8±3.2)、(0.8±0.2)和(1.8±1.0) $\mu g \cdot m^{-3}$升高至“严重污染”时的(69.6±12.6)、(3.5±0.7)和(35.2±11.1) $\mu g \cdot m^{-3}$. 占比方面，EC 在 $PM_{2.5}$中的占比随污染加重没有明显的变化趋势，而 OC 在 $PM_{2.5}$中以及 SOC 在 OC 中的占比均呈波动性升高，最高占比分别出现在“重度污染”和“严重污染”时段，为 22.4% 和 49.9%. 相比 2016 年冬季，虽然 2020 年冬季 OC 和 SOC 浓度随污染加重也呈稳定升高趋势，但涨幅明显降低；同时，ρ(EC)随污染呈现出了先升高后降低的趋势，最高值出现在“中度污染”时段，为(3.5±1.6) $\mu g \cdot m^{-3}$. 就占比而言，相比 2016 年冬季，2020 年冬季 OC 在 $PM_{2.5}$中占比随污染加重更加趋于平缓，整体变化范围为 19.3%~21.2%；而 EC 对 $PM_{2.5}$的贡献随污染加重不断下降，从“未污染”时的 4.3%，降至“重度污染”时的 1.4%；值得注意的是，SOC 在 OC 中的占比随污染加重呈上升趋势，且上升幅度较 2016 年冬季更大. 可见，与 2016 年冬季相比，虽然 2020 年冬季 OC 和 EC 对污染形成的影响有所减弱，但二次碳质组分对污染的贡献却愈加突出.

2.4　后向轨迹分析

2.4.1　2016~2017 年后向轨迹季节特征

对成都市 2016~2017 年各季节气团轨迹进行聚类分析，结果如图 3 所示. 可以看出，各季节气团来向差异明显. 春季 2 条聚类对应的气团分别源自成都的东北(C1)和西北方向(C2)，气团贡献比例分别为 40.6% 和 59.4%，其中源自西北方向的 C2 对应着更高的 $PM_{2.5}$、OC、EC 和 SOC 浓度. 夏季的 3 条聚类均源自成都东部，其中，占比最大的 C1(65.6%)对应着最低的 $PM_{2.5}$、OC 和 EC 浓度，而占比最小的 C3(9.4%)对应着最高的 $PM_{2.5}$、OC、SOC 浓度. 秋季源自成都东南方向的 C2 可占所有气团的 50.0%，对应着最高的污染物浓度，而占比为 36.7% 的 C1 对应着最低的污染物浓度. 在冬季，西南地区气团传输贡献明显增强，对应的 C1 占比达到 46.9%，且其污染物浓度也明显高于其他轨迹. 就 SOC 在 OC 中的占比而言，其最高值对应的轨迹随季节出现了“顺时旋转”的现象，春、夏、秋和冬季的最高占比对应的聚类分别源于东北(C1)、东南(C1)、西南(C3)和西北(C3)，占比分别为 54.2%、55.6%、41.6% 和 48.1%.



(a)2017 年春季，(b)2017 年夏季，(c)2016 年秋季，(d)2016 年冬季，(e)2020 年冬季

图 3　后向轨迹聚类结果

Fig. 3　Backward trajectory clustering results

2.4.2　冬季后向轨迹年际特征

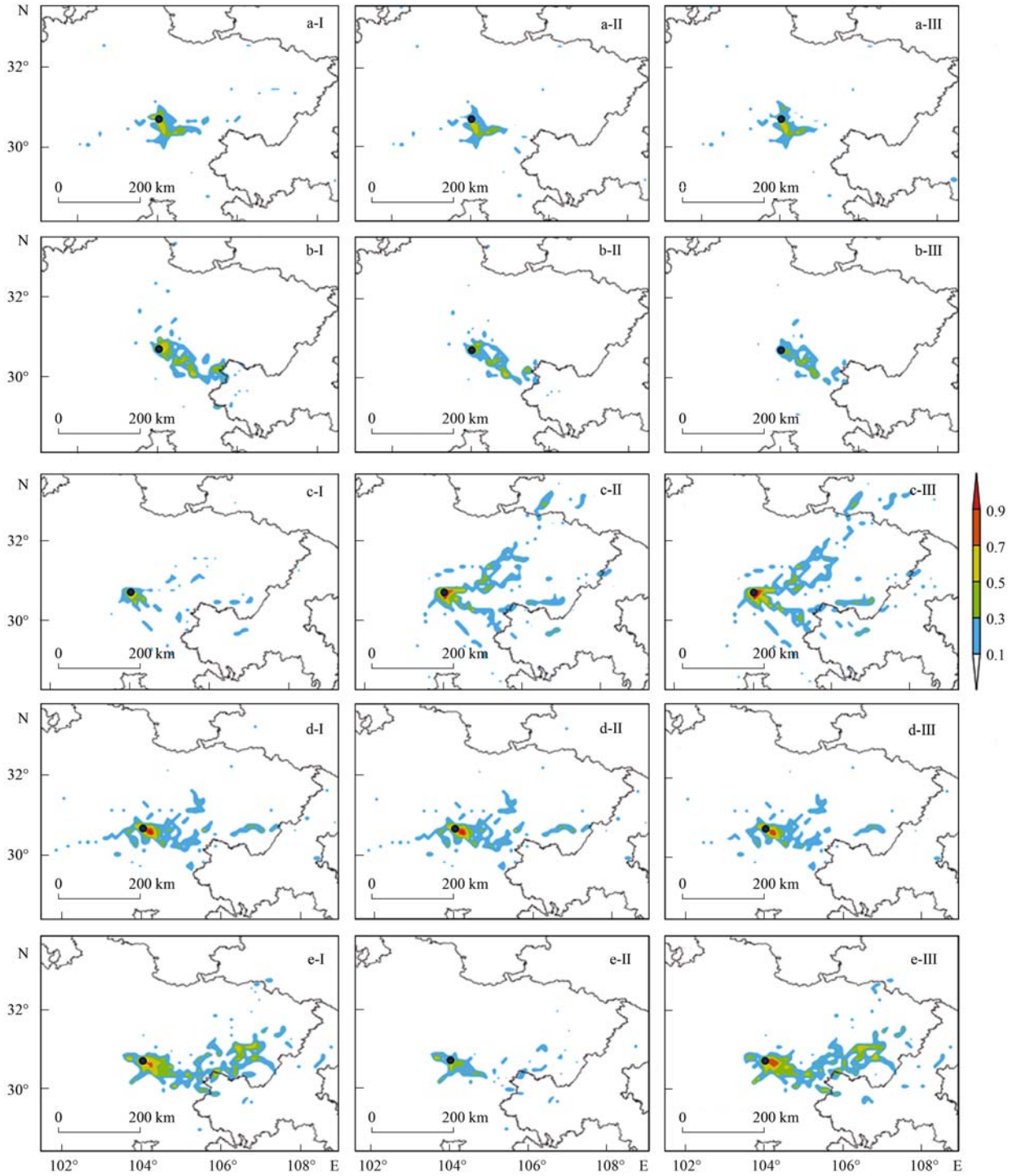
虽然不同季节成都市气团来向差异明显，但就冬季而言，2016 年和 2020 年成都市气团来向非常相似，均可聚为三类，分别来自成都东北、西南和西北方向. 两冬季对应最高污染物浓度的气团均源自西南方向，即 2016 年冬季的 C1 和 2020 年冬季的 C2. 相比 2016 年冬季，2020 年冬季各方向聚类对应的污染物浓度均出现了大幅降低，这与该季节空气质量大幅改善一致. 此外，与 2016 年冬季一致，

2020 年冬季 SOC 在 OC 中的最高占比同样出现在源自西南方向的聚类(C2),达到 61.2%,比 2016 年冬季高了 13.1%,进一步突出了“蓝天保卫战”实施后二次碳质组分更为重要的贡献.

2.5 潜在源贡献

2.5.1 2016~2017 年潜在源贡献季节特征

2016~2017 年 $PM_{2.5}$、OC 和 EC 的 WPSCF 分析结果如图 4 所示,可以看出,$PM_{2.5}$潜在源区呈现出了明显的季节变化,其中春季的高值区主要集中在成都周边的南部和东南部区域;而在夏季,除了局地源的强烈贡献,东南部高值区域进一步扩展,一直延伸至川渝交界地区,成为成都 $PM_{2.5}$的重要贡献源区;进入秋季,远距离传输明显减弱,高值区主要集中在成都周边地区;在冬季,虽然 $PM_{2.5}$潜在源区



a~e 分别表示 2017 年春季、2017 年夏季、2016 年秋季、2016 年冬季和 2020 年冬季,

Ⅰ~Ⅲ分别表示 $PM_{2.5}$、OC 和 EC;颜色越深,即气流通过该处影响计算点污染物浓度超过阈值的概率越大

图 4 $PM_{2.5}$及碳质组分 WPSCF 分析结果

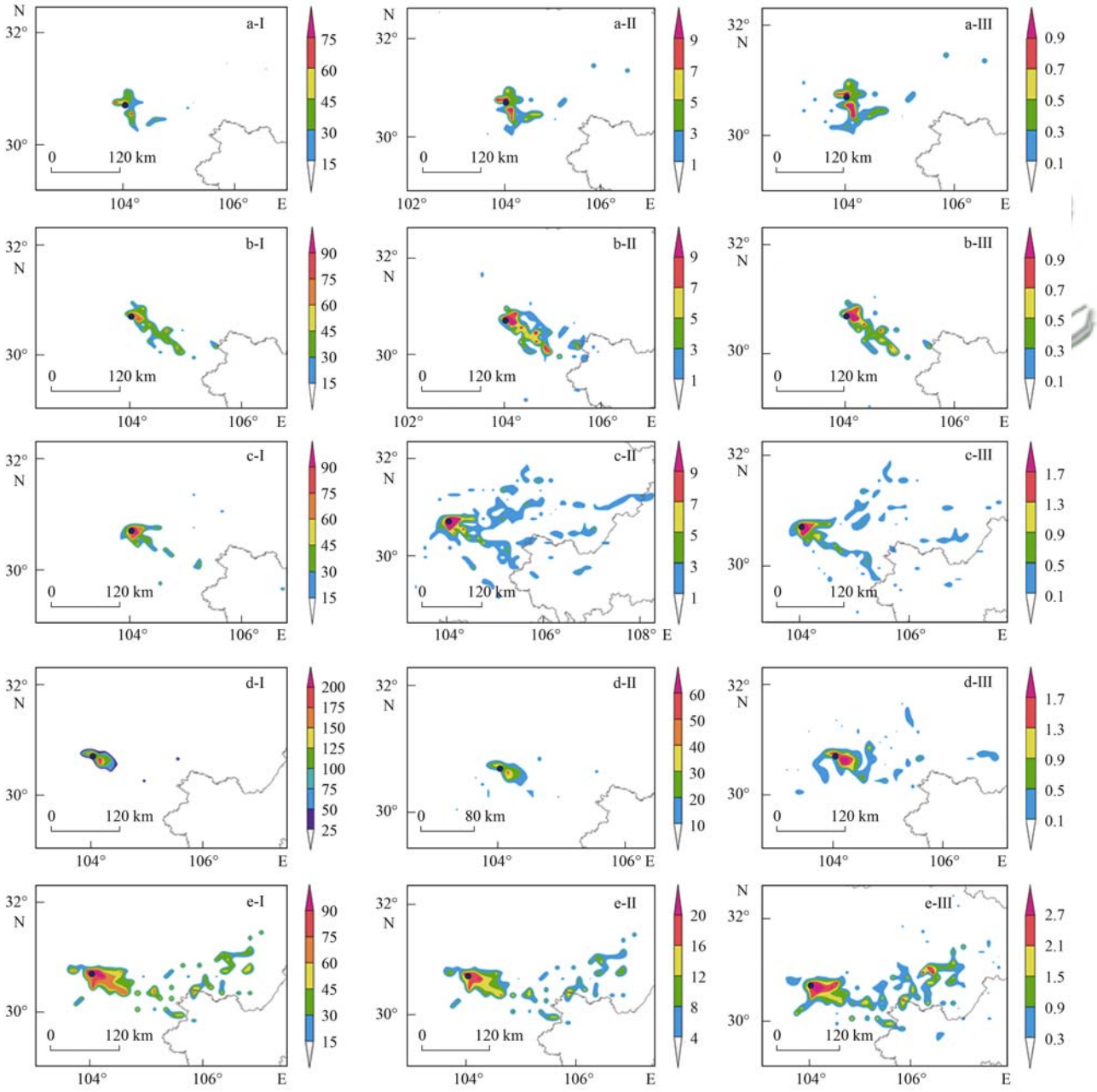
Fig. 4 WPSCF analysis results of $PM_{2.5}$ and carbonaceous species

有一定扩大,但依然集中在四川省内,且高值区主要分布在成都周边的东南部区域. 就两种碳质组分而言,在春、夏和冬季,OC 和 EC 的潜在源区与 $PM_{2.5}$ 呈现出了较强的一致性,而在秋季,两种碳质组分的潜在源区要明显大于 $PM_{2.5}$ 潜在源区范围,成都东部地区(包括东南和东北部)的贡献不容忽视.

由图 5 可以看出, 2016 ~ 2017 年夏、秋季 WCWT 和 WPSCF 分析结果非常接近,即成都近周边是 $PM_{2.5}$ 的主要潜在源区,而在夏季,成都东南部地区贡献不容忽视. 在春季,相比 WPSCF 分析结果, WCWT 分析结果进一步突出了成都以西地区的潜在贡献. 虽然潜在源区覆盖区域大小略有差异,但 OC 和 EC 与 $PM_{2.5}$ 的 WCWT 分析结果整体较为相似.

2.5.2　冬季潜在源贡献年际特征

对比 2016 年和 2020 年冬季 WPSCF 分析结果发现, 2020 年冬季 $PM_{2.5}$ 和 EC 潜在源区进一步向成都东部地区扩展,且该区域的高值区出现更为频繁,而 OC 潜在源区面积和强度均大幅缩小. 对比 WCWT 结果发现, 2016 年冬季 $PM_{2.5}$ 和两种碳质组分的高值区主要集中在成都周边区域,未见明显的远距离传输的潜在贡献,而在 2020 年冬季,三类污



a ~ e 分别表示 2017 年春季、2017 年夏季、2016 年秋季、2016 年冬季和 2020 年冬季, Ⅰ ~ Ⅲ分别表示 $PM_{2.5}$、OC 和 EC;颜色越深,即影响计算点污染物浓度的气流通过该处的平均浓度水平越高

图 5　$PM_{2.5}$ 及碳质组分 WCWT 分析结果

Fig. 5　WCWT analysis results of $PM_{2.5}$ and carbonaceous species

染物的潜在源区均出现了向东部区域扩展的趋势,高值区主要集中在成都近周边的东南部地区.

3 结论

(1)2016 ~ 2017 年成都市 $\rho(PM_{2.5})$ 平均值为 $(114.0 \pm 76.4)\ \mu g \cdot m^{-3}$,整体季节变化特征表现为:冬季 > 秋季 > 夏季 > 春季. 与 2016 年冬季相比,除 O_3 外,其他污染物浓度在 2020 年冬季均出现了大幅降低,$PM_{2.5}$、NO_x、SO_2 和 CO 的降幅分别达 50.3%、33.0%、83.1% 和 57.1%.

(2)2016 ~ 2017 年 $\rho(OC)$ 和 $\rho(EC)$ 的平均值分别为 $(21.1 \pm 16.4)\ \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(1.9 \pm 1.3)\ \mu g \cdot m^{-3}$,分别占 $PM_{2.5}$ 的质量分数为 18.5% 和 1.7%. $\rho(SOC)$ 平均值为 $(9.4 \pm 9.1)\ \mu g \cdot m^{-3}$,对 OC 的贡献率平均值为 44.5%,最高占比出现在夏季(52.1%). 与 2016 年冬季相比,2020 年冬季 $\rho(OC)$ 和 $\rho(SOC)$ 分别降低了 52.7% 和 45.7%,而 $\rho(EC)$ 上升了 26.1%.

(3)随污染加重,无论是全年还是污染最重的冬季,OC 和 SOC 浓度均整体呈升高趋势,EC 浓度多呈波动性变化. 相比 2016 年冬季,2020 年冬季 OC 贡献随污染加重变化更趋于平稳,而 SOC 在重污染形成中的贡献愈加突出.

(4)成都市气团来向和污染物潜在源区均呈现出了明显的季节特征,但在同一季节,$PM_{2.5}$ 与碳质组分潜在源区较为相似. 与 2016 年冬季相比,2020 年冬季 $PM_{2.5}$ 与碳质组分在东部的潜在源区出现了不同程度的扩展.

参考文献:

[1] Zhao H, Chen K Y, Liu Z, *et al*. Coordinated control of $PM_{2.5}$ and O_3 is urgently needed in China after implementation of the "Air pollution prevention and control action plan" [J]. Chemosphere, 2021, **270**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.129441.

[2] Maji K J, Li V O, Lam J C. Effects of China's current air pollution prevention and control action plan on air pollution patterns, health risks and mortalities in Beijing 2014-2018 [J]. Chemosphere, 2020, **260**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.127572.

[3] Schauer J J, Mader B T, Deminter J T, *et al*. ACE-Asia intercomparison of a thermal-optical method for the determination of particle-phase organic and elemental carbon [J]. Environmental Science & Technology, 2003, **37**(5): 993-1001.

[4] Kalberer M, Paulsen D, Sax M, *et al*. Identification of polymers as major components of atmospheric organic aerosols [J]. Science, 2004, **303**(5664): 1659-1662.

[5] Jacobson M Z. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols [J]. Nature, 2001, **409**(6821): 695-697.

[6] Yang D D, Zhang H, Li J N. Changes in anthropogenic $PM_{2.5}$ and the resulting global climate effects under the RCP4.5 and RCP8.5 scenarios by 2050 [J]. Earth's Future, 2020, **8**(1), doi: 10.1029/2019EF001285.

[7] Liu F, Tan Q W, Jiang X, *et al*. Effects of relative humidity and $PM_{2.5}$ chemical compositions on visibility impairment in Chengdu, China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2019, **86**: 15-23.

[8] Shi Y, Chen J M, Hu D W, *et al*. Airborne submicron particulate (PM_1) pollution in Shanghai, China: Chemical variability, formation/dissociation of associated semi-volatile components and the impacts on visibility [J]. Science of the Total Environment, 2014, **473-474**: 199-206.

[9] Jiang N, Yin S S, Guo Y, *et al*. Characteristics of mass concentration, chemical composition, source apportionment of $PM_{2.5}$ and PM_{10} and health risk assessment in the emerging megacity in China [J]. Atmospheric Pollution Research, 2018, **9**(2): 309-321.

[10] Wang Y H, Hu L F, Lu G H. Health risk analysis of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in big cities of China [J]. Ecotoxicology, 2014, **23**(4): 584-588.

[11] 张菊, 林瑜, 乔玉红, 等. 成都市西南郊区夏秋季 $PM_{2.5}$ 碳组分化学特征[J]. 环境工程, 2017, **35**(10): 100-104.
Zhang J, Lin Y, Qiao Y H, *et al*. Character of carbonaceous aerosol in $PM_{2.5}$ during summer-autumn period in southwest suburb of Chengdu [J]. Environmental Engineering, 2017, **35**(10): 100-104.

[12] 吴明, 吴丹, 夏俊荣, 等. 成都冬季 $PM_{2.5}$ 化学组分污染特征及来源解析[J]. 环境科学, 2019, **40**(1): 76-85.
Wu M, Wu D, Xia J R, *et al*. Analysis of pollution characteristics and sources of $PM_{2.5}$ chemical components in Chengdu in winter [J]. Environmental Science, 2019, **40**(1): 76-85.

[13] Huang X J, Zhang J K, Luo B, *et al*. Water-soluble ions in $PM_{2.5}$ during spring haze and dust periods in Chengdu, China: Variations, nitrate formation and potential source areas [J]. Environmental Pollution, 2018, **243**: 1740-1749.

[14] 彭妍君, 张鑫, 张强. "大气十条"实施对 2013—2017 年大气气溶胶-辐射相互作用的影响[J]. 环境科学学报, 2021, **41**(2): 311-320.
Peng Y J, Zhang X, Zhang Q. Impact of the implementation of the "Ten Statements of Atmosphere" on the atmospheric aerosol-radiation interaction during 2013-2017 [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2021, **41**(2): 311-320.

[15] 李莉莉, 王琨, 闫耀宗, 等. "大气十条"实施期间哈尔滨市大气污染特征研究[J]. 环境科学与管理, 2020, **45**(2): 31-36.
Li L L, Wang K, Yan Y Z, *et al*. Air pollution characteristics in Harbin during implementation of air pollution control action plan [J]. Environmental Science and Management, 2020, **45**(2): 31-36.

[16] Cai S Y, Wang Y J, Zhao B, *et al*. The impact of the "Air Pollution Prevention and Control Action Plan" on $PM_{2.5}$ concentrations in Jing-Jin-Ji region during 2012-2020 [J]. Science of the Total Environment, 2017, **580**: 197-209.

[17] Wu P, Huang X J, Zhang J K, *et al*. Characteristics and formation mechanisms of autumn haze pollution in Chengdu based on high time-resolved water-soluble ion analysis [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2019, **26**(3): 2649-2661.

[18] 李佳琪, 张军科, 董贵明, 等.《大气污染防治行动计划》后期成都大气 $PM_{2.5}$ 中水溶性无机离子特征[J]. 环境科学, 2021, **42**(12): 5616-5623.

Li J Q, Zhang J K, Dong G M, *et al*. Characterization of water-soluble inorganic ions in atmospheric $PM_{2.5}$ in Chengdu during the later stage of the air pollution prevention and control action plan[J]. Environmental Science, 2021, **42**(12): 5616-5623.

[19] Zhang J K, Huang X J, Chen Y, *et al*. Characterization of lead-containing atmospheric particles in a typical basin city of China: Seasonal variations, potential source areas, and responses to fireworks[J]. Science of the Total Environment, 2019, **661**: 354-363.

[20] 刘琴, 张军科, 黄小娟, 等. 成都春季气溶胶理化性质及不同时段污染特征[J]. 中国环境科学, 2019, **39**(12): 5009-5017.
Liu Q, Zhang J K, Huang X J, *et al*. The physicochemical properties of aerosol and its pollution characteristics in different periods in spring in Chengdu[J]. China Environmental Science, 2019, **39**(12): 5009-5017.

[21] Han T T, Liu X G, Zhang Y H, *et al*. Role of secondary aerosols in haze formation in summer in the megacity Beijing[J]. Journal of Environmental Sciences, 2015, **31**: 51-60.

[22] 贺博文, 聂赛赛, 王帅, 等. 承德市 $PM_{2.5}$ 中碳质组分的季节分布特征及来源解析[J]. 环境科学, 2021, **42**(11): 5152-5161.
He B W, Nie S S, Wang S, *et al*. Seasonal variation and source apportionment of carbonaceous species in $PM_{2.5}$ in Chengde[J]. Environmental Science, 2021, **42**(11): 5152-5161.

[23] Lim H J, Turpin B J. Origins of primary and secondary organic aerosol in Atlanta: Results of time-resolved measurements during the Atlanta supersite experiment[J]. Environmental Science & Technology, 2002, **36**(21): 4489-4496.

[24] Borge R, Lumbreras J, Vardoulakis S, *et al*. Analysis of long-range transport influences on urban PM_{10} using two-stage atmospheric trajectory clusters[J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(21): 4434-4450.

[25] Wang Y Q, Zhang X Y, Draxler R R. Trajstat: Gis-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data[J]. Environmental Modelling & Software, 2009, **24**(8): 938-939.

[26] 陈雨婷, 向卫国, 钱骏, 等. 空气污染气象指数在成都地区的适用性分析[J]. 环境科学与技术, 2019, **42**(S2): 207-214.
Chen Y T, Xiang W G, Qian J, *et al*. Applicability analysis of air pollution weather index in Chengdu area[J]. Environmental Science & Technology, 2019, **42**(S2): 207-214.

[27] 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.

[28] 赵伟, 高博, 卢清, 等. 2006～2019 年珠三角地区臭氧污染趋势[J]. 环境科学, 2021, **42**(1): 97-105.
Zhao W, Gao B, Lu Q, *et al*. Ozone pollution trend in the Pearl River Delta region during 2006- 2019[J]. Environmental Science, 2021, **42**(1): 97-105.

[29] 尹寒梅, 陈军辉, 冯小琼, 等. 宜宾市 $PM_{2.5}$ 中碳组分的污染特性及来源分析[J]. 环境化学, 2019, **38**(4): 738-745.
Yin H M, Chen J H, Feng X Q, *et al*. Pollution characteristics and source analysis of carbonaceous aerosol in $PM_{2.5}$ in Yibin, China[J]. Environmental Chemistry, 2019, **38**(4): 738-745.

[30] 余家燕, 王军, 许丽萍, 等. 重庆城区 $PM_{2.5}$ 化学组分特征及季节变化[J]. 环境工程学报, 2017, **11**(12): 6372-6378.
Yu J Y, Wang J, Xu L P, *et al*. Characteristics of chemical components of $PM_{2.5}$ and its seasonal variations in Chongqing urban area[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2017, **11**(12): 6372-6378.

[31] 张婷婷, 马文林, 亓学奎, 等. 北京城区 $PM_{2.5}$ 有机碳和元素碳的污染特征及来源分析[J]. 环境化学, 2018, **37**(12): 2758-2766.
Zhang T T, MA W L, Qi X K, *et al*. Characteristics and sources of organic carbon and element carbon in $PM_{2.5}$ in the urban areas of Beijing[J]. Environmental Chemistry, 2018, **37**(12): 2758-2766.

[32] 卢文, 王红磊, 朱彬, 等. 南京江北 2014-2016 年 $PM_{2.5}$ 质量浓度分布特征及气象和传输影响因素分析[J]. 环境科学学报, 2019, **39**(4): 1039-1048.
Lu W, Wang H L, Zhu B, *et al*. Distribution characteristics of $PM_{2.5}$ mass concentration and their impacting factors including meteorology and transmission in North Suburb of Nanjing during 2014 to 2016[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2019, **39**(4): 1039-1048.

[33] 赵新锋, 钟欣, 胡嘉骢, 等. 珠海市 $PM_{2.5}$ 时空分布特征及其成因分析[J]. 环境监控与预警, 2017, **9**(6): 53-58.
Zhao X F, Zhong X, Hu J C, *et al*. Spatial temporal variation characteristics and reason analysis of $PM_{2.5}$ concentration in Zhuhai[J]. Environmental Monitoring and Forewarning, 2017, **9**(6): 53-58.

[34] Qi M X, Jiang L, Liu Y X, *et al*. Analysis of the characteristics and sources of carbonaceous aerosols in $PM_{2.5}$ in the Beijing, Tianjin, and Langfang region, China[J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2018, **15**(7), doi: 10.3390/ijerph15071483.

[35] 史芳天, 罗彬, 张巍, 等. 成都平原 $PM_{2.5}$ 中碳质组分时空分布特征与来源[J]. 环境科学, 2020, **41**(2): 520-528.
Shi F T, Luo B, Zhang W, *et al*. Spatio-temporal variations and source apportionment of carbonaceous species in $PM_{2.5}$ across multiple sampling locations in the Chengdu Plain[J]. Environmental Science, 2020, **41**(2): 520-528.

[36] Chen Y J, Sheng G Y, Bi X H, *et al*. Emission factors for carbonaceous particles and polycyclic aromatic hydrocarbons from residential coal combustion in China[J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(6): 1861-1867.

[37] 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.

[38] Cao J J, Wu F, Chow J C, *et al*. Characterization and source apportionment of atmospheric organic and elemental carbon during fall and winter of 2003 in Xi'an, China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2005, **5**(11): 3127-3137.

[39] Schauer J J, Kleeman M J, Cas G R, *et al*. Measurement of emissions from air pollution sources. 2. C_1 through C_{30} organic compounds from medium duty diesel trucks[J]. Environmental Science & Technology, 1999, **33**(10): 1578-1587.

[40] Chen Y J, Zhi G R, Feng Y L, *et al*. Measurements of emission factors for primary carbonaceous particles from residential raw-coal combustion in China[J]. Geophysical Research Letters, 2006, **33**(20), doi: 10.1029/2006GL026966.

[41] Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, *et al*. Measurement of emissions from air pollution sources. 3. C_1-C_{29} organic compounds from fireplace combustion of wood[J]. Environmental Science & Technology, 2001, **35**(9): 1716-1728.

[42] He L Y, Hu M, Huang X F, *et al*. Measurement of emissions of fine particulate organic matter from Chinese cooking[J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(38): 6557-6564.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 43 No. 9

Sep. 15, 2022

CONTENTS

Temporal and Spatial Variation Characteristics of Heavy Metal in Atmospheric Deposition in China from 2000 to 2018 ····· CHEN Qi-yong, GAO Yun-bing, NI Run-xiang, *et al.* (4413)

Simulation of $PM_{2.5}$ Concentration Based on Optimized Indexes of 2D/3D Urban Form ····· LI Sha, ZOU Bin, LIU Ning, *et al.* (4425)

Characteristics of Carbonaceous Species in $PM_{2.5}$ in Chengdu Under the Background of Emission Reduction ····· CHEN Lu-yao, YU Yang-chun, HUANG Xiao-juan, *et al.* (4438)

Characteristics and Health Risk Assessment of Trace Elements in Atmospheric PM_1 During Autumn and Winter in Qingdao ····· LIU Zi-yang, ZHANG Yi-sheng, ZHANG Hou-yong, *et al.* (4448)

Pollution Characteristics and Source Analysis of Atmospheric $PM_{2.5}$-bound Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Port Area ····· WANG Peng-cheng, YANG Ling-xiao, BIE Shu-jun, *et al.* (4458)

Size Distribution and Source Appointment of Road Particles During Winter in Tianjin ····· ZHANG Guo-tao, YIN Bao-hui, BAI Wen-yu, *et al.* (4467)

Characteristics and Impact Factors of Number Concentration of Primary Biological Aerosol Particles in Beijing ····· LIANG Lin-lin, LIU Chang, LIU Xu-yan, *et al.* (4475)

Characteristic Analysis and Source Apportionment of VOCs in Urban Areas of Beijing in Summer ····· MENG Xiang-lai, SUN Yang, LIAO Ting-ting, *et al.* (4484)

Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds (VOCs) in a Typical Industrial Area in Dongguan During Periods of Ozone and Non-ozone Pollution in Summer ····· ZHOU Zhen, XIAO Lin-hai, FEI Lei-lei, *et al.* (4497)

Temporal and Spatial Variation in Odor Pollution and Membrane Barrier Effect in Municipal Solid Waste Landfill ····· HE Pin-jing, LI Jian-chen, LÜ Fan, *et al.* (4506)

Comparison of Health Risk from Sources of Perfluoroalkyl Substances in Taihu Lake for Different Years ····· WU Ting, SUN Shan-wei, FAN Jing-pu, *et al.* (4513)

Pollution Characteristics and Source Apportionment of Typical and Emerging Per- and Polyfluoroalkylated Substances in Tuojiang River Basin ····· SONG Jiao-jiao, WANG Yi-mei, SUN Jing, *et al.* (4522)

Speciation and Risk of Heavy Metals in Surface Sediments of Different Types of Water Bodies in Baiyangdian Lake ····· XU Meng-ya, ZHANG Chao, SHAN Bao-qing, *et al.* (4532)

Distribution Coefficient of QNs in Urban Typical Water and Its Main Environmental Influencing Factors ····· JU Ze-jia, FU Yu, ZHAO Xin-yu, *et al.* (4543)

Ecological Risk Assessment of Quinolones Antibiotics and the Correlation Analysis Between QNs and Physical-Chemical Parameters in Groundwater, Shijiazhuang City ····· CHEN Hui, JU Ze-jia, ZHAO Xin-yu, *et al.* (4556)

Characteristics and Sources of DOM in Lake Sediments Under Different Inundation Environments ····· CHEN Jia, LI Zhong-wu, JIN Chang-sheng, *et al.* (4566)

Characteristics of Phytoplankton Community Structure and Their Relationships with Environmental Factors in Autumn in Qinhe River Basin of Jincheng Region ····· GAO Meng-die, LI Yan-fen, LI Yan-li, *et al.* (4576)

Integrated Assessment of Runoff Quality from Green Roofs with Different Configurations ····· ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, YAN Jing, *et al.* (4587)

Degradation of Chloroquine Phosphate by UV-activated Persulfate ····· LI Yang, XU Bo-hui, DENG Lin, *et al.* (4597)

Removal Performance of Suspended Solid (SS) and Organic Compounds in the Pre-treatment of Actual Pharmaceutical Wastewater by Microbubble Ozonation ····· LIU Chun, CHEN Rui, ZHANG Jing, *et al.* (4608)

Effects of Wastewater Discharge on Antibiotic Resistance Genes and Microbial Community in a Coastal Area ····· CHEN Jia-yu, SU Zhi-guo, YAO Peng-cheng, *et al.* (4616)

Effects of Biochar and Straw Returning on Soil Fungal Community Structure Diversity in Cotton Field with Long-term Brackish Water Irrigation ····· GUO Xiao-wen, CHEN Jing, LU Xiao-yu, *et al.* (4625)

Effects of Organic Materials on Phosphorus Fractions and *phoD*-harboring Bacterial Community in Karst Soil ····· XIA Xin, QIAO Hang, SUN Qi, *et al.* (4636)

Effects of Different Vegetation Types on Soil Microbial Functional Genes and Enzyme Activities in Reclaimed Coal Mine ····· NING Yue-wei, LIU Yong, ZHANG Hong, *et al.* (4647)

Effects of Biochar Application on Yellow Soil Nutrients and Enzyme Activities ····· YUAN Fang, LI Kai-yu, YANG Hui, *et al.* (4655)

Changes in Soil Bacterial Community Diversity in Degraded Patches of Alpine Meadow in the Source Area of the Yellow River ····· SUN Hua-fang, LI Xi-lai, JIN Li-qun, *et al.* (4662)

Effects of Simulated Nitrogen Deposition on Soil Microbial Carbon Metabolism in *Calamagrostis angustifolia* Wetland in Sanjiang Plain ····· WENG Xiao-hong, SUI Xin, LI Meng-sha, *et al.* (4674)

Spatial Distribution of Quinolone Antibiotics and Its Correlation Relationship with Microbial Community in Soil of Shijiazhuang City ····· ZHAO Xin-yu, JU Ze-jia, CHEN Hui, *et al.* (4684)

Composition Characteristics and Construction Mechanism of Microbial Community on Microplastic Surface in Typical Redox Environments ····· GONG Zhi-wei, MA Jie, SU Qu, *et al.* (4697)

Annual Nitrogen Removal Efficiency and Change in Abundance of Nitrogen Cycling Microorganisms in Swine Wastewater Treated by Crop Straw Materials ····· LIU Ming-yu, XIA Meng-hua, JIANG Lei, *et al.* (4706)

Effects of External Carbon Sources on Ultimate Nitrogen Removal Performance and Microbial Community in Secondary Effluent Treating Process ····· WANG Wei, ZHAO Zhong-yuan, ZHANG Xin, *et al.* (4717)

Microbial Community Structure of Activated Sludge for Total Nitrogen Upgrading Project ····· LI Hai-song, WANG Ke-dan, CHEN Xiao-lei, *et al.* (4727)

Analysis of Microbial Interaction Law of Mud Membrane in IFAS Process for Treating Low Carbon Source Sewage in South China ····· HE Jun-guo, JIANG Wei-xun, HE Zhuo-yi, *et al.* (4736)

Abundances and Morphology Patterns of Microplastics Under Different Land Use Types on the Loess Plateau ····· HAO Yong-li, HU Ya-xian, BAI Xiao-xiong, *et al.* (4748)

Evaluation of Heavy Metal Content, Sources, and Potential Ecological Risks in Soils of Southern Hilly Areas ····· WANG Yu, XIN Cun-lin, YU Shi, *et al.* (4756)

Risk Assessment and Attribution Analysis of "Five Toxic" Heavy Metals in Cultivated Land in Lanzhou ····· ZHANG Li-rui, PENG Xin-bo, MA Yan-long, *et al.* (4767)

Distribution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metal Pollution in Farmland Soils and Crops in Luancheng, Shijiazhuang City ····· MENG Xiao-fei, GUO Jun-mei, YANG Jun-xing, *et al.* (4779)

Distribution Characteristics and Risk Assessment of Antimony in Typical Urban Soil ····· SHEN Cheng, YE Wen-juan, QIAN Shi-ying, *et al.* (4791)

Contamination Assessment and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Typical Villages and Towns in a Nonferrous Metal Mining City ····· WANG Feng, HUANG Yan-huan, LI Ru-zhong, *et al.* (4800)

Effect of Citric Acid and Mowing on Enhancing the Remediation of Cadmium Contaminated Soil by Napier Grass (*Pennisetum purpureum* Schum) ····· TANG Qi, WU Gang-fan, GU Jiao-feng, *et al.* (4810)

Arsenic Methylation Efficiency Changes During Paddy Soil Drying and Its Key Influencing Factors Analysis ····· ZHANG Yue, LI Ling-yi, WEN Jiong, *et al.* (4820)

Effects of Exogenous Jasmonic Acid on Arsenic Accumulation and Response to Stress in Roots of Rice Seedlings ····· LI Yan, HUANG Yi-zong, BAO Qiong-li, *et al.* (4831)

Effects of Straw Returning and Fertilizer Application on Soil Nutrients and Winter Wheat Yield ····· SONG Jia-jie, XU Xi-yang, BAI Jin-ze, *et al.* (4839)

Effect of Winter Cover Cropping on Soil Greenhouse Gas Emissions in a Dryland Spring Maize Field on the Loess Plateau of China ····· ZHANG Shao-hong, WANG Jun, FANG Zhen-wen, *et al.* (4848)

Detection of Influencing Factors of Spatial Variability of Soil Respiration in Pangquangou Nature Reserve ····· LI Xiao-min, YAN Jun-xia, DU Zi-qiang, *et al.* (4858)

Temporal and Spatial Variation Characteristics of Methane, Carbon Dioxide, and Nitrous Oxide Concentrations and the Influencing Factors in Small Aquaculture Pond ····· SHI Jie, ZHANG Mi, QIU Ji-li, *et al.* (4867)

Effect of Butyl Xanthate on Pb^{2+} and Cd^{2+} Adsorption by Soil Around a Dressing Plant ····· HU Zhi-hao, GUO Zhao-hui, RAN Hong-zhen, *et al.* (4878)

Sorption Mechanism and Site Energy Distribution of Acetaminophen on Straw-derived Biochar ····· SHANG Cen-yao, GU Ruo-ting, ZHANG Qiang, *et al.* (4888)

Spatial-temporal Variations and Their Driving Forces of the Ecological Vulnerability in the Loess Plateau ····· ZHANG Liang-xia, FAN Jiang-wen, ZHANG Hai-yan, *et al.* (4902)

Mechanism and Application of Plant Growth-Promoting Bacteria in Heavy Metal Bioremediation ····· MA Ying, WANG Yue, SHI Xiao-jun, *et al.* (4911)