

北京城区PM_{2.5}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_{2.5} 化学组成

SO₄²⁻ NH₄⁺ NO₃⁻
元素碳 Cl⁻ 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 载体金属元素污染特征、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 _{2.5} 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 _{2.5} 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, 褚咏昕, 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 ₂ -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 _{0.6} Zn _{0.4} Fe ₂ O ₄ 催化 H ₂ O ₂ 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氮挥发的影响	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)	

海-陆大气交汇作用下青岛冬季大气 PM_{2.5} 污染特征与来源解析

庾雄, 杨凌霄*, 张婉, 齐安安, 王浥铭, 王鹏程, 黄琦, 赵彤, 张雄飞, 徐鹏, 张天琪, 王文兴

 (山东大学环境研究院, 青岛 266237)

摘要: 为了研究海-陆大气交汇作用对沿海城市大气污染物的传输与扩散的影响, 于2019年11月18日至12月23日在青岛观测站采集大气 PM_{2.5} 样品, 对 PM_{2.5} 中的水溶性离子、无机元素和碳质组分特征进行了分析, 并结合后向轨迹聚类分析模型和 PMF 模型等方法对青岛市冬季大气污染来源进行分析。结果表明, 青岛冬季 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 平均值为 $61.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 其中, $\rho(\text{水溶性离子})$ 、 $\rho(\text{无机元素})$ 、 $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 平均值分别为 29.9、5.46、10.2 和 3.82 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 二次离子 (SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+) 和地壳元素 (Si、K、Ca、Fe、Ti) 是主要的离子和元素成分, 分别占水溶性离子和无机元素的 89.3% 和 61.1%。青岛市大气主要受局部海陆风气流影响 (43.4%), 其次是季风气流 (36.2%), 冷空气气流对青岛影响较低 (20.4%)。PMF 模型结果表明, 青岛冬季 PM_{2.5} 主要来自机动车源 (22.0%)、海盐源 (21.0%) 和煤燃烧源 (19.8%)。局部海陆风气流中的污染物主要来自煤燃烧 (25.4%) 和机动车 (18.9%), 该气流会加剧本地污染向市内聚集; 冷空气气流则以海盐源为主 (26.8%), 有利于市内大气污染扩散; 季风气流对青岛无机元素贡献较高, 也会将外地的机动车污染输送至青岛。

关键词: 海-陆大气交汇; PM_{2.5}; 水溶性离子; 无机元素; 碳质组分; 正定矩阵因子分解模型 (PMF)

中图分类号: X513 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2022)05-2284-10 **DOI:** 10.13227/j.hjxx.202108022

Characteristics and Source Analysis of PM_{2.5} in Qingdao in Winter Under the Action of Sea-Land-Atmosphere Convergence

TUO Xiong, YANG Ling-xiao*, ZHANG Wan, QI An-an, WANG Yi-ming, WANG Peng-cheng, HUANG Qi, ZHAO Tong, ZHANG Xiong-fei, XU Peng, ZHANG Tian-qi, WANG Wen-xing

(Environment Research Institute, Shandong University, Qingdao 266237, China)

Abstract: In order to explore the impact of sea-land-atmosphere convergence on the transmission and diffusion of atmospheric pollutants in coastal cities, PM_{2.5} samples were collected from November 18 to December 23, 2019, at the Qingdao Observatory. The characteristics of water-soluble inorganic ions, inorganic elements, and carbon components in PM_{2.5} were analyzed, and the sources of air pollution in Qingdao in winter were analyzed via the backward trajectory cluster analysis model and PMF. The results showed that the average concentration of PM_{2.5} in Qingdao in winter was $61.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. The average concentrations of water-soluble ions, inorganic elements, OC, and EC were 29.9, 5.46, 10.2, and 3.82 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, respectively. The secondary ions (SO_4^{2-} , NO_3^- , and NH_4^+) and crustal elements (Si, K, Ca, Fe, and Ti) were the main ions and elemental components, accounting for 89.3% and 61.1% of water-soluble ions and inorganic elements, respectively. Atmosphere of Qingdao was mainly affected by the local sea-land airflow (43.4%), followed by the temperate monsoon airflow (36.2%). The impact of cold air airflow on Qingdao was relatively low (20.4%). The results of the PMF model indicated that the main sources of PM_{2.5} in Qingdao in winter were motor vehicle sources (22.0%), sea salt sources (21.0%), and coal combustion sources (19.8%). The pollutants in the local sea-land airflow mainly came from coal combustion (25.4%) and motor vehicles (18.9%), and this airflow aggravated local pollution in the city. The cold air airflow was dominated by sea salt sources (26.8%), which was conducive to the spread of air pollution in the city. The monsoon airflow had a high contribution to Qingdao's inorganic elements, and it transported the pollution of motor vehicles from other places to Qingdao.

Key words: sea-land-atmosphere convergence; PM_{2.5}; water-soluble inorganic ions; inorganic elements; carbon components; positive matrix factorization model (PMF)

随着我国大气污染防治政策的深入实施, 大气 PM_{2.5} 污染整体减轻, 但是仍有较多城市的 PM_{2.5} 浓度超过《环境空气质量标准》中的二级标准, 并且形成 PM_{2.5} 与臭氧的复合污染^[1]。PM_{2.5} 化学组成多样, 来源和成因复杂, 对环境和人体健康都有着较高的危害^[2~4]。水溶性无机离子 (WSIIs) 作为 PM_{2.5} 的主要成分, 通常占比达到 30%~80%^[5,6], 其中二次离子 (SNA, 即 NH_4^+ 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-}) 不仅是 WSIIs 的主要成分^[7], 其与臭氧也有着较强的依存关系, 更是 PM_{2.5} 和臭氧协同控制的重点^[1]。无机元素虽然在 PM_{2.5} 中占比较低, 但其易附着于细颗粒物

中, 且金属元素对人体的危害性较大^[2]; 无机元素还具有独特的源特征, 常被用作颗粒物的示踪成分^[8]。PM_{2.5} 中的碳组分对光有散射和吸收作用, 能明显影响大气能见度^[9]。其中无机碳 (EC) 主要来自化石或生物质燃料的不完全燃烧, 其稳定性较强, 可作为一种污染源的标志物^[10]; 有机碳 (OC) 成分和来源都较复杂, 其对人体的危害性也较高^[11,12], 其

收稿日期: 2021-08-03; **修订日期:** 2021-10-13

基金项目: 国家重点研发计划项目 (2016YFC0200501); 山东省重点研发计划项目 (2020CXGC011402)

作者简介: 庾雄 (1996~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为大气颗粒物污染与来源解析, E-mail: 1373962543@qq.com

* 通信作者, E-mail: yanglingxiao@sdu.edu.cn

中二次有机碳(SOC)更是被认定为引发重污染的关键组分^[13]. 因此研究大气 PM_{2.5} 的化学组分与污染特征,不但能有效探究其来源,也有利于控制 PM_{2.5} 污染,降低对环境和人体的危害.

随着经济发展和城市化进程,城市污染现象逐渐增加,较多的研究以城市局部环境气象要素为主,进行 PM_{2.5} 化学组分与来源解析分析^[14~16]. 有研究发现,海陆风能缓解京津冀地区的大气污染,而山谷风的输送和汇聚作用会增加北京及北京以南地区和太行山东部地区的大气重污染^[17]. 邵玄逸等^[18] 的研究发现,西北和西南通道的大气传输明显增加了京津冀地区的污染,外来源对北京和唐山的贡献达到 48.7% 和 30.7%. 长江三角洲地区各城市之间的污染传输比较明显,城市群污染来源复杂,影响因素多样^[19],余钟奇等^[20] 的研究发现秋冬季的长江三角洲内部排放贡献达到 84.1%;二次转化对长江三角洲地区 PM_{2.5} 有着显著贡献^[19]. 而青岛位于山东半岛的东南部,东、南皆与黄海相接,是一座典型的滨海城市,也是我国华东地区大气和海洋交汇的一个重要通道,其气象条件不仅受区域性温带季风气候的影响,还受局部海陆风环流的影响;同时,屈文军等^[21] 的研究发现局部海陆风中的陆风输送也会增加市内 PM_{2.5} 的质量浓度,这种现象在冬季影响更为明显. 因此分析青岛市大气 PM_{2.5} 污染情况,有利于研究海-陆大气交汇作用对沿海城市 PM_{2.5} 的影响.

受体模型是常见的源解析方法,其中化学质量平衡模型(chemical mass balance model, CMB)需要使用具体排放源成分谱协助分析,主成分分析法(principal components analysis, PCA)无法直接定量解析^[4];而正定矩阵因子分解模型(positive matrix factorization model, PMF)仅需受体点成分谱信息,就可定量解析出来源贡献,因此近年研究多以 PMF 模型进行 PM_{2.5} 的来源定量分析^[2,4,22]. 混合型单粒子拉格朗日综合轨迹(hybrid single particle lagrangian integrated trajectory, HYSPLIT)能模拟大气后向轨迹,是研究气流轨迹的主要工具^[3,23],结合 PMF 模型可以分析出每条轨迹的污染源,从而判断出大气交汇作用对 PM_{2.5} 污染的传输影响. 为了深入研究青岛冬季 PM_{2.5} 的污染特征,本文使用 HYSPLIT 模型和 PMF 分析青岛冬季 PM_{2.5} 的主要来源,重点分析海-陆大气交汇作用下不同气流轨迹对青岛冬季大气 PM_{2.5} 的污染特征与来源的影响,以期确定沿海区域大气污染的基本特征及其潜在来源提供参考.

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究于 2019 年 11 月 18 日至 12 月 23 日在青岛即墨区超级观测站(120.67°E, 36.35°N, 距地面高 15 m),使用 2 台武汉天虹仪器仪表有限公司生产的智能中流量悬浮颗粒物采样器(型号:TH-150A,流量 100 L·min⁻¹)连续采集 23.5 h 的 PM_{2.5} 样品,一台使用特氟龙膜(What man, UK)收集样品,并用于分析水溶性离子和无机元素;另一台则用石英膜(Pall Gelman, USA)收集 PM_{2.5} 并用于碳质组分分析. 样品采集之前,石英膜需在 600℃ 的马弗炉中煅烧 6 h 来去除膜上残留的有机物对实验的干扰;将采样后的石英膜保存好并放置在 -20℃ 的冰箱中,以防有机物挥发. 采样前的特氟龙膜一直保存于室温下的干燥皿中,采样前后用北京赛多利斯科技仪器有限公司的电子天平(型号 SOP,精确度 0.01 mg)称重. 每个膜需平衡 24 h 后再称重,并且每次称重要保证连续 3 次重量之差小于 0.05 mg. 为防止样品交叉污染,每次采样后对切割头用酒精棉球进行擦拭. 根据已有研究^[24~26],本研究采样期间的 11 月 18 日和 19 日有明显的沙尘天气现象.

1.2 分析方法

本研究使用离子色谱(ICS-600,美国,阴离子淋洗液:20 mmol·L⁻¹ KOH;阳离子淋洗液:20 mmol·L⁻¹ 甲基磺酸)、Epsilon 4 能量色散 X 射线荧光光谱仪(ED-XRF, PANalytical, 荷兰)分析特氟龙膜中的水溶性离子和无机元素;使用 OC/EC 分析仪(Sunset Laboratory Inc, 美国)分析石英膜的 EC 与 OC. 具体仪器原理、分析方法和质控见文献^[27]. 水溶性离子的仪器检出限在 0.01 ~ 0.022 μg·m⁻³ 之间;碳质组分的仪器检出限均为 0.20 μg·m⁻³;Si、Mg 和 Al 的仪器检出限在 0.2 ~ 0.4 μg·m⁻³ 之间,其余无机元素的均在 0.001 ~ 0.015 μg·m⁻³.

所有样品测试每测 10 个样品后随机进一个重复样,离子和碳质组分保证样品两次测量的相对标准偏差低于 5%,无机元素的标准偏差低于 10%. 所有测试均有实验空白和野外空白,空白样品处理与样品处理完全相同,所有离子、元素和碳质组分的浓度数据均减去空白样品的浓度,以排除野外空白和空白膜对实验数据的干扰.

1.3 后向轨迹聚类分析

本文采用已广泛用于大气污染传输轨迹计算的 HYSPLIT 模型^[28],以观测站(120.67°E, 36.35°N)为中心,起始高度设置为 50 m(当地平均海拔与距

地面距离之和),以一日4次(00:00、06:00、12:00和18:00)进行后向时间尺度为48h的轨迹计算,并进行聚类分析.

1.4 PMF 分析

正定矩阵因子分解法(PMF)最早是由 Paatero 等^[29]提出的基于最小二乘法的定量受体源解析模型. PMF 模型将样品数据分解为源成分谱矩阵 $F(k \times j)$ 和源贡献矩阵 $G(i \times k)$, 以及一个残差矩阵 $E(i \times j)$.

$$X_{ij} = \sum_{k=1}^p G_{ik} F_{kj} + E_{ij} \quad (1)$$

式中, X_{ij} 是第 i 个样品的第 j 个化学成分的浓度, F_{kj} 是源 k 中第 j 个化学成分浓度, G_{ik} 是源 k 对第 i 个样品的贡献率, p 为源的数量.

PMF 模型残差矩阵与输入的不确定度矩阵比值 Q 的最小化为模型最优解.

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

式中, e_{ij} 和 u_{ij} 分别为残差矩阵与不确定度矩阵.

当样品浓度小于等于相应方法检出限(MDL)时, u_{ij} 为:

$$u_{ij} = (5/6) \cdot \text{MDL} \quad (3)$$

当大于 MDL 时, u_{ij} 为:

$$u_{ij} = \sqrt{(\sigma \times c)^2 + (0.5\text{MDL})^2} \quad (4)$$

式中, σ 为样品误差, 取经验值 15%; c 为样品

浓度.

本文利用美国环保署(USEPA)推荐的 PMF 5.0 软件对 $\text{PM}_{2.5}$ 的相关成分进行源解析.

1.5 气象数据来源

此超级观测站使用美国赛默飞世尔公司的 5014i、49i、42i、43i 和 48i 型号仪器在线观测 $\text{PM}_{2.5}$ 、 O_3 、 NO_x 、 SO_2 和 CO ; 同时利用气象站(WS-6P, 智翔宇仪器)在线监测风向和风速等数据, 其观测能力达到 1 min 的分辨率. 再利用美国气象环境预报中心(NCEP)和美国国家大气研究中心(NCAR)联合制作 NCEP 再分析数据集, 其采用了当今最先进的全球资料同化系统和完善的数据库, 对各种资料来源(地面、船舶、无线电探空和卫星等)的观测资料进行质量控制和同化处理, 它不仅包含的要素多, 范围广, 而且延伸的时段长, 能够准确分析出大气气流轨迹.

2 结果与讨论

2.1 后向轨迹聚类分析

为了有效揭示海-陆大气交汇作用对青岛冬季 $\text{PM}_{2.5}$ 的影响, 本文利用 HYSPLIT 模型并结合 NCEP 再分析数据集, 对采样期间青岛的气流进行 48 h 后推轨迹计算并聚类分析, 如图 1(a) 所示; 并通过超站观测到的风速风向等在线数据, 绘制采样期间风玫瑰图[图 1(b)].

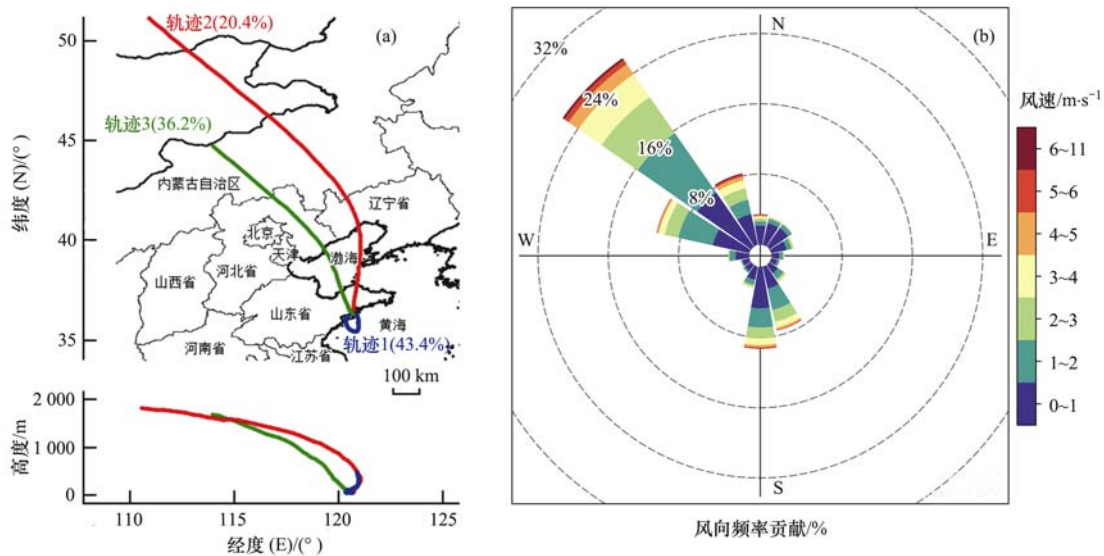


图 1 研究期间青岛市气流后向轨迹聚类与风玫瑰图

Fig. 1 Backward trajectory clustering and wind rose diagram of Qingdao during the study period

如图 1 中气流后向轨迹聚类可知, 采样期间的 48 h 气流轨迹可分为 3 类, 表现为轨迹 1 (短轨迹) 和轨迹 2、3 (长轨迹), 其气流占比顺序为: 轨迹 1 > 轨迹 3 > 轨迹 2. 根据风玫瑰图可知, 采样期间盛行西北风, 其次是南风, 而采样点南部靠海, 南风主要

表现为海风, 西北风表现为陆地风, 这与颜梅^[30]根据百年青岛气场和风场的数据统计的结果相似. 其中短轨迹 1 呈现环形, 并且以采样点南部为主, 且气流传输高度也较低, 符合局部海陆风的低气层环流特征, 所以推测短轨迹 1 为局部海陆风形成的气流

轨迹. 轨迹 1 是本次采样期间的后向聚类轨迹中占比最高, 达到 43.4%, 说明局部海陆风气流对青岛的大气有着较大的影响, 可能会促进青岛市大气污染物向市内聚集, 使其不易扩散^[31].

轨迹 2、3 为长轨迹, 均来自采样点西北方向, 表现为温带季风气候影响的气流轨迹, 但轨迹 2、3 在气流起源和途径上都有着一定的差异. 轨迹 2 起源于俄罗斯, 途经蒙古国传入我国内蒙古自治区, 并经过我国辽宁省跨渤海传到青岛, 该轨迹在前期主要为西北风, 传至辽宁省时, 由于受西伯利亚冷空气影响^[32,33], 该气流轨迹转而南下, 途径渤海传至青岛. 该轨迹传入青岛前主要受冷空气影响, 并以北风形式传入青岛, 故将该轨迹视为冷空气气流轨迹, 而其又经过渤海的净化作用, 可能有助于青岛市内污染物的扩散.

长轨迹 3 起源于我国内蒙古自治区和蒙古国边境地区, 途经河北省, 也是跨渤海传至山东, 但该轨迹途经河北省唐山和山东省淄博、潍坊等重工业区, 容易携带较多的大气污染物, 并以西北风的形式传至青岛, 因此将该轨迹视为季风气流轨迹, 并且轨迹 3 可

能会增加外来污染源对青岛市大气污染的贡献.

2.2 各轨迹 PM_{2.5} 组分分析

如图 2 所示, 不同轨迹上的 PM_{2.5} 浓度平均值大小顺序为: 轨迹 1 > 轨迹 3 > 轨迹 2; 同时, 根据表 1 可知, 轨迹 1 的 PM_{2.5} 浓度平均值高于《环境空气质量标准》中的二级标准, 说明轨迹 1 存在较高的污染, 尤其在 12 月 7~10 日, 青岛出现高浓度的 PM_{2.5} 污染, 而此时青岛市气流均为轨迹 1. 主要原因是此时冷空气较弱, 青岛以局部海陆风气流为主, 形成了低空低温层结^[33], 导致市内污染不易扩散, 从而促使青岛市内 PM_{2.5} 污染加剧. 而轨迹 2 的 PM_{2.5} 浓度明显低于青岛冬季的平均值, 表明轨迹 2 对青岛有一定的净化作用. 轨迹 1 对青岛市冬季 PM_{2.5}、水溶性离子、OC 和 EC 都有着较高的贡献, 轨迹 3 对无机元素有着较高的贡献, 而轨迹 2 对青岛市 PM_{2.5} 及其各组分的贡献均最低. 综上所述, 轨迹 1 主要表现为污染轨迹, 说明海陆风气流对青岛市 PM_{2.5} 及其各组分有着较高的影响; 轨迹 2 为清洁轨迹, 说明冷空气能有效缓解青岛市的污染情况; 轨迹 3 对青岛市的无机元素贡献较高, 可能与沙尘天气有关.

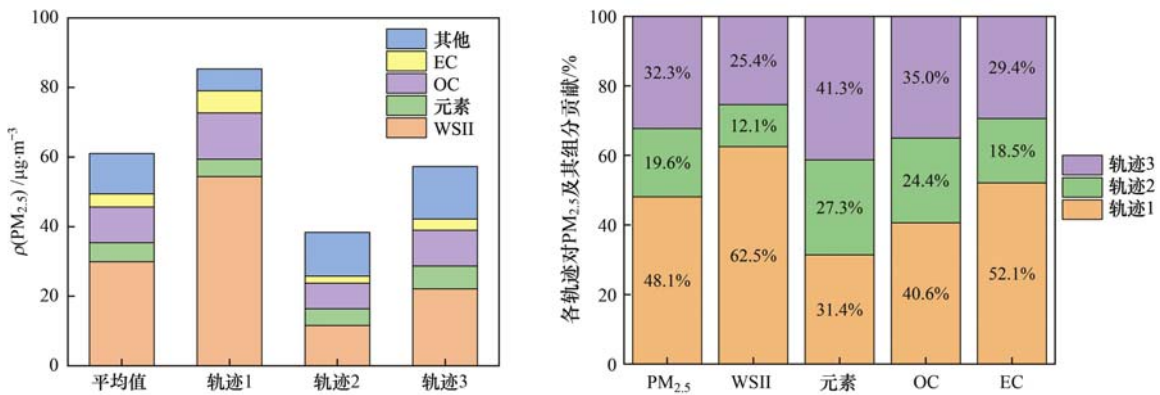


图2 不同轨迹 PM_{2.5} 的组分分析

Fig. 2 Composition analysis of PM_{2.5} in different trajectories

表1 各轨迹 PM_{2.5} 成分/μg·m⁻³

Table 1 PM_{2.5} components of each trajectory/μg·m⁻³

项目	PM _{2.5}	SWII	元素	OC	EC	OC/EC	POC	SOC
轨迹 1	85.3	54.4	4.98	13.3	6.38	3.86	9.76	3.55
轨迹 2	38.4	11.6	4.77	7.35	2.08	4.42	3.19	4.16
轨迹 3	57.3	22.1	6.57	10.3	3.22	3.75	4.93	5.36
青岛冬季平均值	61.0	29.9	5.46	10.2	3.82	4.01	5.76	4.47

2.2.1 各轨迹 PM_{2.5} 中 OC 和 EC 特征分析

PM_{2.5} 中的 EC 主要来自一次污染排放^[2], 并且在大气中相对稳定; 而 OC 的来源分为直接排放的一次有机碳 (POC) 和在大气中二次反应生产的二次有机碳 (SOC)^[34]. 有研究表明^[35], 当 OC/EC > 2 时, 有 SOC 生产, 而在本研究中青岛冬季 OC/EC 的平均值为 4.01, 说明青岛冬季 OC 中有明显的 SOC

生成. 本研究采用常用的环境样本中的 OC 和 EC 最小比值法来估算 PM_{2.5} 中的 POC 和 SOC 的量^[13,36], 其计算公式如下:

POC = EC × (OC/EC)_{min} (5)

SOC = OC - POC (6)

由表 1 可知, 轨迹 1 的 OC 和 EC 含量都是各轨迹中最高的, 但其 SOC 含量却是最低, 也仅占轨迹 1

中 OC 的 26.7%；而轨迹 2 和轨迹 3 的 SOC 分别占 OC 的 56.6% 和 52.0%。表明轨迹 2 和轨迹 3 的传输距离长,污染物容易二次转化,因此轨迹 2 和轨迹 3 中的 OC 主要来自二次污染源；轨迹 1 传输距离短,污染物不易二次转化,OC 主要受一次污染源影响。

根据相关研究,OC/EC 可以用来判断颗粒物的来源,当 OC/EC 为 1.0~4.2 时,OC 和 EC 主要来源是机动车的排放^[37]；当 OC/EC 为 2.5~10.5 时,OC 和 EC 就是典型的煤燃烧所排放的^[38]；而生物质燃烧排放的 OC 和 EC,其 OC/EC 为 4.1~14.5^[39]。在本研究期间,轨迹 1~3 的 OC/EC 平均值分别为 3.86、4.42 和 3.75,表明轨迹 1 和轨迹 3

都主要来自煤燃烧和机动车尾气；而轨迹 2 主要来自煤燃烧和生物质燃烧。

2.2.2 各轨迹 PM_{2.5} 中水溶性离子特征分析

轨迹 1~3 的 $\rho(\text{WSII})$ 平均值分别为 54.4、11.6 和 22.1 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,其中 SNA 质量分数分别达到 92.0%、81.6% 和 86.2% (图 3)。通过分析 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 的比值,可以初步判断移动源和固定源对颗粒物的影响^[2]。轨迹 1~3 中两种离子比值均值分别为 2.37、1.73 和 2.48,均大于 1,说明各轨迹上的移动源对颗粒物影响均要大于固定源,也表明青岛市冬季大气污染主要受机动车尾气影响。

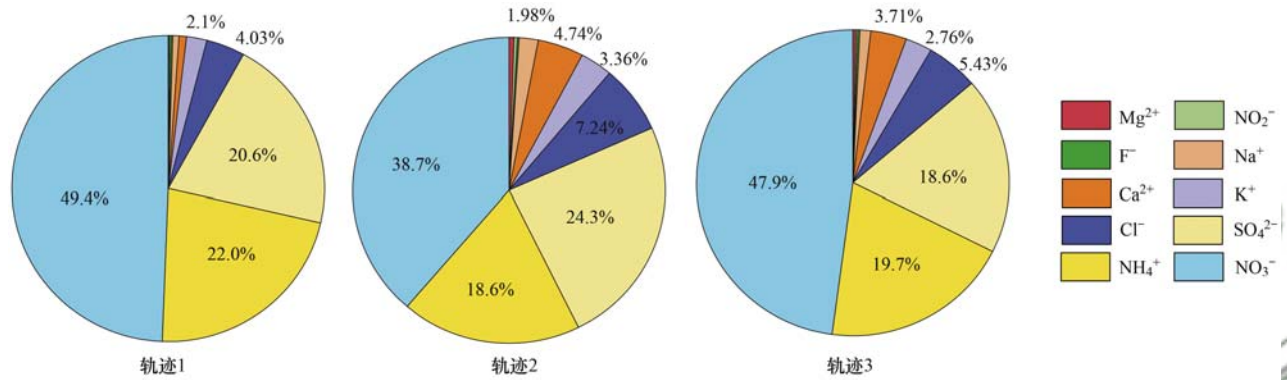


图 3 各轨迹 WSII 的组分质量分数
Fig. 3 Mass fraction of WSII components in each trajectory

表 2 各轨迹 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 分析

Table 2 Analysis of SO_4^{2-} and NO_3^- for each trajectory

项目	$\rho(\text{SO}_2)/\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	$\rho(\text{NO}_2)/\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	$\rho(\text{SO}_4^{2-})/\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	$\rho(\text{NO}_3^-)/\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	$\rho(\text{NO}_3^-)/\rho(\text{SO}_4^{2-})$	SOR	NOR
轨迹 1	11.1	41.6	11.2	26.9	2.37	0.402	0.324
轨迹 2	6.89	21.7	2.82	4.49	1.73	0.214	0.133
轨迹 3	9.29	33.5	4.12	10.6	2.48	0.228	0.190
青岛冬季 平均值	9.16	32.6	6.15	14.3	2.09	0.309	0.246

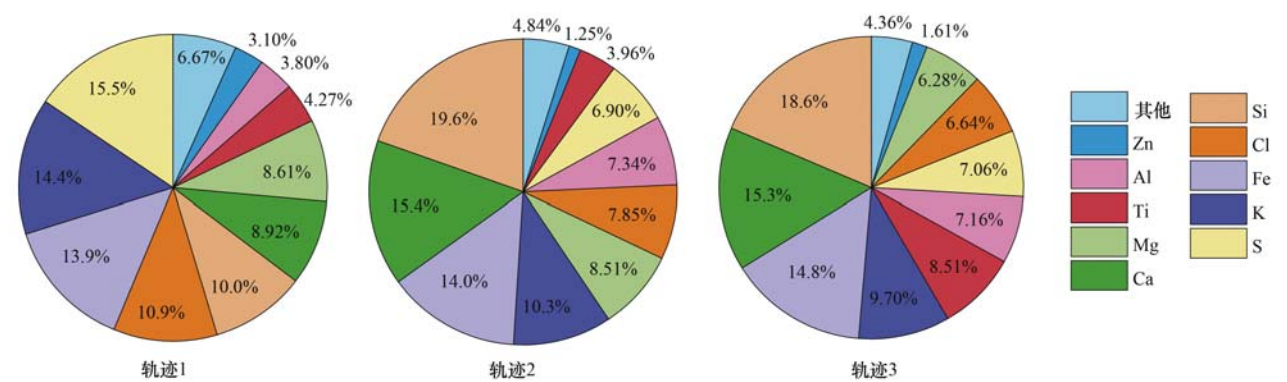


图 4 各轨迹中无机元素质量分数
Fig. 4 Mass fraction of inorganic elements in each trajectory

大气中的 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 主要来自大气中 SO_2 和 NO_3 的气相氧化和云内反应^[7],而硫氧化率(SOR)和氮氧化率(NOR)可以表示这种转化程度,也有利于研究青岛市冬季大气气溶胶的二次转化,具体计

算公式如下:

$$\text{SOR} = n(\text{SO}_4^{2-})/n(\text{SO}_4^{2-} + \text{SO}_2) \quad (7)$$

$$\text{NOR} = n(\text{NO}_3^-)/n(\text{NO}_3^- + \text{NO}_2) \quad (8)$$

当 SOR 和 NOR 大于 0.1 时,说明大气中有明

显的 SO₂ 和 NO₃ 向 SO₄²⁻ 和 NO₃⁻ 转化,而其值越大,则说明转化程度越高^[40]. 根据超站在线观测到的 SO₂ 和 NO₂ 数据,计算出轨迹 1~3 的 SOR 分别为 0.402、0.214 和 0.228,NOR 分别为 0.324、0.133 和 0.190;说明各轨迹均有明显的转化,其中轨迹 1 虽然为短轨迹,但其 SOR 和 NOR 均为最高,说明轨迹 1 的前体物转化程度最高,可能与轨迹 1 中前体物浓度较高有关.由表 2 可知,虽然 NO₂ 浓度明显高于 SO₂,但各轨迹中的 SOR 均高于 NOR,说明在同样的大气环

境下,冬季 SO₂ 更容易向二次污染物转化.

2.2.3 各轨迹 PM_{2.5} 中无机元素特征分析

轨迹 1~3 的无机元素浓度平均值分别为 4.98、4.77 和 6.57 μg·m⁻³;均以 S、K、Fe、Cl、Si 和 Ca 等 10 种元素为主(图 4),分别占到总无机元素的 93.3%、95.2% 和 95.6%.其中轨迹 2 和轨迹 3 以 Si 和 Ca 等地壳元素为主^[41],表明长距离传输更容易输入地壳元素.轨迹 1 中 S 的占比最高,而 S 作为煤燃烧标志^[41],说明轨迹 1 主要通过

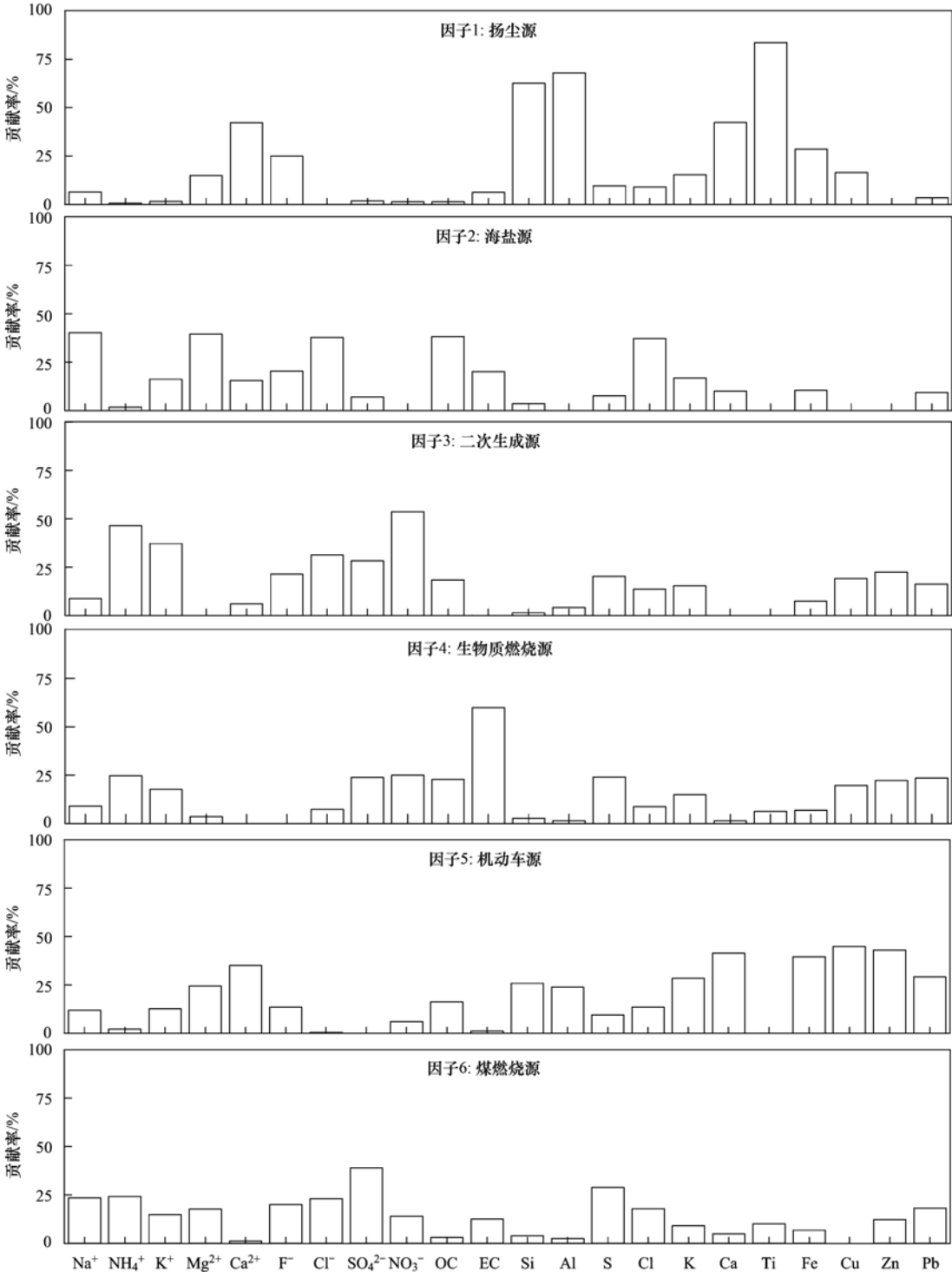


图 5 青岛冬季细颗粒物 PMF 解析结果

Fig. 5 PMF analysis results of fine particulate matter in Qingdao in winter

局部海陆风气流将本地煤燃烧产生的污染物传入青岛.

2.2.4 PMF 源解析

为了更准确地判断出青岛冬季 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要来源,本文利用美国环保署 (USEPA) 推荐的 PMF 5.0 软件对 $\text{PM}_{2.5}$ 中化学组分进行源解析. 由于无机元素的种类较多,故本文选取 10 种具有特征的代表元素,与水溶性离子和 OC、EC 进行 PMF 模型分析. 按 3~7 个因子数分别进行 20 次的基础运行,对各因子数下运行的结果进行质量平衡约束. 以上运行均通过了误差及 DISP 检验. 最后,根据每个因子的成分图谱,对照已有研究中排放源指纹谱或标志物,结合采样点周边实际排放源信息确定了 6 个因子,分别为扬尘源、海盐源、二次生成源、生物质燃烧源、机动车源和煤燃烧源.

如图 5 所示,因子 1 被认定为扬尘源,因为典型地壳元素 Ti、Si、Al 和 Ca 对因子 1 有着显著贡献^[4,42];扬尘标志物 Ca^{2+} 对因子 1 也有着较高的贡献^[43,44]. 因子 2 主要特征组分为 Na^+ 、 Cl^- 和 Mg^{2+} , Na^+ 和 Cl^- 是海盐源的标志物^[43];海盐源也是 Mg^{2+} 的重要来源之一^[27],故将因子 2 判定为海盐源. 因子 3 中以 NH_4^+ 和 NO_3^- 为主, SO_4^{2-} 对其贡献也较高,具有明显的二次源特征^[4],故将因子 3 解释为二次生成源. 因子 4 中 EC 的负荷最高,达到 59.9%,EC 主要来自生物质燃烧^[45],因此将因子 4

视为生物质燃烧源. 因子 5 中,贡献率较高的物种为 Cu、Zn、Fe 和 Pb,而机动车润滑油、发动机磨损、刹车片和轮胎磨损等都会增加这些元素的浓度^[3,8,15,42],因子 5 可被认定为机动车源. 因子 6 主要以 SO_4^{2-} 和 S 为主,S 主要来自含硫煤的燃烧^[15,42],煤燃烧对 SO_4^{2-} 也有着较高的贡献^[44],故可将因子 6 可认定为煤燃烧源.

通过 PMF 计算,采样期间的 $\text{PM}_{2.5}$ 主要来自机动车源 (22.0%)、海盐源 (21.0%) 和煤燃烧源 (19.8%);为了探究大气作用对青岛市冬季的影响,本研究分析了各簇气流轨迹中的来源贡献率,结果如图 6 所示. 轨迹 1 以煤燃烧源为主,二次生成源和机动车源对其也有着较高的贡献,说明局部海陆风气流中的污染主要来自青岛市内,通过海风将煤燃烧和机动车等产生的污染物输送回市内. 海盐源和机动车源对轨迹 2 贡献显著,其中海盐源可能是该轨迹途经渤海时携带而至;机动车源可能是青岛市本地产生的. 轨迹 3 和轨迹 2 的污染来源相似,以机动车和海盐源为主,其海盐源也主要来自渤海;而机动车源不仅与青岛市有关,也可能与淄博等拥有大量机动车的工业城市有关,其产生的污染物也可通过轨迹 3 传至青岛. 相比于轨迹 1 和轨迹 2,轨迹 3 中的扬尘源有着明显的增加,可能与沙尘天有关,说明沙尘主要通过轨迹 3 传至青岛.

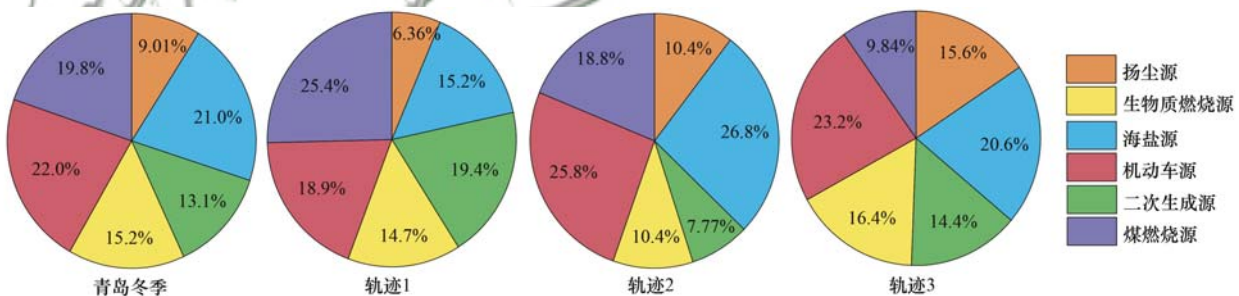


图 6 PMF 解析结果对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献率

Fig. 6 Contribution rate of PMF analysis results to $\text{PM}_{2.5}$

3 结论

(1) 青岛冬季 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 平均值为 $61.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 其中, $\rho(\text{水溶性离子})$ 、 $\rho(\text{无机元素})$ 、 $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 平均值分别为 29.9、5.46、10.2 和 $3.82 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 青岛市大气主要受局部海陆风气流影响 (43.4%), 其次是季风气流 (36.2%); 冷空气气流对青岛影响较低 (20.4%), 但能改善青岛市的大气质量.

(2) 组分分析结果表明, 局部海陆风气流对青岛市冬季 $\text{PM}_{2.5}$ 、水溶性离子、OC 和 EC 都有着较

高的贡献; 局部海陆风气流、冷空气气流和季风气流中的 SOR 分别达到 0.402、0.214 和 0.228, NOR 分别为 0.324、0.133 和 0.190; SNA 占比为 92.0%、81.6% 和 86.2%, 都有明显的二次转化存在.

(3) 源解析结果表明, 局部海陆风气流中的污染物主要来自煤燃烧 (25.4%) 和机动车 (18.9%), 该气流会加剧本地污染向市内聚集, 从而导致青岛市内雾-霾天的形成. 冷空气气流则以海盐源为主 (26.8%), 有利于市内大气污染扩散. 季风气流对青岛市大气环境影响较低, 主要因沙尘因素而增加对青岛市无机元素的贡献, 也会将外地的机动车污

染输送至青岛。

(4) 青岛冬季受移动源影响较大, 各轨迹中的 NO₃⁻ 和 SO₄²⁻ 的比值均大于 1; 机动车尾气对青岛市冬季大气污染的贡献率达到 22.0%, 在局部海陆风气流、冷空气气流和季风气流中的贡献分别达到 18.9%、25.8% 和 23.2%。故本文建议青岛市应该加强对冬季机动车的控制, 限制私家车, 鼓励公共出行, 能有效减少青岛市冬季的大气污染并改善青岛市内大气质量。

参考文献:

- [1] 李红, 鲍捷萌, 毕方, 等. PM_{2.5} 与臭氧污染协同控制: 挑战与应对[J]. 世界环境, 2020, (5): 24-29.
Li H, Bao J M, Bi F, *et al.* Synergistic control of PM_{2.5} and ozone pollution: Challenges and responses [J]. World Environment, 2020, (5): 24-29.
- [2] 赵清, 李杏茹, 王国选, 等. 运城秋冬季大气细粒子化学组成特征及来源解析[J]. 环境科学, 2021, 42(4): 1626-1635.
Zhao Q, Li X R, Wang G X, *et al.* Chemical composition and source analysis of PM_{2.5} in Yuncheng, Shanxi Province in autumn and winter[J]. Environmental Science, 2021, 42(4): 1626-1635.
- [3] 张剑飞, 姜楠, 段时光, 等. 郑州市 PM_{2.5} 化学组成的季节变化特征及来源解析[J]. 环境科学, 2020, 41(11): 4813-4824.
Zhang J F, Jiang N, Duan S G, *et al.* Seasonal chemical composition characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in Zhengzhou[J]. Environmental Science, 2020, 41(11): 4813-4824.
- [4] 王成, 闫雨龙, 谢凯, 等. 阳泉市秋冬季 PM_{2.5} 化学组分及来源分析[J]. 环境科学, 2020, 41(3): 1036-1044.
Wang C, Yan Y L, Xie K, *et al.* Analysis of chemical components and sources of PM_{2.5} during autumn and winter in Yangquan city [J]. Environmental Science, 2020, 41(3): 1036-1044.
- [5] Wang H L, Zhu B, Shen L J, *et al.* Water-soluble ions in atmospheric aerosols measured in five sites in the Yangtze River Delta, China: Size-fractionated, seasonal variations and sources [J]. Atmospheric Environment, 2015, 123: 370-379.
- [6] Xu L L, Duan F K, He K B, *et al.* Characteristics of the secondary water-soluble ions in a typical autumn haze in Beijing [J]. Environmental Pollution, 2017, 227: 296-305.
- [7] 冯炎鹏, 张军科, 黄小娟, 等. 成都夏冬季 PM_{2.5} 中水溶性无机离子污染特征[J]. 环境科学, 2020, 41(7): 3012-3020.
Feng Y P, Zhang J K, Huang X J, *et al.* Pollution characteristics of water-soluble inorganic ions in Chengdu in summer and winter[J]. Environmental Science, 2020, 41(7): 3012-3020.
- [8] 周安琪, 刘建伟, 周旭, 等. 北京大气 PM_{2.5} 载带金属浓度、来源及健康风险的城郊差异[J]. 环境科学, 2021, 42(6): 2595-2603.
Zhou A Q, Liu J W, Zhou X, *et al.* Concentrations, sources, and health risks of PM_{2.5} carrier metals in the Beijing urban area and suburbs[J]. Environmental Science, 2021, 42(6): 2595-2603.
- [9] 李安娜, 温天雪, 华维, 等. 鼎湖山大气颗粒物中 OC 与 EC 的浓度特征及粒径分布[J]. 环境科学, 2020, 41(9): 3908-3917.
Li A N, Wen T X, Hua W, *et al.* Characterization and size distribution of carbonaceous aerosols at Mountain Dinghu [J]. Environmental Science, 2020, 41(9): 3908-3917.
- [10] Chen P F, Kang S C, Tripathi L, *et al.* Light absorption properties of elemental carbon (EC) and water-soluble brown carbon (WS-BnC) in the Kathmandu Valley, Nepal: A 5-year study[J]. Environmental Pollution, 2020, 261, doi: 10.1016/j.envpol.2020.114239.
- [11] Wu X F, Chen C R, Vu T V, *et al.* Source apportionment of fine organic carbon (OC) using receptor modelling at a rural site of Beijing: Insight into seasonal and diurnal variation of source contributions [J]. Environmental Pollution, 2020, 266, doi: 10.1016/j.envpol.2020.115078.
- [12] 王成, 曹靖原, 段小琳, 等. 山西省四城市冬季 PM_{2.5} 中碳质组分特征及来源分析[J]. 环境工程, 2021, 39(6): 114-121.
Wang C, Cao J Y, Duan X L, *et al.* Characteristics and sources analysis of carbonaceous components in PM_{2.5} in winter in four cities of Shanxi Province [J]. Environmental Engineering, 2021, 39(6): 114-121.
- [13] 董贵明, 唐贵谦, 张军科, 等. 北京南部城区 PM_{2.5} 中碳质组分特征[J]. 环境科学, 2020, 41(10): 4374-4381.
Dong G M, Tang G Q, Zhang J K, *et al.* Characteristics of carbonaceous species in PM_{2.5} in southern Beijing [J]. Environmental Science, 2020, 41(10): 4374-4381.
- [14] 王德羿, 王体健, 韩军彩, 等. “2+26” 城市大气重污染下 PM_{2.5} 来源解析[J]. 中国环境科学, 2020, 40(1): 92-99.
Wang D Y, Wang T J, Han J C, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} under heavy air pollution conditions in “2+26” cities [J]. China Environmental Science, 2020, 40(1): 92-99.
- [15] 刘可可, 张红, 刘桂建. 合肥市 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中元素组成特征及重污染成因分析[J]. 环境科学, 2019, 40(8): 3415-3420.
Liu K K, Zhang H, Liu G J, *et al.* Elemental composition characteristics of PM_{2.5} and PM₁₀, and heavy pollution analysis in Hefei [J]. Environmental Science, 2019, 40(8): 3415-3420.
- [16] 赵孝因, 王申博, 杨洁茹, 等. 郑州市 PM_{2.5} 组分、来源及其演变特征[J]. 环境科学, 2021, 42(8): 3633-3643.
Zhao X N, Wang S B, Yang J R, *et al.* Chemical components and sources of PM_{2.5} and their evolutive characteristics in Zhengzhou [J]. Environmental Science, 2021, 42(8): 3633-3643.
- [17] 李青春, 李炬, 郑祚芳, 等. 冬季山谷风和海陆风对京津冀地区大气污染分布的影响[J]. 环境科学, 2019, 40(2): 513-524.
Li Q C, Li J, Zheng Z F, *et al.* Influence of mountain valley breeze and sea land breeze in winter on distribution of air pollutants in Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. Environmental Science, 2019, 40(2): 513-524.
- [18] 邵玄逸, 王晓琦, 钟巍盛, 等. 京津冀典型城市冬季人为源减排与气象条件对 PM_{2.5} 污染影响[J]. 环境科学, 2021, 42(9): 4095-4103.
Shao X Y, Wang X Q, Zhong Y S, *et al.* Impacts of anthropogenic emission reduction and meteorological conditions on PM_{2.5} pollution in typical cities of Beijing-Tianjin-Hebei in Winter [J]. Environmental Science, 2021, 42(9): 4095-4103.
- [19] 郭振东, 朱彬, 王红磊, 等. 长江三角洲霾天气 PM_{2.5} 中水溶性离子特征及来源解析[J]. 中国环境科学, 2019, 39(3): 928-938.
Guo Z D, Zhu B, Wang H L, *et al.* Characteristics and source

- analysis of water-soluble ions in $PM_{2.5}$ in the haze weather over in Yangtze River Delta[J]. *China Environmental Science*, 2019, **39**(3): 928-938.
- [20] 余钟奇, 瞿元昊, 周广强, 等. 2018 年秋冬季长江三角洲区域 $PM_{2.5}$ 污染来源数值研究[J]. *中国环境科学*, 2020, **40**(10): 4237-4246.
- Yu Z Q, Qu Y H, Zhou G Q, *et al.* Numerical simulations of $PM_{2.5}$ pollution source in the Yangtze River Delta region in fall and winter in 2018[J]. *China Environmental Science*, 2020, **40**(10): 4237-4246.
- [21] 屈文军, 张小曳, 盛立芳, 等. 青岛海滨大气 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 质量浓度与海陆风输送的关系[A]. 见: 中国气象学会 2008 年年会大气环境监测、预报与污染物控制分会场论文集[C]. 北京: 中国气象学会, 2008.
- [22] 王国桢, 任万辉, 于兴娜, 等. 沈阳市冬季大气 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子污染特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2021, **42**(1): 30-37.
- Wang G Z, Ren W H, Yu X N, *et al.* Characteristics and sources of water-soluble ion pollution in $PM_{2.5}$ in winter in Shenyang[J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(1): 30-37.
- [23] 孙佳侯, 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.
- [24] 中华人民共和国环境保护部. 关于印发《受沙尘天气过程影响城市空气质量评价补充规定》的通知[EB/OL]. https://www.mee.gov.cn/gkml/hbb/bgt/201701/t20170106_394054.htm, 2017-01-04.
- [25] 胡元洁, 蒋楠. 沙尘天气对西安市环境空气质量的影响[J]. *中国沙漠*, 2020, **40**(6): 53-60.
- [26] 孙韧, 陈冠益, 董海燕. 天津市春季颗粒物污染特征及典型沙尘过程分析[J]. *环境科学与技术*, 2018, **41**(6): 8-14.
- Sun R, Chen G Y, Dong H Y. Pollution characteristics of particulate matters and a dust storm episode in the spring of Tianjin[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **41**(6): 8-14.
- [27] 张艳. 滨海地区背景点和城区大气 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 的化学组成及对人体健康的影响[D]. 青岛: 山东大学, 2020.
- [28] Wang G, Zhu Z Y, Zhao N, *et al.* Variations in characteristics and transport pathways of $PM_{2.5}$ during heavy pollution episodes in 2013-2019 in Jinan, a central city in the north China Plain[J]. *Environmental Pollution*, 2021, **284**, doi: 10.1016/j.envpol.2021.117450.
- [29] Paatero P, Tapper U. Analysis of different modes of factor analysis as least squares fit problems[J]. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 1993, **18**(2): 183-194.
- [30] 颜梅, 徐勤爱, 邵滋和. 青岛百年气压与风场统计特征分析[J]. *海洋预报*, 2003, **20**(3): 12-17.
- [31] 王宏, 郑秋萍, 洪有为, 等. 2017 年漳州海陆风特征与冬春季污染物浓度关系[J]. *气象与环境学报*, 2020, **36**(3): 33-40.
- Wang H, Zheng Q P, Hong Y W, *et al.* Characteristics of sea-land breeze and its relationship with pollutant concentrations during winter and spring in 2017 in Zhangzhou[J]. *Journal of Meteorology and Environment*, 2020, **36**(3): 33-40.
- [32] 张天航, 徐冉, 桂海林. 2019 年 11 月大气环流和天气分析[J]. *气象*, 2020, **46**(2): 283-288.
- Zhang T H, Xu R, Gui H L. Analysis of the November 2019 atmospheric circulation and weather[J]. *Meteorological Monthly*, 2020, **46**(2): 283-288.
- [33] 徐冉, 桂海林, 江琪, 等. 2019 年 12 月大气环流和天气分析[J]. *气象*, 2020, **46**(3): 441-448.
- Xu R, Gui H L, Jiang Q, *et al.* Analysis of the December 2019 atmospheric circulation and weather[J]. *Meteorological Monthly*, 2020, **46**(3): 441-448.
- [34] 康晖, 朱彬, 王红磊, 等. 长三角典型站点冬季大气 $PM_{2.5}$ 中 OC、EC 污染特征[J]. *环境科学*, 2018, **39**(3): 961-971.
- Kang H, Zhu B, Wang H L, *et al.* Characterization and variation of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in $PM_{2.5}$ during the winter in the Yangtze River Delta Region, China[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(3): 961-971.
- [35] Chow J C, Watson J G, Lu Z Q, *et al.* Descriptive analysis of $PM_{2.5}$ and PM_{10} at regionally representative locations during SJVAQS/AUSPEX[J]. *Atmospheric Environment*, 1996, **30**(12): 2079-2112.
- [36] 武高峰, 王丽丽, 武志宏, 等. 石家庄市采暖季 $PM_{2.5}$ 碳组分昼夜污染特征及来源分析[J]. *环境科学学报*, 2020, **40**(7): 2356-2364.
- Wu G F, Wang L L, Wu Z H, *et al.* Pollution diurnal variation and source analysis of $PM_{2.5}$ carbon components in heating season in Shijiazhuang City[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2020, **40**(7): 2356-2364.
- [37] Ding X X, Kong L D, Du C T, *et al.* Characteristics of size-resolved atmospheric inorganic and carbonaceous aerosols in urban Shanghai[J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **167**: 625-641.
- [38] Zhang H Y, Cheng S Y, Li J B, *et al.* Investigating the aerosol mass and chemical components characteristics and feedback effects on the meteorological factors in the Beijing-Tianjin-Hebei region, China[J]. *Environmental Pollution*, 2019, **244**: 495-502.
- [39] Liang X X, Huang T, Lin S Y, *et al.* Chemical composition and source apportionment of PM_{10} and $PM_{2.5}$ in a national coal chemical industrial base of the Golden Energy Triangle, Northwest China[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **659**: 188-199.
- [40] 孙有昌, 姜楠, 王申博, 等. 安阳市大气 $PM_{2.5}$ 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 $PM_{2.5}$ of Anyang city[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(1): 75-81.
- [41] 刘威杰, 石明明, 程铖, 等. 夏季大气 $PM_{2.5}$ 中元素特征及源解析: 以华中地区平顶山-随州-武汉为例[J]. *环境科学*, 2020, **41**(1): 23-30.
- Liu W J, Shi M M, Cheng C, *et al.* Characteristics and sources of elements in $PM_{2.5}$ during summer for three typical cities in Pingdingshan-Suizhou-Wuhan, Central China[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(1): 23-30.
- [42] 李雪梅, 牟玲, 田妹, 等. 山西大学城 $PM_{2.5}$ 中元素特征、来源及健康风险评估[J]. *环境科学*, 2020, **41**(11): 4825-4831.
- Li X M, Mu L, Tian M, *et al.* Characteristics, sources, and health risks of elements in $PM_{2.5}$ in Shanxi University town[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(11): 4825-4831.
- [43] 李明燕, 杨文, 魏敏, 等. 典型沿海城市采暖期细颗粒物组分特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2020, **41**(4): 1550-1560.
- Li M Y, Yang W, Wei M, *et al.* Characteristics and sources apportionment of fine particulate matter in a typical coastal city

- during the heating period[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(4): 1550-1560.
- [44] 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 Xin, 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.
- [45] 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.

欢迎订阅 2022 年《环境科学》

《环境科学》创刊于 1976 年,由中国科学院主管,中国科学院生态环境研究中心主办,是我国环境科学学科中最早创刊的学术性期刊。

《环境科学》自创刊以来,始终坚持“防治污染,改善生态,促进发展,造福人民”的宗旨,报道我国环境科学领域内具有创新性高水平,有重要意义的基础研究和应用研究成果,以及反映控制污染,清洁生产和生态环境建设等可持续发展的战略思想、理论和实用技术等。

《环境科学》在国内外公开发行,并在国内外科技界有较大影响,被国内外一些重要检索系统收录,如工程索引 Ei Compendex;医学索引 MEDLINE; Scopus; 化学文摘 CA;俄罗斯文摘杂志 AJ;美国生物学文摘预评 BP;美国医学索引 IM;日本科学技术情报中心数据库 JICST;英国动物学记录 ZR;剑桥科学文摘(CSA); Environmental Sciences;剑桥科学文摘(CSA); Pollution Abstracts;剑桥科学文摘(CAS); Life Sciences Abstracts 等;国内的检索系统有中国科技论文统计与引文数据库(CSTPCD);中文科技期刊数据库(维普);中国期刊全文数据库(CNKI);数字化期刊全文数据库(万方);中国科学引文数据库(CSCD);中国生物学文摘等。

全国各地邮局均可订阅,如有漏订的读者可直接与编辑部联系,办理补订手续。

国内统一连续出版物号:CN 11-1895/X

国际标准连续出版物号:ISSN 0250-3301

国外发行代号:M 205

国内邮发代号:2-821

编辑部地址:北京市海淀区双清路 18 号(2871 信箱) 邮编:100085

电话:010-62941102;E-mail:hjcx@rcees.ac.cn;网址:www.hjcx.ac.cn

CONTENTS

Chemical Characteristics and Source Apportionment of PM _{2.5} in Urban Area of Beijing	AN Xin-xin, CAO Yang, WANG Qin, <i>et al.</i> (2251)
Modeling of PM _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 _{2.5} 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 ₂ -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 ₂ O ₂ Catalyzed by Magnetic Mn _{0.4} Zn _{0.4} Fe ₂ O ₄ @SiO ₂	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)