

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

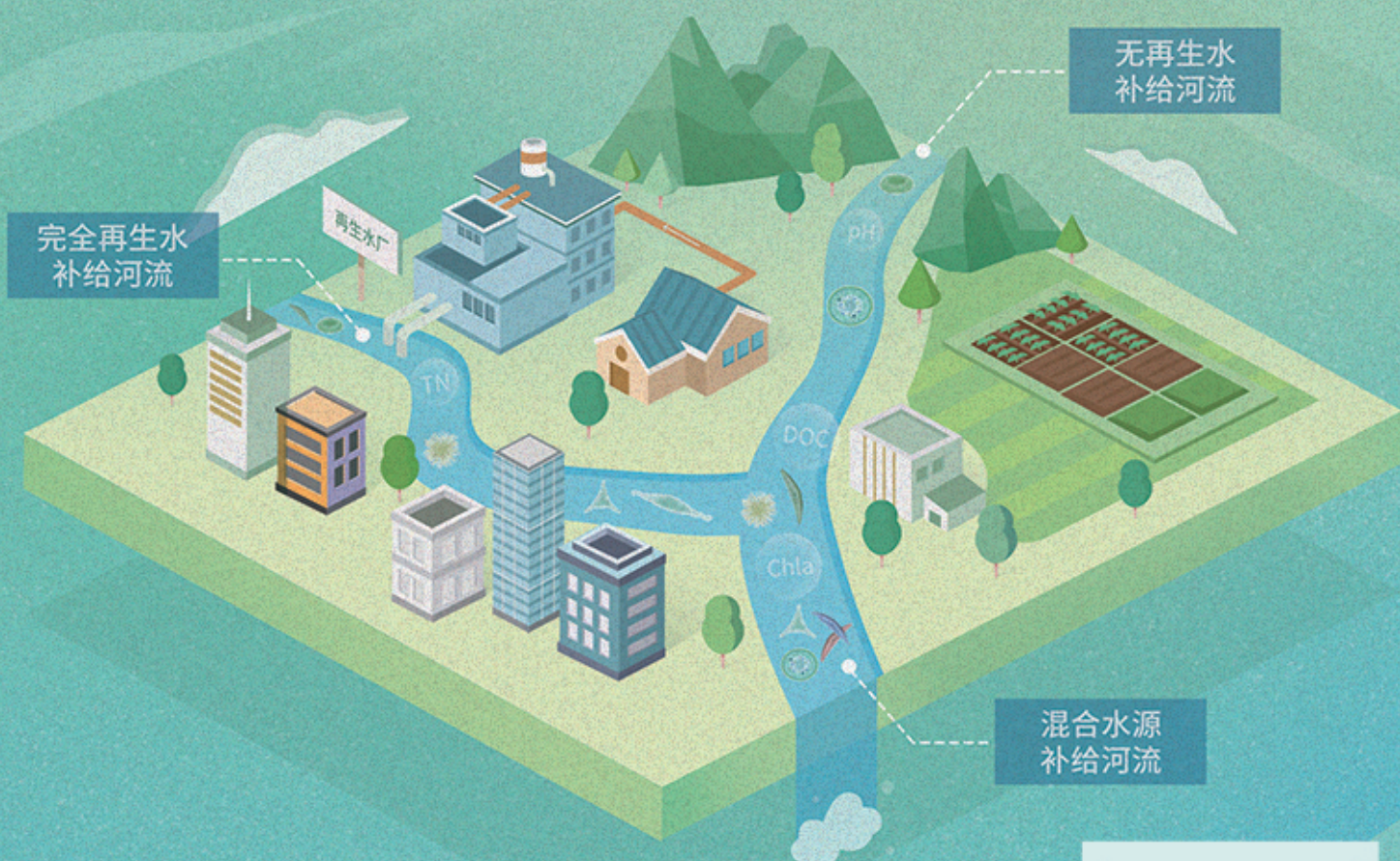
ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

不同水源补给河流浮游植物群落结构特征及其与环境因子的关系

侯颖, 李信, 白灵, 白乙娟, 张淑荣, 王圣瑞, 郑蕾, 丁爱中



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年12月

第43卷 第12期

Vol.43 No.12

目次(卷终)

关中平原城市群 PM _{2.5} 时空演变格局及其影响因素	张军, 金梓函, 王玥, 李旭, 戴恩华 (5333)
中原城市群 PM _{2.5} 浓度驱动因子联动效应及非线性影响	周志衡, 周廷刚, 秦宁 (5344)
长株潭城市群 PM _{2.5} 和 O ₃ 浓度时空分布特征及影响因素分析	刘贤赵, 张国桥, 杨文涛, 吴业荣, 李朝奎, 任毅 (5354)
张掖市城区大气细颗粒物 PM _{2.5} 的化学组成及来源解析	潘成珂, 黄韬, 高宏, 常莉敏, 宋世杰, 毛潇萱, 王佳欣, 赵渊, 马建民 (5367)
2018~2019年冬季天津和青岛 PM _{2.5} 中重金属污染特征与健康风险评估	赵明升, 任丽红, 李刚, 刘亚妮, 赵刚, 张佳浩, 高元官, 杨小阳 (5376)
青岛大气降水中金属浓度、溶解度及其来源解析	孔令冬, 祁建华, 张旭 (5387)
2015~2021年陕西关中城市群臭氧污染变化趋势	赵伟, 王硕, 庞晓蝶, 高博, 卢清, 刘明, 陈来国, 范绍佳 (5399)
海南省背景区域臭氧及其前体物污染特征	谢文晶, 邢巧, 谢东海, 吴晓晨, 胡珊珊, 徐文帅 (5407)
基于双维度校验的珠三角区域臭氧生成机制长期时空演化特征识别	杨雷峰, 谢丹平, 杨俊, 韩静磊, 刘丽君, 袁自冰 (5421)
郑州市夏季大气 VOCs 污染特征及来源解析	齐一谨, 王玲玲, 倪经纬, 何海洋, 赵东旭, 龚山陵 (5429)
兰州市夏季挥发性有机物污染特征及来源解析	杨燕萍, 陈强, 孟宪红, 孙健, 王莉娜, 陶会杰, 杨丽丽 (5442)
地下停车场 VOCs 污染特征与健康风险评估	刘妍, 杨宁, 孙露娜, 吴亚君, 宋鹏飞, 赵耀, 姜昆, 毛洪钧 (5453)
缸内直喷汽油车颗粒物化学组分特征	李家琛, 葛蕴珊, 王浩浩, 王欣, 郝利君, 谭建伟 (5464)
废弃物焚烧处理温室气体排放情景模拟与预测	严薇, 刘舒乐, 吴正方, 高庆先, 杜海波, 马占云, 冯鹏 (5470)
长江颗粒(类)金属元素分布、来源和向海输送	刘珈铭, 吴文涛, 刘笑天, 刘军, 王昊, 臧家业, 张爱周, 冉祥滨 (5478)
澜沧江水系氮磷污染及硝酸盐来源解析	郭树芳, 陈安强, 刁斌, 居学海, 黄宏坤, 刘建香, 毛妍婷, 郭云周, 雷宝坤 (5491)
小浪底水库水沙调控期滨河湿地地下水与河水转化关系	肖春艳, 刘怡凡, 赵同谦, 郭晓明, 陈飞宏, 杨晨 (5499)
磨刀门水道输水水库群饮用水水源水质的时空变化	张坤峰, 昌盛, 张琦, 王思瑞, 谢琼, 张茉莉, 樊月婷, 杨光, 付青 (5509)
疫情背景下长江中游地区典型饮用水源中 PPCPs 分布特征与风险评估	樊月婷, 昌盛, 张坤峰, 涂响, 杨光, 王山军, 张茉莉, 谢琼, 付青 (5522)
北江中上游地表水和沉积物中 PAHs 和 PCBs 污染特征和风险评估	昌盛, 白云松, 涂响, 付青, 张坤峰, 潘杨, 王山军, 杨光, 汪星 (5534)
平朔矿区不同水体水化学特征及氟分布成因	孙龙, 刘廷玺, 段利民, 张文瑞, 郑国峰 (5547)
三峡水库典型消落带土壤 DOM 组分特征及其对有效态镉释放影响	张宝豪, 武亚遵, 徐东昱, 高丽, 李艳艳, 王启文, 高博 (5560)
不同溶解氧条件下沉积物-水体系磷循环	刘笑天, 刘军, 王以斌, 刘珈铭, 吴文涛, 冯耀, 臧家业, 冉祥滨 (5571)
2011~2019年鄱阳湖水质演化特征及主要污染因子解析	谢慧钰, 胡梅, 嵇晓燕, 曹炳伟, 贾世琪, 徐建, 金小伟 (5585)
乌梁素海表层沉积物中营养盐和重金属分布特征以及风险评价	杜彩丽, 黎佳茜, 李国文, 李晓光, 赵琛, 张列宇 (5598)
生物炭吸附雨水径流难生物降解有机氮效能及机制	苏增辉, 孙萍, 陈友媛, 罗冠杨, 王秀海, 郑天元 (5608)
不同水源补给河流浮游植物群落结构特征及其与环境因子的关系	侯颖, 李信, 白灵, 白乙娟, 张淑荣, 王圣瑞, 郑蕾, 丁爱中 (5616)
锰氧化物改性生物炭基质材料对典型喹诺酮类抗生素的吸附及其在人工湿地的应用	高惠子, 田伟君, 张子钰, 邹梦圆, 杨淑洁, 赵婧, 储美乐, 江俊峰 (5627)
KOH 活化小麦秸秆生物炭对废水中四环素的高效去除	徐晋, 马一凡, 姚国庆, 张宇珊, 杨李琪, 周娜, 范世锁 (5635)
改性凹凸棒负载硫化亚铁的制备及其对水中 Mo(VI)的吸附机制	练建军, 郭洪艳, 叶天然, 孔巧平, 徐晴, 吴朝阳, 陈波, 牛司平 (5647)
桉树生物炭负载绿色合成纳米零价铁去除水中 Cr(VI)	刘沁文, 丁爱中, 梁信, 谢领辉, 鄢俊彬, 李娜 (5657)
镁改性硅藻土回收废水氮磷产物对水中 Pb ²⁺ 和 Zn ²⁺ 的去除	吴盈秋, 夏鹏, 李远, 王学江 (5667)
钠化改性河南南部膨润土吸附亚甲基蓝性能分析	程飞鹏, 杨冬亮, 常乐, 吴登峰 (5676)
上海市典型工业用地土壤和地下水重金属复合污染特征及生态风险评价	李晓曼, 李青青, 杨洁, 黄沈发, 张施阳, 吉敏 (5687)
重庆市煤矸山周边农用地土壤重金属污染评价和定量溯源解析	马杰, 刘萍, 刘今朝, 郭春会, 张秀, 王玲灵 (5698)
典型石油场地周边土壤重金属形态特征及源解析	官健, 何连生, 李强, 王耀锋, 曹莹, 刘晓雪, 高存富 (5710)
基于 PMF 模型的垃圾焚烧厂周边农田土壤重金属源解析	张恬雨, 胡恭任, 于瑞莲, 林承奇, 黄华斌 (5718)
香河县农田土壤重金属污染生态与健康风险评估	陈瑜佳, 屈星辰, 张斌, 李现涛, 朱国平, 查同刚 (5728)
地质构造单元交接带表土中重金属污染特征对比及源解析:以重庆城口地区为例	刘永林, 吴梅, 刘睿, 李军, 倪润祥, 刘双燕, 田兴磊, 赵家宇, 刘怡, 夏传波 (5742)
新疆典型地区植物和土壤多环芳烃污染特征、来源解析及健康风险评估	杨北辰, 解启来, 郑芊, 郑晓波, 叶金明, 唐成金, 梁晓晖 (5751)
肥料调控强化象草对重度 Cd 污染农田修复效果	伍港繁, 周航, 唐棋, 辜娇峰, 曾鹏, 廖柏寒 (5761)
微碱性土壤施用烟秆生物炭与磷酸盐降低小麦籽粒镉积累	杨艳征, 张银鸽, 李畅, 扶海超, 秦世玉, 王龙, 刘亥扬, 刘红恩, 睢福庆, 赵鹏 (5769)
产多胺细菌提高小麦 Cd 抗性和消减 Cd 吸收机制	姬明飞, 吴雪姣, 李晓哲, 陈兆进, 姚伦广, 张君, 庞发虎, 韩群 (5778)
硫酸盐还原菌对碱性和酸性农田土壤中重金属的钝化效果及其作用机制	高羽, 刘雨辰, 郭晓方, 吉莉, 张桂香, 张哲海, 夏红丽, 何文峰, 张博远 (5789)
巨大芽孢杆菌对土壤理化性质及植物富集镉的影响	王萍, 李一曼, 王雪佳, 许亚琼, 张书强, 李倩, 徐凯莉, 李荣华, 张增强 (5798)
嘉陵江滨岸带不同土地利用类型土壤真菌群落结构与功能多样性	竹兰萍, 徐飞, 王佳颖, 朱智豪, 张拓, 张富斌 (5808)
添加生物炭对琼北地区双季稻田生物固氮的影响	赵炎, 袁新生, 唐瑞杰, 邵晓辉, 李凯凯, 文昌丽, 陈琦琦, 伍延正, 孟磊, 汤水荣 (5819)
基于 g-C ₃ N ₄ 研究环境中甲氧苄啶的光降解行为及其毒性	朱娜, 王星阳, 焦俊恒, 王磊, 梁栋, 李广科, 桑楠 (5832)
“双碳”目标下中国省域碳排放核算分析	杨柏, 秦广鹏, 郭钦 (5840)
长株潭城市群地类转移的碳传导效应与预测	杨旭, 刘贤赵 (5850)
基于分类的张家港市生活垃圾典型处置情景环境效益分析	张涛, 郑钧文, 孙煜豪, 白冬锐, 杨婷, 张冰, 郭含文, 陈坦, 王洪涛 (5861)
《环境科学》第43卷(2022年)总目录	(5873)
《环境科学》征订启事(5386) 《环境科学》征稿简则(5521) 信息(5607,5741,5768)	

张掖市城区大气细颗粒物 $PM_{2.5}$ 的化学组成及来源解析

潘成珂¹, 黄韬^{1*}, 高宏¹, 常莉敏¹, 宋世杰¹, 毛潇萱¹, 王佳欣¹, 赵渊¹, 马建民²

(1. 兰州大学资源环境学院, 甘肃省环境污染预警与控制重点实验室, 兰州 730000; 2. 北京大学城市与环境学院, 地表过程分析与模拟教育部重点实验室, 北京 100871)

摘要: 为研究张掖市城区大气细颗粒物($PM_{2.5}$)的污染特征和来源, 于2020年9月至2021年7月在张掖市城区的河西学院和湿地博物馆2个采样点进行了 $PM_{2.5}$ 样品采集, 对 $PM_{2.5}$ 浓度、化学组成(水溶性无机离子、碳质组分和元素)和来源进行分析。结果表明, 河西学院和湿地博物馆两个采样点的年均 $\rho(PM_{2.5})$ 分别为 $(73.7 \pm 31.8) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(68.1 \pm 33.3) \mu g \cdot m^{-3}$, 季节浓度均值均呈现春季>冬季>秋季>夏季的变化。河西学院采样点的二次水溶性无机离子(SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+)年均值高于湿地博物馆。河西学院采样点的 $\rho(OC)$ 和 $\rho(EC)$ 分别为 $(9.6 \pm 5.7) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(2.9 \pm 1.6) \mu g \cdot m^{-3}$, 湿地博物馆采样点的年均 $\rho(OC)$ 和 $\rho(EC)$ 分别为 $(9.2 \pm 5.8) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(2.5 \pm 1.3) \mu g \cdot m^{-3}$, 河西学院的含碳组分在各季节均高于湿地博物馆。河西学院和湿地博物馆两个采样点的年均二次有机碳(SOC)在OC中的质量分数分别为49.4%和43.7%, 表明张掖市存在较为严重的二次污染。河西学院和湿地博物馆两个采样点的元素浓度年均值分别为 $(6.0 \pm 3.5) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(5.8 \pm 3.9) \mu g \cdot m^{-3}$, 受到人为源的影响, Zn、Ca、Al和Fe等元素浓度水平相对较高。正定矩阵因子分解模型(PMF)结果表明, 张掖城区 $PM_{2.5}$ 的主要贡献源为二次气溶胶(28.0%)、交通源(25.8%)、扬尘源(15.2%)、燃煤源(14.0%)、生物质燃烧和垃圾焚烧源(12.5%)和工艺过程源(4.5%)。

关键词: $PM_{2.5}$; 张掖市; 化学组成; 正定矩阵因子分解模型(PMF); 源解析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)12-5367-09 DOI: 10.13227/j.hj.kx.202202199

Chemical Composition and Source Apportionment of $PM_{2.5}$ in Zhangye City

PAN Cheng-ke¹, HUANG Tao^{1*}, GAO Hong¹, CHANG Li-min¹, SONG Shi-jie¹, MAO Xiao-xuan¹, WANG Jia-xin¹, ZHAO Yuan¹, MA Jian-min²

(1. Key Laboratory for Environmental Pollution Prediction and Control, Gansu Province, College of Earth and Environmental Sciences, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China; 2. Key Laboratory for Earth Surface Processes, Ministry of Education, College of Urban and Environmental Sciences, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: To analyze the pollution characteristics and sources of atmospheric fine particulate matter ($PM_{2.5}$) in Zhangye City, $PM_{2.5}$ samples were collected at Hexi University and the Wetland Museum from September 2020 to July 2021. The concentration, chemical components (including water-soluble ions, carbon components, and elements), and sources of $PM_{2.5}$ were analyzed. The results showed that the average annual $PM_{2.5}$ concentrations at Hexi University and the Wetland Museum were $(73.7 \pm 31.8) \mu g \cdot m^{-3}$ and $(68.1 \pm 33.3) \mu g \cdot m^{-3}$, respectively, and the seasonal average concentration was highest in spring, followed by that in winter, autumn, and summer. The average annual concentration of secondary ions (SO_4^{2-} , NO_3^- , and NH_4^+) in Hexi University samples was higher than that in Wetland Museum samples. The concentrations of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in $PM_{2.5}$ at Hexi University were $(9.6 \pm 5.7) \mu g \cdot m^{-3}$ and $(2.9 \pm 1.6) \mu g \cdot m^{-3}$, respectively, and those at the Wetland Museum were $(9.2 \pm 5.8) \mu g \cdot m^{-3}$ and $(2.5 \pm 1.3) \mu g \cdot m^{-3}$, respectively. The carbon content of Hexi University samples was higher than that of Wetland Museum samples in all seasons. The mass fractions of annual average secondary organic carbon (SOC) in OC at Hexi University and the Wetland Museum were 49.4% and 43.7%, respectively, indicating that there was serious secondary pollution in Zhangye City. The annual concentrations of the measured elements in $PM_{2.5}$ at Hexi University and Wetland Museum were $(6.0 \pm 3.5) \mu g \cdot m^{-3}$ and $(5.8 \pm 3.9) \mu g \cdot m^{-3}$, respectively. The concentrations of Zn, Ca, Al, Fe, and other elements were relatively high due to the influence of human sources. The results from the positive matrix factorization (PMF) model showed that secondary aerosol contributed 28.0% of $PM_{2.5}$ in Zhangye City, followed by traffic sources (25.8%), dust sources (15.2%), coal sources (14.0%), biomass combustion and waste incineration sources (12.5%), and process sources (4.5%).

Key words: $PM_{2.5}$; Zhangye City; chemical composition; positive matrix factorization (PMF) model; source apportionment

随着经济的快速增长,工业化和城市化进程不断推进,空气污染问题已经成为国内外研究者关注的焦点^[1,2]。 $PM_{2.5}$ 是指空气动力学当量直径 $\leq 2.5 \mu m$ 的细颗粒物^[3],是空气污染物的重要组成,也是目前我国各大、中型城市空气污染的首要问题^[2]。有研究表明,长期暴露在高浓度 $PM_{2.5}$ 环境会增加人体患神经系统疾病和呼吸系统疾病的风险^[4~6],这对人体健康带来巨大影响,并且这种不利的影响对老人和儿童等易感人群尤为明显^[7]。除此之外,

$PM_{2.5}$ 会导致大气能见度降低,通过参与云凝结核的成核过程来影响降雨和降雪等自然过程,从而间接影响气候变化^[8],因此对大气细颗粒物 $PM_{2.5}$ 及其化学组分的研究一直是人们关注的热点。

$PM_{2.5}$ 的成分主要包括水溶性无机离子、碳质

收稿日期: 2022-02-26; 修订日期: 2022-03-24

基金项目: 国家自然科学基金项目(42177351, 41877507)

作者简介: 潘成珂(1997~),女,硕士研究生,主要研究方向为大气颗粒物污染与溯源, E-mail: panchk19@lzu.edu.cn

* 通信作者, E-mail: huangt@lzu.edu.cn

组分、无机元素、活性氧类、水分和微生物等^[9]. 有研究表明,区域大气 $\text{PM}_{2.5}$ 及其化学组分的污染特征和成因差异,与地区的工业结构、地理位置和环境气候差异密切相关^[3,10]. Cao 等^[11] 对我国 14 个城市夏季和冬季 $\text{PM}_{2.5}$ 的组成进行研究,结果显示,在观测期内 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 平均值均大于 $100 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,其中,西安冬季 $\text{PM}_{2.5}$ 的质量浓度超过 $350 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 王跃思等^[12] 基于我国 CARE-China 观测网的研究发现,2017 年全国 74 个重点城市 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 年均值为 $47 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,其 $\text{PM}_{2.5}$ 成分中以 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、碳和地壳元素为主. Wang 等^[13] 在对我国大气 $\text{PM}_{2.5}$ 时空分布的研究发现,我国大气 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度呈现出夏秋季低、秋冬季高的季节变化特征,且北部和西部地区污染较为严重. 近几年,学者们在大气源解析方面也做了大量的研究工作. 贾佳等^[14] 对京津冀地区的研究发现,本地积累和区域传输是重污染过程形成的主要原因. 吴明等^[15] 对成都地区大气 $\text{PM}_{2.5}$ 的来源进行分析,发现成都市区冬季大气 $\text{PM}_{2.5}$ 主要来源为燃煤和生物质燃烧. 安欣欣等^[16] 对北京城区 $\text{PM}_{2.5}$ 进行了观测,并使用 PMF 受体模型对 $\text{PM}_{2.5}$ 的来源进行解析,结果表明二次源和机动车源是北京市 $\text{PM}_{2.5}$ 最主要来源. 苏业旺等^[3] 采集了华中地区武汉、随州和平顶山这 3 个站点的 $\text{PM}_{2.5}$ 样品,发现二次转化源对 3 个站点 $\text{PM}_{2.5}$ 有着最大的贡献,生物质燃烧对分别位于随州和平顶山站点影响较大.

张掖市地处西北河西地区的关键部位,具有复杂多样的生态环境,是西北地区乃至全国重要的生态屏障. 随着近年来“丝绸之路经济带”的建设发展,张掖已然成为经济带沿线的一个重要结点城市^[17],社会经济发展迅猛,城市面积迅速扩张,机动车保有量暴发式增长,巨大的能源耗费导致该地区大气环境问题突出^[18]. 此前,有研究者已经对京津冀、长三角和珠三角等地区城市大气 $\text{PM}_{2.5}$ 污染浓度水平、排放来源和季节性变化特征等问题进行了研究报道^[3,8,11~14],相比而言,河西张掖地区 $\text{PM}_{2.5}$ 污染的研究仍较为缺乏. 本研究于 2020 年 9 月至 2021 年 7 月对张掖市不同季节 $\text{PM}_{2.5}$ 进行采样,分析其中无机元素组分、碳质组分和水溶性无机离子的浓度,分析大气颗粒物的化学组成特征以及主要来源特征,以期为张掖市大气细颗粒物防治提供科学依据.

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究分别于 2020 年秋季(9 月 15 ~ 26 日)、

2020 年冬季(2020 年 12 月 3 日至 2021 年 1 月 13 日)、2021 年春季(4 月 13 ~ 25 日)和 2021 年夏季(6 月 22 日至 7 月 9 日)在张掖市城区采集大气气溶胶 $\text{PM}_{2.5}$ 样品. 图 1 为采样点位示意, $\text{PM}_{2.5}$ 样品的采集点位设在张掖市河西学院 ($100^\circ 26' 27'' \text{E}$, $38^\circ 56' 51'' \text{N}$) 和张掖湿地博物馆环境空气质量自动监测站 ($100^\circ 26' 44'' \text{E}$, $38^\circ 57' 55'' \text{N}$). 其中,河西学院位于城市中心地带,周围交通流量大且人口密集,属于城市居民区;湿地博物馆采样点位于张掖市北部湿地公园内,周围无明显污染源,综合两个采样点的采样分析,可以代表周边区域内大气污染的平均状况. $\text{PM}_{2.5}$ 样品的采集使用武汉天虹公司生产的大气颗粒物中流量采样仪 TH-150A II 型,以直径为 90 mm 的石英滤膜 (Pallflex membrane filters, 美国颇尔) 作为采样介质. 样品采集时,采集流量为 $100 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. 每日采样时段为 09:00 ~ 次日 08:00. 采样结束后,将滤膜放入膜盒内并于 -20°C 冷冻保存. 本研究共采集 $\text{PM}_{2.5}$ 有效样品 138 个,并设置 8 个空白滤膜,与样品滤膜在相同条件下进行保存,作为本研究的空白样品. 整个操作过程佩戴干净手套,以防止样品污染.

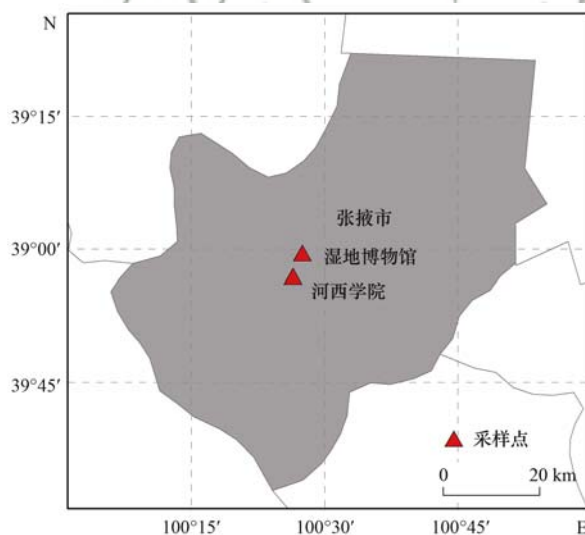


图 1 采样站点分布示意

Fig. 1 Distribution of sampling sites

1.2 样品分析

水溶性无机离子分析:使用美国 DIONEX (ICS-1100) 离子色谱仪分析石英膜上采集的 $\text{PM}_{2.5}$ 中水溶性离子组分. 用陶瓷刀剪取 1/4 滤膜于离心管,剪碎后置于 15 mL 离心管中,加入 10 mL 去离子水后超声 60 min,经 $0.22 \mu\text{m}$ 水系微孔滤膜过滤,取 5 mL 上清液待测. 使用 AS11-HC 分离柱分析测定样品中的 Cl^- 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 共 3 种阴离子,淋洗液为 $30 \text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1} \text{NaOH}$; 使用 CS12A 分离柱分析测定

样品中的 Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Ca²⁺ 和 Mg²⁺ 这 5 种阳离子,淋洗液为 20 mmol·L⁻¹ 甲烷磺酸。

碳质组分分析:使用热/光碳分析仪(DRI Model 2001A,美国)分析有机碳(OC)和元素碳(EC)。取面积为 0.526 cm² 的样品滤膜放入热/光碳分析仪进样器中,使用分析方法为 IMPROVE-A 的热/光反射协议,定义 OC = OC1 + OC2 + OC3 + OC4 + OP; EC = EC1 + EC2 + EC3 - OP。

元素分析:使用日本岛津 EDX-8100 型荧光光谱仪,采用能量色散 X 射线荧光光谱法测定 PM_{2.5} 样品中 27 种元素浓度(Na、Mg、Al、P、S、Cl、K、Ca、Sc、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Se、Br、Sr、Cd、Sn、Sb、Ba 和 Pb),X 射线管最大电压 50 kV,最大电流 1 mA。

1.3 源解析受体模型

使用 EPA PMF 5.0 对 22 种化学组分(Cl⁻、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Ca²⁺、K⁺、Na⁺、Mg²⁺、OC、EC、Mg、Al、Cl、K、Ca、Sc、Ti、Cr、Mn、Fe、Zn 和 Sb)可能的来源进行评估。其基本原理是将样品数据矩阵 X 分解为源成分谱矩阵 F 、源贡献矩阵 G 和残差矩阵 E ^[19,20]。在 PMF 模型中,约束矩阵 F 和 G 为非负,构造目标函数 Q ,采用最小二乘法进行迭代计算,求出使目标函数 Q 取值最小时的 F 和 G 。将样品数目定义为 n ,模型的组分数目为 m ,主要污染源的个数为 p ,则以 n 个样品为行和 m 个组分数目为列组成的浓度矩阵 $X(n \times m)$ 可以被分解为源贡献矩阵 $G(n \times p)$ 和源成分谱矩阵 $F(p \times m)$:

$$X = GF + E \quad (1)$$

式中, E 为残差矩阵。则每个元素的残差 e_{ij} 定义为:

$$e_{ij} = x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} \quad (2)$$

式中, e_{ij} 为第 i 个样品中组分 j 的浓度残差, x_{ij} 为第 i 个样品中组分 j 的浓度, g_{ik} 为第 i 个样品中第 k 个源贡献的浓度, f_{kj} 为第 k 个源 j 组分所占的质量分数, $i=1, \dots, n; j=1, \dots, m; k=1, \dots, p$ 。定义目标函数 Q ,它是残差与测量值标准差比值的平方和,PMF 模型分析目的即使 Q 最小化。 Q 的定义如下:

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left[\frac{x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj}}{u_{ij}} \right]^2 \quad (3)$$

式中, u_{ij} 为第 i 个样品 j 组分的不确定度。不同样品不同组分的不确定度与其浓度有关,当实际测得浓度小于或等于方法检出限(MDL)时,其不确定度为 (5/6)MDL,当实际测得浓度大于 MDL 时,其不确定度定义如下:

$$u = \sqrt{(EF \times c)^2 + (0.5 \times MDL)^2} \quad (4)$$

式中,EF 为样品的误差分数, c 为样品浓度。

本研究结合对张掖市城区污染排放源的调查以及多次运行 PMF 模型程序,最终确定因子数为 6 时,得到最优化诊断结果,此时 Q 值尽量小且最接近样本数与物种数乘积,所得到的源符合实际情况。

1.4 质量控制与保证

采样前滤膜用马弗炉以 500℃ 高温下烘烤 4 h,去除滤膜上附着的有机杂质。滤膜在烘好后放入干燥器中平衡 24 h 后进行称量,平行称重 3 次,取算术平均值并记录重量。样品采集后在相同条件下恒温恒湿 24 h,再次称重。采样过程中对采样滤头及时清理,避免发生交叉污染,确保数据准确。样品测定过程中每 10 个样品加入 1 个标准样品,以检测仪器的稳定性。共设置 8 个采样空白和 8 个流程空白,所有样品的结果均扣除了空白膜的平均背景值。水溶性离子的分析过程中,使用检测空白样品的峰面积标准偏差的 3 倍来定义其检出限。水溶性无机离子的方法检出限分别为 Cl⁻ (0.012 μg·m⁻³)、SO₄²⁻ (0.03 μg·m⁻³)、NO₃⁻ (0.027 μg·m⁻³)、Na⁺ (0.019 μg·m⁻³)、NH₄⁺ (0.02 μg·m⁻³)、K⁺ (0.025 μg·m⁻³)、Mg²⁺ (0.020 μg·m⁻³) 和 Ca²⁺ (0.037 μg·m⁻³)。本研究中,上述 8 种水溶性无机离子的浓度均处于可检测范围,且标准曲线的相关系数均达到 0.999 以上。碳组分分析仪的最低检测限为 0.45 μg·m⁻³ (OC) 和 0.06 μg·m⁻³ (EC),每批样品检测前后都要进行三峰检测并校准仪器,并进行空白膜的测试,空白滤膜的总碳含量均低于样品中总碳含量的 10 倍,分析时扣除每次测定的空白。

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5} 污染特征

张掖市城区河西学院点位 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 年均值为 (73.7 ± 31.8) μg·m⁻³,湿地博物馆点位为 (68.1 ± 33.3) μg·m⁻³,分别是《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)中 II 类标准年均限值(35 μg·m⁻³)^[21] 的 2.1 倍和 1.9 倍,是世界卫生组织(WHO)规定浓度限值(5 μg·m⁻³)的 14.7 倍和 13.6 倍。采样期内,河西学院和湿地博物馆采样点的 PM_{2.5} 浓度变化趋势基本一致,河西学院采样点 PM_{2.5} 浓度相对较高,这主要由于河西学院位于城市中心人类活动密集区域,人为活动影响较大。 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ (μg·m⁻³) 具有较为明显的季节变化规律,河西学院和湿地博物馆点位均表现为春季(110.5 ± 41.0 和 98.2 ± 37.1) > 冬季(63.2 ± 17.8 和 60.7 ± 30.9) > 秋季(60.8 ± 16.1 和 57.3 ± 6.4) > 夏季(58.6 ± 12.1 和 55.5 ±

18.4), 其季节变化趋势也与洛阳、郑州和兰州等城市相似^[22~24]. 冬季因采暖期燃煤量增加的影响, $\text{PM}_{2.5}$ 较高, 同时该季节风速低, 降水少, 逆温现象频繁, 大气扩散条件也较差. 而在春季张掖地区受沙尘天气影响 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度也较高.

2.2 $\text{PM}_{2.5}$ 中主要化学组分特征

2.2.1 $\text{PM}_{2.5}$ 水溶性无机离子特征分析

采样期间 2 个点位 $\text{PM}_{2.5}$ 中水溶性离子浓度变化如图 2 所示. 张掖市城区河西学院与湿地博物馆采样点 $\text{PM}_{2.5}$ 中 8 种水溶性离子浓度变化范围分别为 $5.4 \sim 39.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $5.3 \sim 39.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 年均值分别为 $(16.4 \pm 6.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(14.8 \pm 6.3) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 8 种离子浓度在 2 个采样点依次均表现为: $\text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^- > \text{NH}_4^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{Cl}^- > \text{Na}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+$. 两个采样点不同季节水溶性无机离子的总量 ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 分别为: 冬季 (20.9 ± 6.0 和 18.4 ± 5.3) $>$ 春季 (14.5 ± 5.5 和 12.8 ± 6.1) $>$ 秋季 (11.2 ± 3.4 和 9.6 ± 1.9) $>$ 夏季 (10.7 ± 3.8 和 9.0 ± 2.3). 二次离子 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ (合称为 SNA) 是水溶性无机离子中的主要成分. 河西学院采样点和湿地博物馆采样点 $\rho(\text{SNA})$ 的年均值分别为 $(10.6 \pm$

$6.3) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(9.6 \pm 5.5) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占总水溶性无机离子浓度的比例达到 64.3% 和 64.5%. $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ (质量比) 可用于比较燃煤排放源和机动车尾气排放源对大气 $\text{PM}_{2.5}$ 的相对贡献, 若比值大于 1, 表明机动车尾气排放对 NO_x 与 SO_2 的贡献大于燃煤^[2]. 河西学院采样点 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 的季节变化为冬季 (1.0 ± 0.3) $>$ 夏季 (0.8 ± 0.5) $>$ 秋季 (0.7 ± 0.2) $>$ 春季 (0.6 ± 0.3); 湿地博物馆采样点为冬季 (0.9 ± 0.3) $>$ 春季 (0.8 ± 0.4) $>$ 夏季 (0.7 ± 0.5) $>$ 秋季 (0.7 ± 0.1). NO_3^- 和 SO_4^{2-} 的生成途径与气象条件密切相关, 冬季气温和相对湿度的降低在不同程度上抑制了 SO_4^{2-} 均相和非均相两种生成途径, 而冬季寒冷的天气既不利于汽油等燃料的充分燃烧, 加剧了硝酸盐前体物 NO_x 的排放, 同时低温也抑制了 NO_3^- 的挥发, 因此冬季的比值显著高于其他三季. 采样期间, 张掖城区的 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 年均值为 0.8, 且其中 >1 的天数约占 26.8%, 通常认为这是由于固定源的贡献大于移动源所致. Ca^{2+} 主要来源于地壳, 是风沙扬尘的标志物, 春季的浓度高于其他季节, 主要由于张掖市地处内陆, 其北部分布有巴丹吉林沙漠, 是我国第二大沙漠, 春季湿度较低, 风速较大, 易出现风沙扬尘天

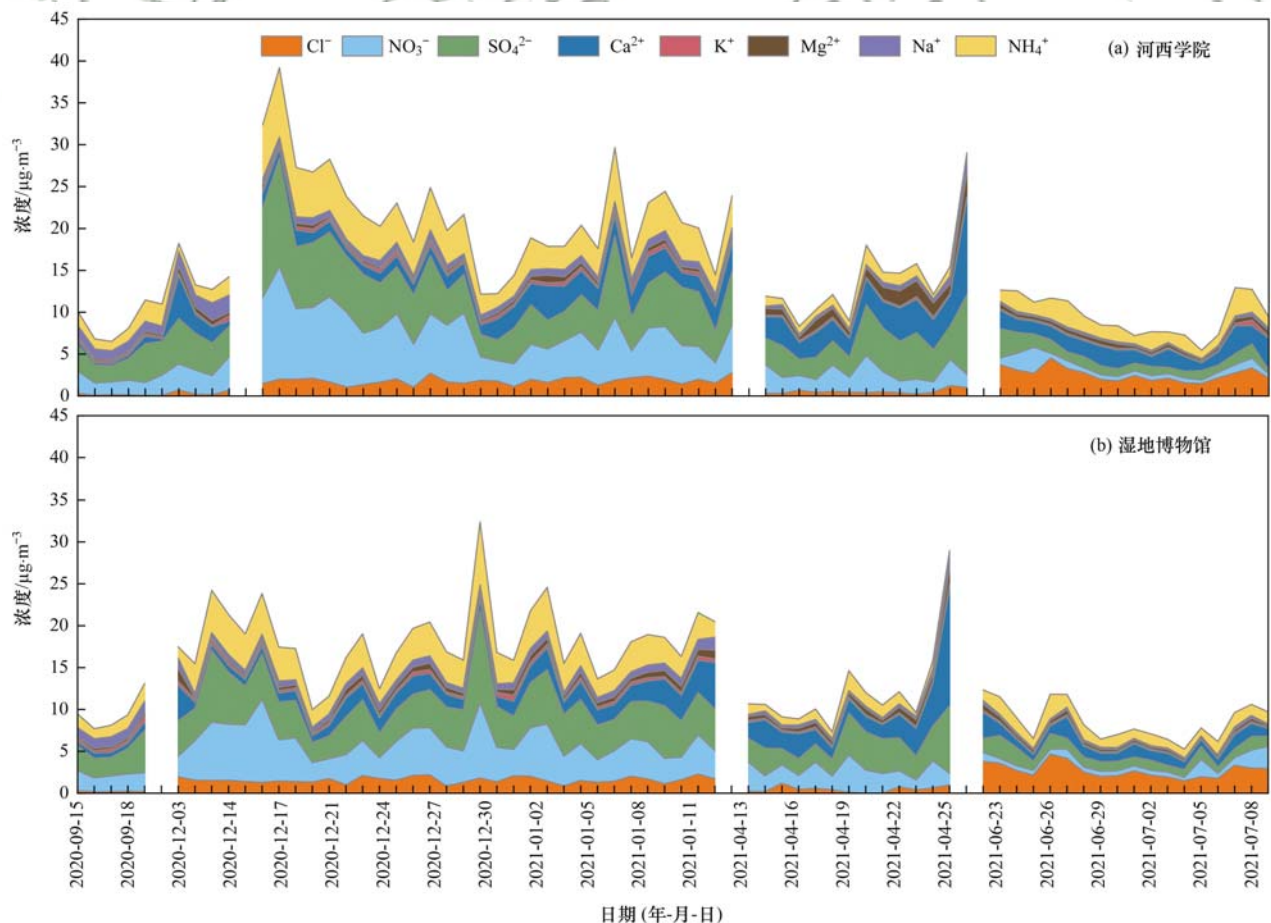


图 2 采样期间张掖市城区 $\text{PM}_{2.5}$ 中水溶性无机离子浓度

Fig. 2 Mass concentrations of water-soluble ions in sampling sites during sampling period

气. Cl⁻ 通常作为生物质燃烧和燃煤的标志物, 冬季浓度升高可能与采暖期燃烧排放有关, 夏季则可能与工业排放增多有关^[25].

2.2.2 PM_{2.5} 碳质组分分析

OC 和 EC 是碳在大气 PM_{2.5} 中的主要存在形式. 采样期间, 河西学院采样点 PM_{2.5} 中的 $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 年均值分别为 $(9.6 \pm 5.7) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(2.9 \pm 1.6) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; 湿地博物馆采样点 PM_{2.5} 中的 $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 年均值分别为 $(9.2 \pm 5.8) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(2.5 \pm 1.3) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 2 个采样点位 OC 和 EC 的浓度表现出相同的变化特征, 呈现冬季 > 秋季 > 春季 > 夏季的变化趋势(图 3). 河西学院的含碳组分在各季节均高于湿地博物馆. 一般来说, 当 OC 与 EC 相关性

较强时, 两者可能存在相似的来源^[26]. 如图 4 所示, 河西学院和湿地博物馆点位 R^2 分别为 0.72 和 0.80, 这表明采样期间张掖城区 PM_{2.5} 中 OC 和 EC 的来源存在一定的相似性. 此外, OC/EC 的比值常被用来判断大气中二次污染的程度, 一般来说, OC/EC 的值大于 2 时, 说明大气中存在二次有机碳(SOC)^[27]. 河西学院和湿地博物馆点位 $\rho(\text{OC})/\rho(\text{EC})$ 的年均值分别为 (4.0 ± 1.5) 和 (4.1 ± 1.7) , 与国内其他城市比较, 高于海口市(2.2)^[28]、石家庄市(3.1)^[29] 和成都市(3.4)^[30], 低于洛阳市(11.3)^[22] 和阳泉市(4.8)^[31]. 这表明张掖市城区碳质气溶胶的污染整体较为严重, 而 SOC 对污染具有较大的影响.

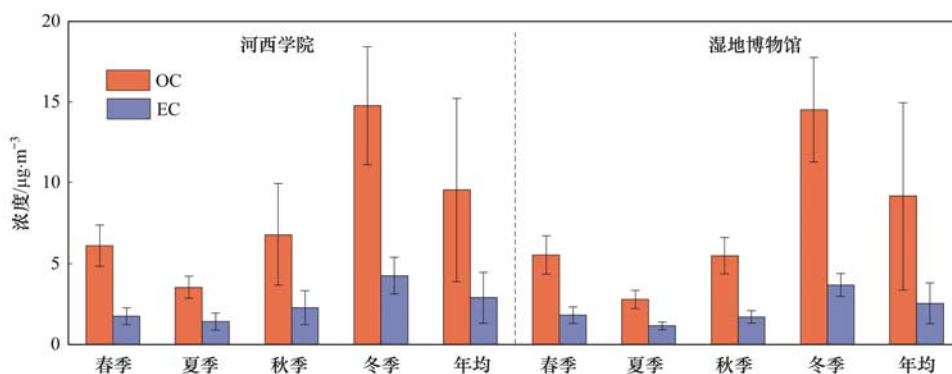


图 3 PM_{2.5} 中碳质组分时空分布

Fig. 3 Spatiotemporal distribution of carbon component concentrations in PM_{2.5}

由于 SOC 形成机制比较复杂, 目前尚无直接测定颗粒物中二次有机碳含量的方法, Turpin^[26] 等和 Castro 等^[32] 提出使用 OC/EC 最小比值法对 SOC 进行估算, 计算公式如下:

$$\text{SOC} = \text{OC} - \text{EC} \times (\text{OC}/\text{EC})_{\min} \quad (5)$$

式中, $(\text{OC}/\text{EC})_{\min}$ 为样品中 OC/EC 的最小值. 计算结果显示, 河西学院采样点 $\rho(\text{SOC})$ 年均值为 $(5.3 \pm 3.7) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, SOC 对 OC 的贡献率(SOC/OC, 下同)为 49.4%; 湿地博物馆采样点 $\rho(\text{SOC})$ 年均值为 $(5.0 \pm 4.0) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, SOC 对 OC 的贡献率为 43.7%. 张掖

城区 PM_{2.5} 中 SOC 的年均贡献率要低于阳泉(91.0%)^[31] 和银川(65.2%)^[33] 等城市, 但与重庆(45.7%)^[34] 和成都(46.0%)^[35] 接近. 整体而言, 本研究中位于张掖城区的 2 个点位均存在一定的 SOC 污染, 其中河西学院的二次污染更加严重.

2.2.3 PM_{2.5} 元素特征分析

观测期间, 张掖市城区河西学院采样点和湿地博物馆采样点 PM_{2.5} 中 27 种测定元素的总浓度分别为 $(6.0 \pm 3.5) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(5.8 \pm 3.9) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 从季节变化来看, 测定元素总浓度在春季最高, 其次为秋

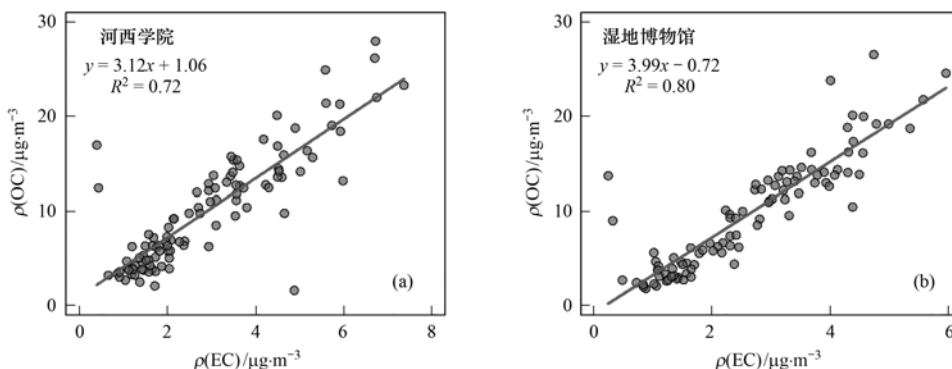


图 4 PM_{2.5} 中 OC 和 EC 相关性

Fig. 4 Relationship between OC and EC

季和冬季,夏季最低(图5). 本研究中,Al、Fe、Ca、K和Mg等地壳元素^[36]具有较高含量,这些元素之和在2点位占总金属元素的比例分别为36.8%和46.2%. Zn元素的浓度最高,在2个点位的年均值分别为 $1.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $1.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,大气颗粒物中Zn主要来源为生物质燃烧、燃煤和垃圾焚烧,机动车轮胎磨损也会产生Zn. S元素在2个点位的年均值分别为 $0.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,而S主要来源

于燃煤排放. 测定元素中的Pb和Cd浓度均低于我国《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)的年均限值($0.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.005 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$),Pb主要来源于燃煤和机动车排放,而Cd不仅来源于道路尘,还来源于土壤尘. 此外,Cr和As均超过了年均限值($0.000\,025 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.006 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$),表明两种重金属污染严重. 本研究结果表明,张掖市的空气质量不仅受到本地扬尘的影响,还受到人为活动的影响.

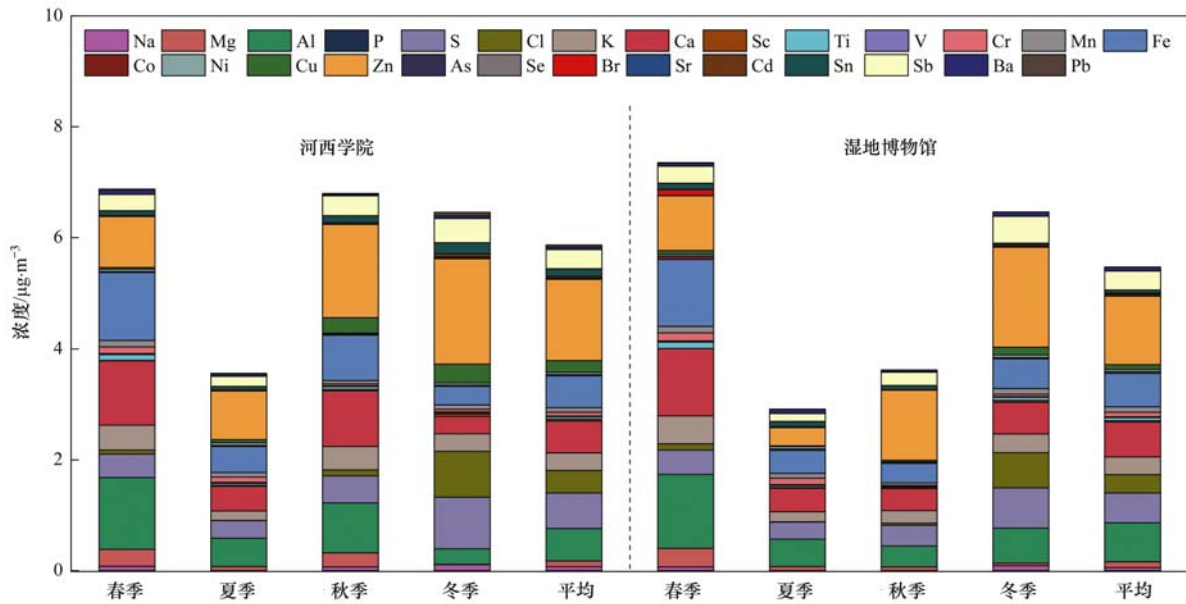


图5 $\text{PM}_{2.5}$ 中无机元素时空分布

Fig. 5 Spatiotemporal distribution of main elements in $\text{PM}_{2.5}$

2.3 $\text{PM}_{2.5}$ 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6和图7所示. 因子

1中Sb、Ni、OE、EC、 Na^{2+} 、 Mg^{2+} 和K载荷较高,Sb和Ni通常来源于垃圾焚烧^[37,38],OC、EC和K则为生物质燃烧的重要标志物^[39],故因子1可识别为

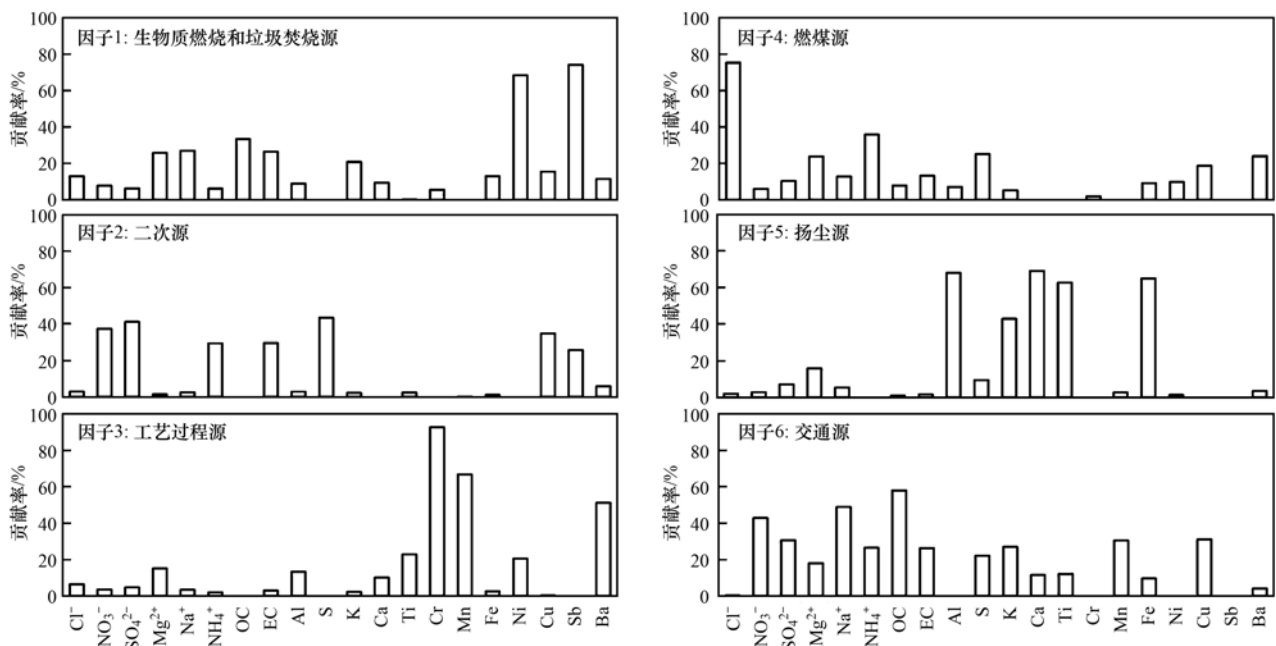


图6 张掖城区大气 $\text{PM}_{2.5}$ 来源成分谱

Fig. 6 Source profiles of $\text{PM}_{2.5}$ calculated using PMF in Zhangye City

生物质燃烧和垃圾焚烧源的贡献,其贡献率为 12.5% (图 7). 因子 2 中 NH_4^+ 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 等载荷较高,它们主要来自 NO_x 和 SO_2 等气态前体物的二次转化^[1],因子 2 可识别为二次源. 整体来看,二次无机源是 PM_{2.5} 最大来源,其贡献率为 28.0%. 因子 3 中 Cr、Mn 和 Ba 荷载最高,Cr、Mn 和 Ba 主要来自钢铁冶炼和冶金锻造等工业过程的排放^[23,40,41],故因子 3 可识别为工业源,该因子贡献率为 4.5%. 因子 4 中 Cl^- 、 NH_4^+ 和 S 载荷较高,S 和 Cl^- 均为燃煤污染的标志物^[42],而 NH_4^+ 通常由气态前体物二次转化产生也与化石燃料的燃烧有关^[43],因子 4 可识别为燃煤源,其贡献率为 14.0%. 因子 5 中载荷较高的为 Ca、Al、Fe、Ti 和 K 等,这些一般认为是地壳物质的主要组成元素^[44,45],因子 5 可被看作是扬尘源,该因子贡献率为 15.2%. 因子 6 中的 OC、EC、Cu、Mn 和 K 的载荷较高,主要来源于汽油燃烧、制动刹车和轮胎磨损^[37,46,47],故可识别为交通源,其贡献率为 25.8%. 整体来看,二次源是 PM_{2.5} 最大来源,其次是交通源,扬尘源、煤燃烧源和生物质燃烧源三者贡献率相差不大,工业源的贡献率最低. 因此针对张掖城区的污染情况,应该在加强一次排放管控的基础上,更加重视对二次组分,特别是二次离子形成的前体物的管控.

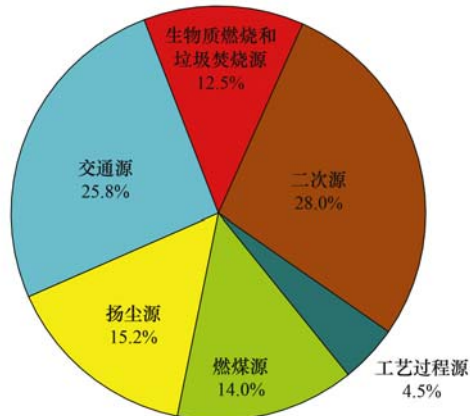


图 7 张掖城区 PM_{2.5} 主要来源贡献率

Fig. 7 Contributions of PM_{2.5} sources in Zhangye City

3 结论

(1)河西学院和湿地博物馆 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 年均值分别为 $(73.7 \pm 31.8) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(68.1 \pm 33.3) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,是《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 二级标准年均限值 ($35 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) 的 2.1 倍和 1.9 倍.2 个点位 PM_{2.5} 质量浓度季节变化特征一致,呈现:春季 > 冬季 > 秋季 > 夏季.

(2)河西学院和湿地博物馆 PM_{2.5} 中水溶性无机离子浓度年均值分别为 $(16.4 \pm 6.9) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和

$(14.8 \pm 6.3) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 是水溶性无机离子中浓度较高的组分. 张掖城区 $\rho(\text{NO}_3^-)/\rho(\text{SO}_4^{2-})$ 的年均值为 0.8,表明燃煤等固定源对 PM_{2.5} 污染具有较高贡献.

(3)河西学院和湿地博物馆 PM_{2.5} 中 $\rho(\text{OC})$ 、 $\rho(\text{EC})$ 浓度分别为 $(9.6 \pm 5.7) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $(2.9 \pm 1.6) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(9.2 \pm 5.8) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $(2.5 \pm 1.3) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 浓度水平的季节性差异均表现为冬季最高,夏季最低. OC 和 EC 浓度水平表现出相关性,说明其具有较为相似的排放来源,两个采样点 SOC 对 OC 的贡献率分别为 49.4% 和 43.7%,这表明张掖市城区存在较为严重的二次污染,且河西学院点位更为严重.

(4)河西学院和湿地博物馆 PM_{2.5} 中元素浓度的年均值分别为 $(6.0 \pm 3.5) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(5.8 \pm 3.9) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 各元素浓度水平具有显著的季节性差异,春季最高,夏季最低. Zn、Al、Ca 和 Fe 元素的浓度较高,表明张掖市城区除建筑扬尘与自然扬尘外,交通、冶金工业和垃圾焚烧污染也对大气 PM_{2.5} 有较大影响. 此外,微量元素 Cr 和 As 超过了国家标准限值.

(5)源解析结果表明,张掖市城区 PM_{2.5} 主要来源为二次源,其次为交通源,扬尘源、煤燃烧源和生物质燃烧源三者贡献率相差不大,工业源的贡献率最低. 因此针对张掖城区的污染情况,应该在加强一次排放管控的基础上,更加重视对二次组分,特别是二次离子形成的前体物的管控.

参考文献:

- [1] Liang C S, Duan F K, He K B, *et al.* Review on recent progress in observations, source identifications and countermeasures of PM_{2.5} [J]. *Environment International*, 2016, **86**: 150-170.
- [2] Yang F, Tan J, Zhao Q, *et al.* Characteristics of PM_{2.5} speciation in representative megacities and across China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11** (11): 5207-5219.
- [3] 苏业旺,刘威杰,毛瑶,等. 华中地区夏季 PM_{2.5} 中水溶性离子污染特征及来源分析[J]. *环境科学*, 2022, **43** (2): 619-628.
- [4] Su Y W, Liu W J, Mao Y, *et al.* Characteristics and source analysis of water-soluble inorganic pollution in PM_{2.5} during summer in central China [J]. *Environmental Science*, 2022, **43** (2): 619-628.
- [5] 高知义. 大气颗粒物心血管毒性效应机制[J]. *国外医学(卫生学分册)*, 2009, **36** (3): 183-187.
- [6] GBD 2013 Mortality and Causes of Death Collaborators. Global, regional, and national age-sex specific all-cause and cause-specific mortality for 240 causes of death, 1990-2013: a systematic analysis for the Global Burden of Disease Study 2013 [J]. *The Lancet*, 2015, **385** (9963): 117-171.
- [7] Graff D W, Cascio W E, Rappold A, *et al.* Exposure to concentrated coarse air pollution particles causes mild

- cardiopulmonary effects in healthy young adults [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2009, **117**(7): 1089-1094.
- [7] World Health Organization (WHO). Ambient (outdoor) air pollution [EB/OL]. [https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-\(outdoor\)-air-quality-and-health](https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-(outdoor)-air-quality-and-health), 2021-09-22.
- [8] 徐楠, 王甜甜, 李晓, 等. 北京冬季 PM_{2.5} 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_{2.5} in winter in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(5): 2101-2109.
- [9] Cheng Z, Luo L N, Wang S X, *et al.* Status and characteristics of ambient PM_{2.5} pollution in global megacities[J]. *Environment International*, 2016, **89-90**: 212-221.
- [10] 马红璐, 赵欣, 陆建刚, 等. 宿迁市 PM_{2.5} 中水溶性无机离子的季节特征和来源分析[J]. *环境科学*, 2020, **41**(9): 3899-3907.
- Ma H L, Zhao X, Lu J G, *et al.* Seasonal characteristics and source analysis of water-soluble inorganic ions in PM_{2.5} in Suqian City [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(9): 3899-3907.
- [11] Cao J J, Shen Z X, Chow J C, *et al.* Winter and summer PM_{2.5} chemical compositions in fourteen Chinese cities[J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2012, **62**(10): 1214-1226.
- [12] 王跃思, 李文杰, 高文康, 等. 2013~2017 年中国重点区域颗粒物质量浓度和化学成分变化趋势[J]. *中国科学: 地球科学*, 2020, **50**(4): 453-468.
- Wang Y S, Li W J, Gao W K, *et al.* Trends in particulate matter and its chemical compositions in China from 2013-2017 [J]. *Science China Earth Sciences*, 2019, **62**(12): 1857-1871.
- [13] Wang J D, Zhao B, Wang S X, *et al.* Particulate matter pollution over China and the effects of control policies [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **584-585**: 426-447.
- [14] 贾佳, 韩力慧, 程水源, 等. 京津冀区域 PM_{2.5} 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_{2.5} and secondary inorganic ions in Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. *China Environmental Science*, 2018, **38**(3): 801-811.
- [15] 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.
- [16] 安欣欣, 曹阳, 王琴, 等. 北京城区 PM_{2.5} 各组分污染特征及来源分析[J]. *环境科学*, 2022, **43**(5): 2251-2261.
- An X X, Cao Y, Wang Q, *et al.* Chemical characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in urban of Beijing [J]. *Environmental Science*, 2022, **43**(5): 2251-2261.
- [17] Zhou X, Li Z Q, Zhang T J, *et al.* Chemical nature and predominant sources of PM₁₀ and PM_{2.5} from multiple sites on the Silk Road, Northwest China [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2021, **12**(1): 425-436.
- [18] Ma X Y, Jia H L. Particulate matter and gaseous pollutions in three megacities over China: situation and implication [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **140**: 476-494.
- [19] Tian Y Z, Zhang Y F, Liang Y L, *et al.* PM_{2.5} source apportionment during severe haze episodes in a Chinese megacity based on a 5-month period by using hourly species measurements: explore how to better conduct PMF during haze episodes [J]. *Atmospheric Environment*, 2021, **224**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117364.
- [20] Dai Q L, Hopke P K, Bi X H, *et al.* Improving apportionment of PM_{2.5} using multisite PMF by constraining G-values with a priori information [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **736**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.139657.
- [21] GB 3095-2012, 环境空气质量标准[S].
- GB 3095-2012, Ambient air quality standard[S].
- [22] 孙佳槟, 董喆, 李利萍, 等. 洛阳市大气细颗粒物化学组分特征及溯源分析[J]. *环境科学*, 2021, **42**(12): 5624-5632.
- Sun J B, Dong Z, Li L P, *et al.* Characteristics of chemical composition and source apportionment of atmospheric fine particulate matter in Luoyang [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(12): 5624-5632.
- [23] 王申博, 姜亚敏, 徐艺斐, 等. 郑州市民运会期间大气 PM_{2.5} 改善效果评估[J]. *环境科学*, 2020, **41**(7): 3004-3011.
- Wang S B, Lou Y M, Xu Y F, *et al.* Evaluation of the reduction in PM_{2.5} concentration during the national traditional games of ethnic minorities in Zhengzhou [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(7): 3004-3011.
- [24] 王新, 聂燕, 陈红, 等. 兰州城区大气 PM_{2.5} 污染特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2016, **37**(5): 1619-1628.
- Wang X, Nie Y, Chen H, *et al.* Pollution characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in Lanzhou City [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(5): 1619-1628.
- [25] 李英红, 谭吉华, 饶志国, 等. 兰州市大气细颗粒物中水溶性离子的污染特征[J]. *环境化学*, 2016, **35**(9): 1799-1807.
- Li Y H, Tan J H, Rao Z G, *et al.* Pollution characteristics of water soluble ions in atmospheric fine particles in Lanzhou [J]. *Environmental Chemistry*, 2016, **35**(9): 1799-1807.
- [26] Turpin B J, Huntzicker J J. Identification of secondary organic aerosol episodes and quantitation of primary and secondary organic aerosol concentrations during SCAQS [J]. *Atmospheric Environment*, 1995, **29**(23): 3527-3544.
- [27] Chow J C, Watson J G, Lu Z Q, *et al.* Descriptive analysis of PM_{2.5} and PM₁₀ at regionally representative locations during SJVAQS/AUSPEX [J]. *Atmospheric Environment*, 1996, **30**(12): 2079-2112.
- [28] Liu B S, Zhang J Y, Wang L, *et al.* Characteristics and sources of the fine carbonaceous aerosols in Haikou, China [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **199**: 103-112.
- [29] 姜建彪, 常青, 冯媛, 等. 石家庄市大气颗粒物中有机碳和元素碳的季节变化特征[J]. *环境监控与预警*, 2017, **9**(2): 41-45.
- Jiang J B, Chang Q, Feng Y, *et al.* Seasonal variation of organic carbon and elemental carbon in atmospheric particles in Shijiazhuang [J]. *Environmental Monitoring and Forewarning*, 2017, **9**(2): 41-45.
- [30] 徐雪梅, 冯小琼, 陈军辉, 等. 成都市主城区 PM_{2.5} 碳组分污染特征分析[J]. *环境化学*, 2021, **40**(8): 2481-2492.
- Xu X M, Feng X Q, Chen J H, *et al.* Pollution characteristics of carbonaceous components in PM_{2.5} in the Chengdu city [J]. *Environmental Chemistry*, 2021, **40**(8): 2481-2492.
- [31] 刘倬诚, 牛月圆, 吴婧, 等. 山地型城市冬季大气重污染过程特征及成因分析[J]. *环境科学*, 2021, **42**(3): 1306-1314.
- Liu Z C, Niu Y Y, Wu J, *et al.* Characteristics and cause

- analysis of heavy air pollution in a mountainous city during winter [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(3): 1306-1314.
- [32] 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.
- [33] 李慧, 张敬巧, 王涵, 等. 银川市冬季 PM_{2.5} 重污染特征、来源与成因分析[J]. *环境科学研究*, 2020, **33**(2): 289-295.
Li H, Zhang J Q, Wang H, *et al.* Pollution characteristics and source analysis of PM_{2.5} in Yinchuan city during winter [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2020, **33**(2): 289-295.
- [34] 冯婷, 蔡一鸣, 李振亮, 等. 重庆市典型城区 PM_{2.5} 含碳气溶胶季节变化和来源解析[J]. *环境科学学报*, 2021, **41**(5): 1703-1717.
Feng T, Cai Y M, Li Z L, *et al.* Seasonal variation and source apportionment of PM_{2.5} carbonaceous aerosol in a typical urban area of Chongqing [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2021, **41**(5): 1703-1717.
- [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] Zhang D Z, Iwasaka Y. Nitrate and sulfate in individual Asian dust-storm particles in Beijing, China in Spring of 1995 and 1996 [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(19): 3213-3223.
- [37] 李艳侠. 大气沉降中微量元素的变化特征及来源[D]. 上海: 上海师范大学, 2016.
- [38] 赵委托, 陈娟, 胡渭平, 等. 电镀企业周边大气颗粒物 PM_{2.5}、PM₁₀ 和 TSP 中重金属分布特征及健康风险评估[J]. *生态毒理学报*, 2017, **12**(3): 470-484.
Zhao W T, Chen J, Hu W P, *et al.* Distribution characteristics of heavy metals in PM_{2.5}, PM₁₀ and TSP around electroplating factories and the health risk assessment [J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2017, **12**(3): 470-484.
- [39] 甘小凤, 曹军骥, 王启元, 等. 西安市秋季大气细粒子 (PM_{2.5}) 中化学元素的浓度特征和来源[J]. *安徽农业科学*, 2011, **39**(19): 11692-11694, 11697.
Gan X F, Cao J J, Wang Q Y, *et al.* Concentration characteristics and sources of chemical elements in atmospheric fine particles (PM_{2.5}) in Autumn in Xi'an City [J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2011, **39**(19): 11692-11694, 11697.
- [40] 王化明, 张康, 张星. X 射线荧光光谱扩展基本参数法测定不锈钢中的多种成分[J]. *中国无机分析化学*, 2017, **7**(4): 73-79.
Wang H M, Zhang K, Zhang X. Determination of various components in stainless steel with extended basic parameter method using XRF spectrometry [J]. *Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry*, 2017, **7**(4): 73-79.
- [41] Wu G J, Xu B Q, Yao T D, *et al.* Heavy metals in aerosol samples from the Eastern Pamirs collected 2004-2006 [J]. *Atmospheric Research*, 2009, **93**(4): 784-792.
- [42] Hien P D, Binh N T, Truong Y, *et al.* Comparative receptor modelling study of TSP, PM₂ and PM_{2.5} in Ho Chi Minh City [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(15): 2669-2678.
- [43] 段小琳, 闫雨龙, 邓萌杰, 等. 长治市冬季典型大气重污染过程特征分析[J]. *环境化学*, 2020, **39**(12): 3327-3335.
Duan X L, Yan Y L, Deng M J, *et al.* Characteristic of typical atmospheric heavy pollution episodes in winter of Changzhi [J]. *Environmental Chemistry*, 2020, **39**(12): 3327-3335.
- [44] Li S W, Chang M H, Li H M, *et al.* Chemical compositions and source apportionment of PM_{2.5} during clear and hazy days: seasonal changes and impacts of Youth Olympic Games [J]. *Chemosphere*, 2020, **256**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.127163.
- [45] Zhang W H, Liu B S, Zhang Y F, *et al.* A refined source apportionment study of atmospheric PM_{2.5} during winter heating period in Shijiazhuang, China, using a receptor model coupled with a source-oriented model [J]. *Atmospheric Environment*, 2020, **222**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2019.117157.
- [46] Park M B, Lee T J, Lee E S, *et al.* Enhancing source identification of hourly PM_{2.5} data in Seoul based on a dataset segmentation scheme by positive matrix factorization (PMF) [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2019, **10**(4): 1042-1059.
- [47] Hong Y W, Xu X B, Liao D, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} and sulfate formation during the COVID-19 lockdown in a coastal city of southeast China [J]. *Environmental Pollution*, 2021, **286**, doi: 10.1016/j.envpol.2021.117577.

CONTENTS

Temporal and Spatial Evolution Pattern of PM _{2.5} and Its Influencing Factors in Guanzhong Plain Urban Agglomeration	ZHANG Jun, JIN Zi-han, WANG Yue, <i>et al.</i>	(5333)
Linkage Effect and Nonlinear Impact of PM _{2.5} Concentration Driving Factors in Central Plains Urban Agglomeration	ZHOU Zhi-heng, ZHOU Ting-gang, QIN Ning	(5344)
Analysis of Spatiotemporal Distribution Characteristics and Influencing Factors of PM _{2.5} and O ₃ in Changsha-Zhuzhou-Xiangtan Urban Agglomeration, China	LIU Xian-zhao, ZHANG Guo-qiao, YANG Wen-tao, <i>et al.</i>	(5354)
Chemical Composition and Source Apportionment of PM _{2.5} in Zhangye City	PAN Cheng-ke, HUANG Tao, GAO Hong, <i>et al.</i>	(5367)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of PM _{2.5} Heavy Metals in Tianjin and Qingdao in Winter of 2018-2019	ZHAO Ming-sheng, REN Li-hong, LI Gang, <i>et al.</i>	(5376)
Concentration, Solubility, and Sources of Metal Elements in Atmospheric Precipitation in Qingdao	KONG Ling-dong, QI Jian-hua, ZHANG Xu	(5387)
Trends of Ozone Pollution in Guanzhong Urban Agglomeration from 2015 to 2021	ZHAO Wei, WANG Shuo, PANG Xiao-die, <i>et al.</i>	(5399)
Pollution Characteristics of Ozone and Its Precursors in Background Region of Hainan Province	XIE Wen-jing, XING Qiao, XIE Dong-hai, <i>et al.</i>	(5407)
Identification of Ozone Formation Mechanism Long-term Spatio-temporal Evolutions in PRD Based on Two-dimensional Mutual Verification	YANG Lei-feng, XIE Dan-ping, YANG Jun, <i>et al.</i>	(5421)
Characteristics and Source Apportionment of Ambient Summer Volatile Organic Compounds in Zhengzhou, China	QI Yi-jin, WANG Ling-ling, NI Jing-wei, <i>et al.</i>	(5429)
Summer Pollution Characteristics and Sources of Volatile Organic Compounds in Lanzhou	YANG Yan-ping, CHEN Qiang, MENG Xian-hong, <i>et al.</i>	(5442)
Characteristics and Health Risk Assessment of VOCs in an Underground Parking Garage	LIU Yan, YANG Ning, SUN Lu-na, <i>et al.</i>	(5453)
Chemical Characterizations of Particles from Direct-injection Gasoline Vehicles	LI Jia-chen, GE Yun-shan, WANG Hao-hao, <i>et al.</i>	(5464)
Scenario Simulation and Prediction of Greenhouse Gas Emissions from Incineration of Solid Waste	YAN Wei, LIU Shu-le, WU Zheng-fang, <i>et al.</i>	(5470)
Distribution, Sources, and Export of the (Sub-) Metal Elements in the Changjiang River	LIU Jia-ming, WU Wen-tao, LIU Xiao-tian, <i>et al.</i>	(5478)
Analysis of Nitrogen and Phosphorus Pollution and Nitrogen Sources in the Lancang River	GUO Shu-fang, CHEN An-qiang, XI Bin, <i>et al.</i>	(5491)
Transformation Relationship of Groundwater and River Water in Riparian Wetland During Water and Sediment Regulation of Xiaolangdi Reservoir in Yellow River	XIAO Chun-yan, LIU Yi-fan, ZHAO Tong-qian, <i>et al.</i>	(5499)
Spatiotemporal Variation in Water Quality of Modaomen Waterway Conveyance Reservoir Drinking Water Sources	ZHANG Kun-feng, CHANG Sheng, ZHANG Qi, <i>et al.</i>	(5509)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of PPCPs in Typical Drinking Water Sources in the Middle Reaches of the Yangtze River During the COVID-19 Pandemic	FAN Yue-ting, CHANG Sheng, ZHANG Kun-feng, <i>et al.</i>	(5522)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of PAHs and PCBs in Surface Water and Sediments in Middle and Upper Reaches of Beiji River	CHANG Sheng, BAI Yun-song, TU Xiang, <i>et al.</i>	(5534)
Hydrochemical Characteristics and Fluorine Distribution and Causes of Different Water Bodies in Pingshuo Mining Area	SUN Long, LIU Ting-xi, DUAN Li-min, <i>et al.</i>	(5547)
Characteristics of Dissolved Organic Matters and Their Influence on Labile Cadmium Release from Soils of Typical Water Level Fluctuation Zones of Three Gorges Reservoir	ZHANG Bao-hao, WU Ya-zun, XU Dong-yu, <i>et al.</i>	(5560)
Phosphorus Cycling in a Sediment-water System Controlled by Different Dissolved Oxygen Levels of Overlying Water	LIU Xiao-tian, LIU Jun, WANG Yi-bin, <i>et al.</i>	(5571)
Water Quality Evolution Characteristics and Pollution Factor Analysis in Poyang Lake from 2011 to 2019	XIE Hui-yu, HU Mei, JI Xiao-yan, <i>et al.</i>	(5585)
Distribution and Risk Assessment on the Nutrients and Heavy Metals in Surface Sediments of Wuliangshui Lake	DU Cai-li, LI Jia-xi, LI Guo-wen, <i>et al.</i>	(5598)
Effect and Mechanism of Biochar Adsorption on Unbiodegradable Organic Nitrogen in Stormwater Runoff	SU Zeng-hui, SUN Ping, CHEN You-yuan, <i>et al.</i>	(5608)
Phytoplankton Community Structures and Their Relationship with Environmental Factors in Rivers Supplied with Different Water Sources	HOU Ying, LI Xin, BAI Ling, <i>et al.</i>	(5616)
Adsorption of Typical Quinolone Antibiotics by Manganese Oxide-Modified Biochar Substrate and Its Application in CWs	GAO Hui-zi, TIAN Wei-jun, ZHANG Zi-yu, <i>et al.</i>	(5627)
Effect of KOH Activation on the Properties of Biochar and Its Adsorption Behavior on Tetracycline Removal from an Aqueous Solution	XU Jin, MA Yi-fan, YAO Guo-qing, <i>et al.</i>	(5635)
Preparation of Modified Attapulgite-supported Iron Sulfide and Its Adsorption Mechanism for Mo(VI)	LIAN Jian-jun, WU Hong-yan, YE Tian-ran, <i>et al.</i>	(5647)
Removal of Cr(VI) from Water Using Green Synthesis Nanoscale Zero-Valent Iron Supported on <i>Eucalyptus</i> Biochar	LIU Qin-wen, DING Ai-zhong, LIANG Xin, <i>et al.</i>	(5657)
Removal of Pb(II) and Zn(II) from Wastewater via Magnesium-Modified Diatomite Product Recovering Nitrogen and Phosphorus	WU Ying-qiu, XIA Peng, LI Yuan, <i>et al.</i>	(5667)
Adsorption of Methylene Blue on Sodium-Modified Bentonite from Southern Part of Henan	CHENG Fei-peng, YANG Dong-liang, CHANG Le, <i>et al.</i>	(5676)
Compound Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Soil and Groundwater of Typical Industrial Lands in Shanghai	LI Xiao-man, LI Qing-qing, YANG Jie, <i>et al.</i>	(5687)
Pollution Evaluation and Quantitative Traceability Analysis of Heavy Metals in Farmland Soils Around the Gangue Heap of a Coal Mine in Chongqing	MA Jie, LIU Ping, LIU Jin-zhao, <i>et al.</i>	(5698)
Species Distribution and Source Analysis of Heavy Metals in Surrounding Soil Around Typical Petroleum Sites	GONG Jian, HE Lian-sheng, LI Qiang, <i>et al.</i>	(5710)
Source Analysis of Heavy Metals in Farmland Soil Around a Waste Incineration Plant Based on PMF Model	ZHANG Tian-yu, HU Gong-ren, YU Rui-lian, <i>et al.</i>	(5718)
Ecological and Health Risk Assessment of Heavy Metal Pollution in Farmland Soil of Xianghe County	CHEN Yu-jia, QU Xing-chen, ZHANG Bin, <i>et al.</i>	(5728)
Comparison of the Concentrations, Sources, and Distributions of Heavy Metals in Topsoils of the Junction Zone of Geological Tectonic Units: A Case Study in Chengkou County, China	LIU Yong-lin, WU Mei, LIU Rui, <i>et al.</i>	(5742)
Occurrence, Source Analysis, and Health Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Plants and Soils from Typical Areas of Xinjiang, China	YANG Bei-chen, XIE Qi-lai, ZHENG Qian, <i>et al.</i>	(5751)
Effects of Strengthening <i>Pennisetum purpureum</i> Schumacher with Fertilizer Application Strategy on Remediation of Severely Cadmium-polluted Farmland	WU Gang-fan, ZHOU Hang, TANG Qi, <i>et al.</i>	(5761)
Tobacco Stem Biochar and Phosphate Application Decrease Wheat Grain Cadmium Accumulation in Alkaline Soils	YANG Yan-zheng, ZHANG Yin-ge, LI Chang, <i>et al.</i>	(5769)
Polyamine-producing Bacteria Improve Cd Resistance and Reduce Uptake of Cd in Wheat	JI Ming-fei, WU Xue-jiao, LI Xiao-zhe, <i>et al.</i>	(5778)
Effect and Mechanism of Sulfate-Reducing Bacteria on the Passivation of Heavy Metals in Alkaline and Acidic Agricultural Soils	GAO Yu, LIU Yu-chen, GUO Xiao-fang, <i>et al.</i>	(5789)
Effects of <i>Bacillus megaterium</i> on Soil Physicochemical Properties and Its Effects on the Accumulation of Cd and Zn in Plant	WANG Ping, LI Yi-man, WANG Xue-jia, <i>et al.</i>	(5798)
Soil Fungal Community Structure and Function Diversity of Different Land Use Types in the Waterfront Area Along the Jialing River	ZHU Lan-ping, XU Fei, WANG Jia-ying, <i>et al.</i>	(5808)
Effect of Biochar Application on Biological Nitrogen Fixation in Double Cropping Paddy Field in Northern Hainan	ZHAO Yan, YUAN Xin-sheng, TANG Rui-jie, <i>et al.</i>	(5819)
Photodegradation Behaviors and Toxicity Characteristics of Trimethoprim into Different Environmental Media with the Presence of g-C ₃ N ₄	ZHU Na, WANG Xing-yang, JIAO Jun-heng, <i>et al.</i>	(5832)
Analysis of Provincial CO ₂ Emission Accounting in China Under the Carbon Peaking and Carbon Neutrality Goals	YANG Bai, QIN Guang-peng, WU Qin	(5840)
Temporal and Spatial Differences in Carbon Conduction and Prediction Effect of Land Type Transfer in Chang-Zhu-Tan Urban Agglomeration	YANG Xu, LIU Xian-zhao	(5850)
Environmental Benefit Analysis of Municipal Solid Waste Typical Disposal Scenarios in Zhangjiagang City Based on Classification	ZHANG Tao, ZHENG Jun-wen, SUN Yu-can, <i>et al.</i>	(5861)