

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

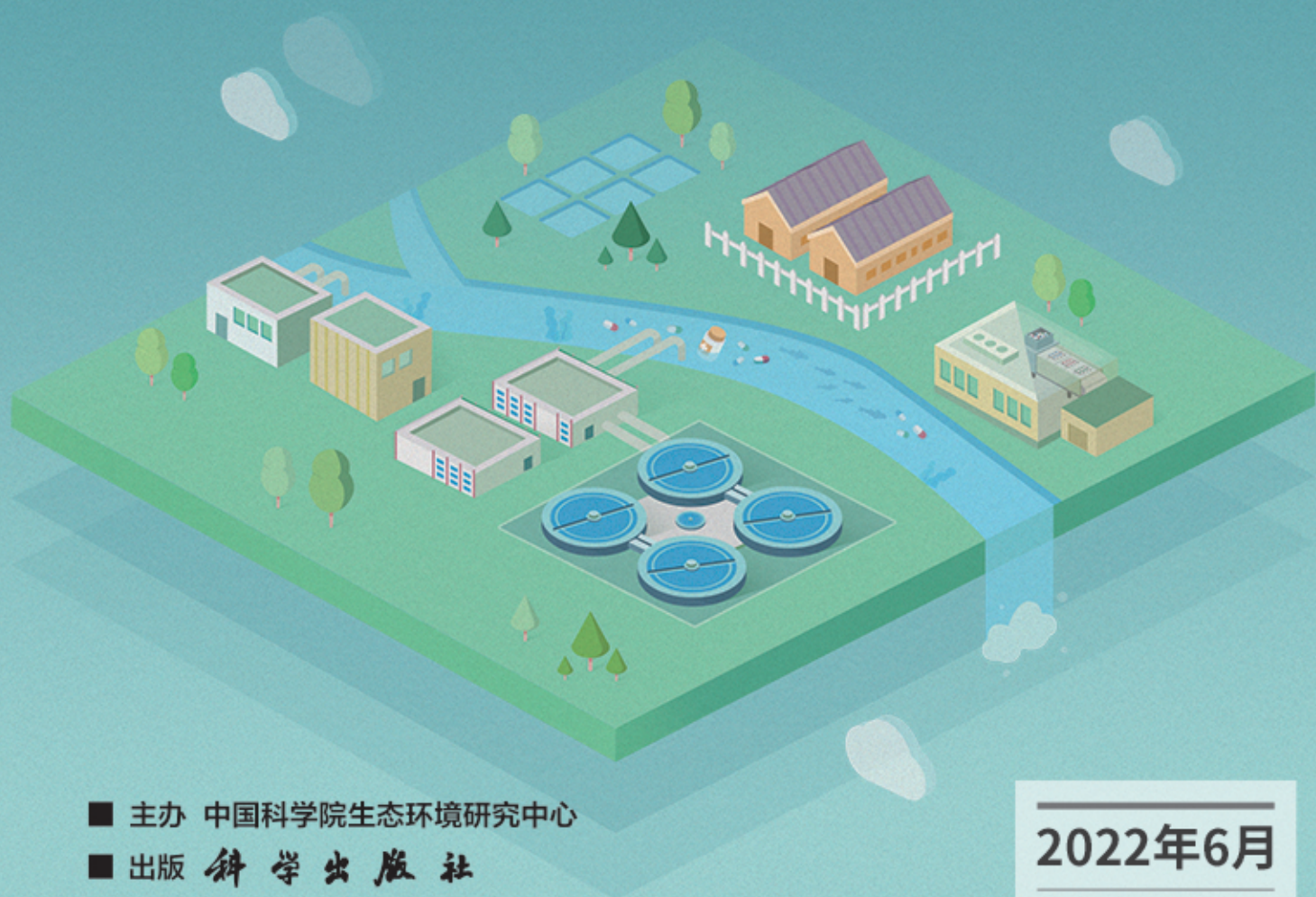
环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价

武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年6月

第43卷 第6期
Vol.43 No.6

目次

COVID-19 管控期间气象条件变化对京津冀 PM _{2.5} 浓度影响	邱雨露, 陈磊, 朱佳, 马志强, 李梓铭, 郭恒, 唐颖潇 (2831)
新冠疫情管控措施对郑州市 PM _{2.5} 浓度、粒径分布、组分和来源的影响	黄兵役, 王申博, 和兵, 薛若雨, 高更宇, 张瑞芹 (2840)
COVID-19 管控期间苏州市 PM _{2.5} 中金属元素浓度变化及来源解析	缪青, 杨倩, 吴也正, 魏恒, 周民锋, 张晓华, 邹强 (2851)
2015 ~ 2019 年南京北郊碳质气溶胶组成变化	谢添, 曹芳, 章炎麟, 林煜棋, 范美益, 宋文怀, 鲍孟盈, 项妍琨, 赵祝钰, 杨笑影, 谢锋, 张煜炯, 俞浩然, 张子金, 邢佳莉 (2858)
基于受体和化学传输的综合模型解析重庆 PM _{2.5} 来源	彭超, 李振亮, 曹云攀, 蒲茜, 方维凯, 王晓宸, 汪凌韬 (2867)
保定市冬季 PM _{2.5} 的氧化潜势特征及其影响来源分析	吴继炎, 杨池, 张春燕, 范美益, 吴爱坪, 章炎麟 (2878)
南京江北新区 PM _{2.5} 中水溶性有机氮的污染特征及其来源	关璐, 丁铖, 张毓秀, 胡建林, 于兴娜 (2888)
广西十万大山背景点 PM _{2.5} 中非极性有机气溶胶组成及来源解析	邢佳莉, 曹芳, 王谦, 张煜炯, 章炎麟 (2895)
大气多环芳烃区域迁移转化模型比较与关键影响因素: 以京津冀地区为例	张馨露, 刘世杰, 韩美丽, 苏超, 张志鹏, 马琳琳, 李洋, 程苗苗 (2906)
基于过程分析的京津冀区域典型城市臭氧成因	唐颖潇, 姚青, 蔡子颖, 丁净, 樊文雁, 杨旭, 韩素芹 (2917)
天津市 PM _{2.5} -O ₃ 复合污染特征及气象影响分析	肖致美, 李源, 孔君, 李鹏, 蔡子颖, 高璟, 徐虹, 戴运峰, 邓小文 (2928)
2016 ~ 2020 年山东省空气质量时空分布特征及影响因素分析	周梦鸽, 杨依, 孙媛, 张凤英, 李永华 (2937)
河南省臭氧污染趋势特征及敏感性变化	晏洋洋, 尹沙沙, 何秦, 秦凯, 张瑞芹 (2947)
热带气旋对珠三角秋季臭氧污染的影响	赵伟, 吕梦瑶, 卢清, 高博, 梁小明, 刘明, 孙家仁, 陈来国, 范绍佳 (2957)
武汉市夏季大气挥发性有机物实时组成及来源	苏维峰, 孔少飞, 郑煌, 陈楠, 祝波, 全继宏, 祁士华 (2966)
运城市夏季大气挥发性有机物污染特征及来源解析	温肖宇, 赵文婷, 罗淑贞, 张强, 王姝涛, 马俊杰, 刘新罡 (2979)
我国地表水新烟碱类杀虫剂对水生生物安全的威胁	范丹丹, 刘红玲, 杨柳燕 (2987)
长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价	武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌 (2996)
内蒙古东北部地区地下-地表饮用水源多环芳烃污染特征与风险	张坤峰, 昌盛, 付青, 樊月婷, 王思瑞, 孙兴滨, 王山军 (3005)
不同尺度土地利用方式对地表水环境质量的影响及驱动机制	宋静雯, 张学霞, 姜东旸, 赵丞豪, 李鹏飞 (3016)
高原湖泊周边浅层地下水: 氮素时空分布及驱动因素	李桂芳, 杨恒, 叶远行, 陈清飞, 崔荣阳, 陈安强, 张丹 (3027)
青海湖沉积物重金属分布及其潜在生态风险分析	张雅然, 车霏霏, 付正辉, 许野, 李薇 (3037)
东江湖表层沉积物重金属污染特征与潜在生态风险评价	赵晓亮, 李响, 卢洪斌, 卢少勇, 王涛, 张森霖, 国晓春, 张静, 弥启欣, 刘晓贺, 宋书峰 (3048)
湖泊沉积物有机磷释放动力学特征及水质风险	刘哲哲, 倪兆奎, 刘思儒, 李晓秀, 王圣瑞 (3058)
长三角一体化示范区青浦区水体表层沉积物有机质分布特征、来源解析及污染评价	张智博, 段艳平, 涂耀仁, 罗鹏程, 高峻 (3066)
香溪河流域微塑料的分布特征及其迁移规律分析	陈圣盛, 李卫明, 张坤, 熊伟唯, 张续同, 刘子健 (3077)
城市水体微塑料垂向分布下附着细菌群落结构和功能响应	陈玉芳, 闫振华, 张燕, 赵海洲 (3088)
2015 ~ 2020 年洪泽湖浮游植物群落结构及其环境影响因子	屈宁, 邓建明, 张祯, 蔡永久, 龚志军, 李明 (3097)
嘉兴南湖不同湖区浮游植物群落结构特征与环境因子关系	王雅雯, 李迎鹤, 张博, 郭云艳, 陈俊伊, 韩松 (3106)
近 20 年来广东省农业面源污染负荷时空变化与来源分析	葛小君, 黄斌, 袁再健, 王栋栋, 王泉泉, 陈佳村, 谢真越 (3118)
长江上游平原丘陵区农业非点源污染输出特征和驱动机制	谭少军, 刘洋, 朱小婕, 刘荷, 邵景安, 邓华 (3128)
高分辨率数据驱动的流域非点源污染输出风险评估方法	顾晶晶, 冶涛涛, 董甲平, 蒋云钟, 曹引, 赵红莉 (3140)
不同面源强度影响下城市河流溶解性有机质光谱特征变化	陈旭东, 高良敏 (3149)
生态沟渠-生物滞留池组合控制农村径流污染	石雷, 杨小丽, 吴青宇, 王亦铭, 徐佳莹 (3160)
不同水力扰动强度对老化 PSMPs 在泥水两相间迁移的影响	吴香香, 艾萍, 李大鹏 (3168)
北京市中心城区屋面径流污染特征及来源分析	席玥, 郭婧, 陶蕾, 田颖, 陈吉吉, 吴悦, 徐藤, 荆红卫, 刘保献 (3177)
不同植被绿色屋顶径流水质年际变化特征	章孙逊, 张守红, 葛德, 闫婧, 杨航, 王任重远, 魏良怡, 张成玉 (3187)
可见光促有机物诱导铁还原的多相类芬顿体系强化效能与机制	曹丝雨, 许路, 付权超, 金鑫, 石炬, 金鹏康 (3195)
4 种典型抗生素在反硝化体系中的去除特性	唐佳, 陈茜, 覃牧川, 唐溪, 唐崇俭 (3204)
农业废弃物基生物炭对水溶液中镉的吸附效果与机制	龚沛云, 孙丽娟, 宋科, 孙雅菲, 秦秦, 周斌, 薛永 (3211)
腐殖酸-重金属对 ANAMMOX 菌脱氮性能的影响及其动力学分析	李芸, 崔楠, 熊星星, 黄志远, 李泽兵, 王东亮, 李朝明, 许丹, 李军 (3221)
2000 ~ 2020 年西南地区植被 NDVI 对气候变化和人类活动响应特征	徐勇, 黄雯婷, 窦世卿, 郭振东, 李欣怡, 郑志威, 靖娟利 (3230)
黄河三角洲湿地不同植被类型下土壤营养元素空间分布及其生态学特征	孙德斌, 栗云召, 于君宝, 杨继松, 杜朝红, 孙丹丹, 凌越, 马元庆, 周迪, 王雪宏, 赵佳怡 (3241)
青藏高原东北部地区表层土壤中全氟化合物的分布特征及来源解析	温祥洁, 陈朝辉, 徐维新, 吴小娟, 郝云庆, 刘伟, 印红玲, 方淑红 (3253)
西南典型“退耕还林”区土地利用/覆被变化对土壤中硒及重金属含量的影响	刘永林, 刘属灵, 吴梅, 田兴磊, 刘双燕 (3262)
贵州普定喀斯特关键带土壤重金属形态特征及风险评价	张倩, 韩贵琳 (3269)
南丹盆地东部山区土壤锆分布特征及其影响因素分析	董秋瑶, 赖书雅, 宋超, 温皓天, 严明疆, 杨振京 (3278)
神农架川金丝猴栖息地重金属污染特征及风险评价	严佳莉, 于紫玲, 余辉亮, 向明灯, 王传华 (3288)
石灰泡石钝化后两种轮作模式对重度镉污染农田土壤的利用及修复	许璐, 周春海, 刘梅, 孔辉, 李元, 黄志红 (3299)
水稻磷盈亏对镉吸收转运的影响	谭文韬, 霍洋, 周航, 仇银燕, 曾鹏, 辜娇峰, 廖柏寒 (3308)
改良剂调控下水稻镉累积和土壤溶解性有机质光谱特征的响应	罗会龙, 陈娟, 张云慧, 袁贝, 杨宾, 张昊, 杜平 (3315)
土壤真菌群落对五台山亚高山草甸退化的响应	罗正明, 赫磊, 刘晋仙, 胡砚秋, 周妍英, 郑庆荣, 柴宝峰 (3328)
小麦与不同作物多样化轮作对土壤真菌群落的影响	靳海洋, 岳俊芹, 闫雅倩, 张德奇, 杨程, 张素瑜, 李向东, 邵运辉, 方保停, 王汉芳, 秦峰 (3338)
重庆农田土壤有机碳稳定性同位素空间分布特征	廖宇琴, 龙娟, 木志坚, 文首鑫, 李翠莲, 杨志敏, 赵秀兰 (3348)
长江三角洲 2018 年土壤 NO 排放特征	廖加强, 薛金, 王文锦, 朱永慧, 朱安生, 黄凌, 王杨君, 李莉 (3357)
基于多源数据的城市扩张中热环境演变及响应	梁建设, 白永平, 杨雪蕊, 高祖桥, 李玲蔚, 张春悦, 王倩 (3365)
《环境科学》征订启事 (3004) 《环境科学》征稿简则 (3047) 信息 (3252, 3298, 3327)	

2015 ~ 2019 年南京北郊碳质气溶胶组成变化

谢添^{1,2}, 曹芳^{1,2*}, 章炎麟^{1,2}, 林煜棋^{1,2}, 范美益^{1,2}, 宋文怀^{1,2}, 鲍孟盈^{1,2}, 项妍琨^{1,2}, 赵祝钰^{1,2}, 杨笑影^{1,2}, 谢锋^{1,2}, 张煜炯^{1,2}, 俞浩然^{1,2}, 张子金^{1,2}, 邢佳莉^{1,2}

(1. 南京信息工程大学应用气象学院, 耶鲁大学-南京信息工程大学大气环境中心, 气候与环境变化国际合作联合实验室, 南京 210044; 2. 南京信息工程大学气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 气象灾害教育部重点实验室, 南京 210044)

摘要: 碳质气溶胶是大气细颗粒物的重要组成部分, 对空气质量、人体健康和气候变化有着重要影响. 为了探究碳质气溶胶在减排背景下的长期变化, 本研究测定了南京北郊 5 a (2014 年 12 月 17 日至 2020 年 1 月 5 日) $PM_{2.5}$ 样品的有机碳 (OC) 和元素碳 (EC) 浓度. 结果表明, $\rho(OC)$ 和 $\rho(EC)$ 5a 平均值分别为 $(10.2 \pm 5.3) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(1.6 \pm 1.1) \mu g \cdot m^{-3}$, 其中 OC 占 $PM_{2.5}$ 的 31.1%, EC 占 $PM_{2.5}$ 的 5.2%. OC 和 EC 均呈现出冬高夏低的季节特征. 通过非参数的 Mann-Kendall 检验和 Sen's 斜率发现, OC 和 $PM_{2.5}$ 的浓度整体呈显著下降趋势 [OC: $P < 0.0001$, $-0.79 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $-0.29\% \cdot a^{-1}$; $PM_{2.5}$: $P < 0.0001$, $-4.59 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $-1.58\% \cdot a^{-1}$]. EC 虽然整体上升, 但显著性和变化幅度相对而言并不明显 [$P = 0.02$; $0.05 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $0.02\% \cdot a^{-1}$]. 从冬季的长期变化看, OC、EC 都呈显著下降 [OC: $P < 0.0001$, $-2.05 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $-0.74\% \cdot a^{-1}$; EC: $P = 0.001$, $-0.15 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $-0.05\% \cdot a^{-1}$], 且下降较总体更明显. OC 和 EC 的相关性表明, 冬季和夏季的来源较春季和秋季更复杂. 根据 OC/EC 特征比值判断, 2015 ~ 2019 年燃煤源和生物质燃烧源的贡献有所下降, 工业源与机动车排放源的影响日益显著, 与此对应的是 OC 的明显下降和 EC 的轻微回升. OC/EC 比值大于 2.0, 说明研究区域存在二次污染. 进一步计算发现 SOC 变化与 OC 一致, 呈显著下降 [$P < 0.0001$, $-0.47 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $-0.17\% \cdot a^{-1}$], 均值为 $(5.0 \pm 3.5) \mu g \cdot m^{-3}$, 占 OC 的 49.2%. 以上变化说明南京市近年来对空气污染的防控治理效果明显, 同时今后的治理可以针对 VOCs 的排放, 以减轻二次污染.

关键词: 南京北郊; 有机碳 (OC); 元素碳 (EC); 长期变化; 二次有机碳 (SOC)

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)06-2858-09 DOI: 10.13227/j.hj.kx.202110088

Changes in Carbonaceous Aerosol in the Northern Suburbs of Nanjing from 2015 to 2019

XIE Tian^{1,2}, CAO Fang^{1,2*}, ZHANG Yan-lin^{1,2}, LIN Yu-chi^{1,2}, FAN Mei-yi^{1,2}, SONG Wen-huai^{1,2}, BAO Meng-ying^{1,2}, XIANG Yan-kun^{1,2}, ZHAO Zhu-yu^{1,2}, YANG Xiao-ying^{1,2}, XIE Feng^{1,2}, ZHANG Yu-xian^{1,2}, YU Hao-ran^{1,2}, ZHANG Zi-jin^{1,2}, XING Jia-li^{1,2}

(1. International Joint Laboratory on Climate and Environment Change (ILCEC), Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, School of Applied Meteorology, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 2. Key Laboratory of Meteorological Disaster, Ministry of Education (KLME), Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters (CIC-FEMD), Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China)

Abstract: Carbonaceous aerosol is an important component of atmospheric fine particles that has an important impact on air quality, human health, and climate change. In order to explore the long-term changes in carbonaceous aerosol under the background of emission reduction, this study measured the mass concentrations of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) of $PM_{2.5}$, which collected in the northern suburbs of Nanjing for five years (December 17, 2014 to January 5, 2020). The results showed that the five-year average $\rho(OC)$ and $\rho(EC)$ were $(10.2 \pm 5.3) \mu g \cdot m^{-3}$ and $(1.6 \pm 1.1) \mu g \cdot m^{-3}$, accounting for 31.1% and 5.2% of $PM_{2.5}$, respectively. OC and EC concentrations were both high in winter and low in summer. According to the nonparametric Mann-Kendall test and Sen's slope, the mass concentrations of OC and $PM_{2.5}$ decreased significantly [OC: $P < 0.0001$, $-0.79 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $-0.29\% \cdot a^{-1}$; $PM_{2.5}$: $P < 0.0001$, $-4.59 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $-1.58\% \cdot a^{-1}$]. Although EC had an upward trend, the significance and range of change were not obvious [$P = 0.02$, $0.05 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $0.02\% \cdot a^{-1}$]. OC and EC decreased significantly during winter from 2014 to 2019 [OC: $P < 0.0001$, $-2.05 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $-0.74\% \cdot a^{-1}$; EC: $P = 0.001$, $-0.15 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $-0.05\% \cdot a^{-1}$], and the decline was more obvious than the whole. The correlation between OC and EC showed that the sources in winter and summer were more complex than those in spring and autumn. According to the characteristic ratio of OC and EC, the contribution of coal combustion and biomass burning decreased from 2015 to 2019, whereas the impact of industrial sources and vehicle emissions became more significant. Corresponding to this was the obvious decline in OC and the slight recovery of EC. The OC/EC ratio was over 2.0, indicating that there was secondary pollution in the study area. Further calculation revealed that the variation in SOC was consistent with that in OC, showing a significant decrease [$P < 0.0001$, $-0.47 \mu g \cdot (m^3 \cdot a)^{-1}$, $-0.17\% \cdot a^{-1}$]. The average mass concentration of SOC was $(5.0 \pm 3.5) \mu g \cdot m^{-3}$, accounting for 49.2% of OC. These changes indicate clear effects of the prevention and control of air pollution in Nanjing in recent years. Furthermore, future control can focus on the emissions of VOCs to reduce secondary pollution.

Key words: northern suburb of Nanjing; organic carbon (OC); elemental carbon (EC); long-term changes; secondary organic carbon (SOC)

收稿日期: 2021-10-13; 修订日期: 2021-11-08

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41977305, 41977185); 江苏省自然科学基金杰出青年基金项目 (BK20180040); 江苏省“333 人才计划”项目 (RRA20200)

作者简介: 谢添 (1997 ~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为大气环境, E-mail: 20191208030@nuist.edu.cn

* 通信作者, E-mail: caofang@163.com

碳质气溶胶是大气气溶胶的重要组成部分,主要包括有机碳(organic carbon, OC)、元素碳(elemental carbon, EC)和碳酸盐碳(carbonate carbon, CC),对空气质量、人体健康及气候变化有着重要的影响^[1,2]. 其中 OC 和 EC 约占大气细颗粒物(空气动力学直径小于 $2.5\ \mu\text{m}$, 即 $\text{PM}_{2.5}$)的 10% ~ 50%, 而 CC 对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献通常小于 5%, 在研究中一般不予考虑^[3~5]. OC 的来源较为复杂,既有污染源直接排放的一次有机碳(POC),也有气态前体物通过气相或液相反应等途径生成的二次有机碳(secondary organic carbon, SOC)^[6]. EC 又称黑碳(BC),主要来源于化石燃料和生物质燃料的不完全燃烧^[7]. OC 和 EC 由于物理化学性质的不同,对气候系统有着相反的作用. EC 对紫外波长到红外波长范围内的光线具有强吸收作用,因而对气候系统有增温作用,而 OC 对光有散射作用,总体表现为变冷作用^[8]. 因此,对碳质气溶胶进行研究并加以控制,从而减少其带来的负面影响,是一直以来的重要课题.

碳质气溶胶的研究开展较早,但大部分都是基于颗粒物的短期(特殊污染事件, 15d 左右; 季节变化, 一个月及以上)监测,只能反映某个时间段内大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中含碳组分的分布特征和来源贡献,对于长期(1a 及以上)的观测比较有限. 随着我国能源结构的调整以及大气污染治理的深入开展,全国各主要城市的空气质量均有改善,作为主要污染物的大气细颗粒物呈现出逐年下降的趋势^[9~12]. 长期的连续监测有助于了解这些调整对污染物的浓度、组成以及来源的持续影响,为有效控制及治理碳质气溶胶污染提供基础资料和科学依据. 长期观测需要耗费极高的人力物力,且数据再分析的工作量和成本也很高,因而大多数分析都是从数据本身出发,通过一些数学计算进行,如利用 OC/EC 比值和 OC、EC 相关性判断碳质气溶胶的大概来源,估算 SOC 并通过 SOC/OC 量化二次有机碳的贡献等. 目前国内对碳质气溶胶的长期观测较少,主要集中在一些中心城市. 如 Ji 等^[3]的研究对北京城区的碳质气溶胶进行了长达 5 a 的半连续观测. 结果表明,在严格的管控措施下, $\rho(\text{OC})$ 从 $14.0\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 下降到 $7.7\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $\rho(\text{EC})$ 从 $4.0\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 降至 $2.6\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Yao 等^[7]对上海郊区 2015 ~ 2017 年冬季的 OC 和 EC 进行了研究,发现 OC 有着小幅下降,EC 显著降低, SOC/OC 上升明显. Yin 等^[13]研究了武汉、广州、重庆和兰州 1995 ~ 2017 年 $\text{PM}_{2.5}$ 的化学组成变化,结果显示,OC 和 EC 在 2013 年,也就是“大气污染防治计划”开展之后,都出现了下降.

南京市作为东部地区的中心城市,伴随着产业结构调整 and 机动车保有量的增长,碳质气溶胶的组成已经发生了变化. 近年来不少学者对南京市的 OC 和 EC 进行了不同程度的分析. 如 Chen 等^[4]的研究分析了南京 2014 和 2015 年的 $\text{PM}_{2.5}$ 样品,结果显示两年中均是冬季的 $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 最高[OC 为 $(11.8 \pm 10.0)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, EC 为 $(5.9 \pm 3.4)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 2014 年; OC 为 $(8.1 \pm 5.0)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, EC 为 $(4.5 \pm 2.4)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 2015 年],且 2014 年夏季和秋季的 OC 和 EC 较 2013 年有所下降. 殷丽娜等^[14]的研究通过离线采样分析了南京 2011 ~ 2015 年碳质组分的时空变化特征,发现 OC 和 EC 对 $\text{PM}_{2.5}$ 的总贡献率达到了 22%,其中 2013 年之后 $\text{PM}_{2.5}$ 、OC 和 EC 较 2011 ~ 2012 年显著下降,且 OC 和 EC 在空间上分布均匀,多个采样点的 OC/EC 年均值大于 2.0,表明二次气溶胶的贡献不容忽视. 丁峰等^[15]通过在线监测数据研究了南京城区 2014 ~ 2018 年的碳质组分污染特征,结果表明,在减排背景下,南京城区 2014 ~ 2018 年的 OC 较 2012 ~ 2013 年^[16]下降了 54% 左右,EC 则下降了 41% 左右,虽然这些下降有部分是由于测量方法不同引起的,但并不影响其整体是下降的这一判断. 城郊应该也存在相似甚至更明显的变化,因为城郊的污染较城区更严重,来源也更复杂,同时是污染治理的重点区域. 然而,目前针对南京郊区的碳质气溶胶的长期变化研究较少. 故本文选取了南京北郊地区的一个采样点,采集了 2015 ~ 2019 年的 $\text{PM}_{2.5}$ 样品,利用热光法测定了 OC 和 EC 的浓度,进一步分析了其年、季变化和来源变化,通过探讨减排背景下城郊碳质气溶胶污染特征,以期为之后的防控治理和深入研究提供一定的参考.

1 材料与方法

1.1 研究区域

采样点位于南京北郊南京信息工程大学文德楼顶 (118.72°E , 32.21°N),距地面约 30 m,附近有南钢、南化和扬子石化等工厂以及江北大道等交通干线,属于典型的工业源与交通源混合区域. 采样仪器使用大流量(流量 $999\ \text{L}\cdot\text{min}^{-1}$)采样仪(AMS-1, 广州铭野)及中流量($300\ \text{L}\cdot\text{min}^{-1}$)采样仪(KC-120H, 青岛崂山),采样频率为每个季度一次密集采样(持续 25 d 左右),其余时间为每周一次的常规采样. 采样开始前,石英膜要先在马弗炉中以 450°C 烘烤 6 h,且放入干燥皿平衡 72 h 后方可使用(温度 20°C , 湿度 50%). 采集完的样品同样需要放入干燥皿平衡 72 h,再使用电子天平称重,称重数据留作后

期参考.

1.2 OC 和 EC 测定

OC 和 EC 采用全自动半连续式分析仪 (Model-4, Sunset Lab) 进行测定. 该仪器以热光透射法 (thermal-optical transmittance method, TOT) 为原理, 即在分析过程中引入一束激光用来监测滤膜对激光的响应信号, 确定 OC 与 EC 的分割点, 以校正碳化所引起的误差. 升温程序选用稍作改动后的 NIOSH5040 方法^[17], 具体步骤为: ①从样品中截取面积为 2.27 cm^2 的石英滤膜, 放入石英炉内; ②样品在氮气的非氧化环境中逐级升温至 870°C , 致使 OC 被加热挥发 (该过程中也有部分 OC 被碳化; 即 pyrolyzed carbon, PC), 在此炉温下保持一段时间后, 冷却至 550°C ; ③此后样品又在氮气/氧气混合气 (He/O_2) 环境中逐级升温至 870°C , 该过程中 EC 被氧化分解为气态氧化物. 这两个步骤中所产生的分解产物都随氮气 (He) 进入二氧化锰 (MnO_2) 氧化炉被转化为 CO_2 后由非红外色散法 (NDIR) 定量检验. 整个过程中都有一束激光 (波长为 658 nm) 照在石英膜上, 随着 OC 的碳化导致激光的透射光强度逐渐减弱, 而在 He 切换成 He/O_2 同时加温时, 又会随着 PC 和 EC 的氧化分解而逐渐增强. 当透射光的强度恢复到起始强度时, 该时刻就定义为 OC/EC 分割点, 所以在这之前测得的含碳量即为样品的 OC 含量, 之后测得的为 EC 含量.

每次样品分析结束后, 仪器都会通入定量的氮气/甲烷 (He/CH_4) 标气, 用 CH_4 标准峰来定量样品分析结果和校正 NDIR 在每次样品分析过程中可能发生的漂移. 测样前后都会用标准蔗糖溶液进行外标校正, 采用内外标联合校正确保仪器具有较高的精准度, 其检出限为 $0.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 分析样品的过程中进行空白校正.

1.3 SOC 估算

OC 可以通过 OC 与 EC 最小比值法^[18]来计算, 根据给出的经验公式可计算出 SOC 的浓度:

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

式中, OC 为有机碳浓度, $(\text{OC}/\text{EC})_{\min}$ 为计算时段内所有样品比值的最小值, 本研究中计算使用的都是对应季节的 $(\text{OC}/\text{EC})_{\min}$ 值, 且选取最小值时剔除了受特殊事件如降水等影响的值.

1.4 数据来源及趋势分析

$\text{PM}_{2.5}$ 数据来源于南京市 9 个监测站点的 24 h 平均数据. 大气中各种变量的趋势检验采用了多种方法, 如线性回归、非参数的 Mann-Kendall 检验和 Sen's 斜率^[19,20]. 本研究中使用后两者进行长时间的趋势检验, 分析软件为 XLSTAT (<http://www.xlstat.com/en/>).

com/en/).

2 结果与讨论

2.1 OC 和 EC 浓度的时间变化特征

2.1.1 OC 和 EC 的年变化

采样期间 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 的平均值为 $(43.4 \pm 31.0) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 低于国家《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 二级标准 ($75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 分别为 $(10.2 \pm 5.1) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(1.6 \pm 1.1) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 总碳 ($\text{TC} = \text{OC} + \text{EC}$) 占 $\text{PM}_{2.5}$ 的 36.3% (表 1). 通过 Mann-Kendall 检验和 Sen's 斜率分析发现, 三者皆存在着显著的时间变化特征 (图 1), 其中 OC 和 $\text{PM}_{2.5}$ 的变化相同, 都呈显著下降 [OC : $P < 0.0001$, $-0.79 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $-0.29\% \cdot \text{a}^{-1}$; $\text{PM}_{2.5}$: $P < 0.0001$, $-4.59 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $-1.58\% \cdot \text{a}^{-1}$]; EC 虽然整体上升, 但其显著性和变化幅度较 OC 和 $\text{PM}_{2.5}$ 而言并不明显 [$P = 0.02$; $0.05 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $0.02\% \cdot \text{a}^{-1}$]. 同时, 减少的 OC 只占下降的 $\text{PM}_{2.5}$ 的 17% 左右, 这说明 $\text{PM}_{2.5}$ 的下降主要是由无机组分造成的. 从年均值来看 (图 2), OC 与 $\text{PM}_{2.5}$ 的变化一致, 都是 2015 ~ 2017 年下降, 2018 年有所回升, 2019 年继续下降; 而 EC 则是 2015 ~ 2016 年下降, 2017 ~ 2018 年回升, 2019 年又再次下降; 2015 ~ 2017 年总碳的占比有大幅升高, 之后趋于稳定. 其中, 2016 年是三者变化幅度最大的一年, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 由 $(63.3 \pm 33.3) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 下降至 $(40.7 \pm 29.7) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 下降了 36% 左右; $\rho(\text{OC})$ 由 $(13.1 \pm 6.4) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 减小至 $(9.5 \pm 4.8) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 减少了 28% 左右; $\rho(\text{EC})$ 由 $(1.6 \pm 0.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 降至 $(1.1 \pm 1.0) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 也降低了 28% 左右, 而总碳的占比则升高了 8% 左右, 这些污染物浓度的降低归因于 2016 年南京市大规模污染防控措施开展和长期治理的累积成效.

根据已有的报道, 如 Li 等^[16] 的研究指出 2012 ~ 2013 年南京城区的 $\rho(\text{OC})$ 为 $(13.8 \pm 9.3) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $\rho(\text{EC})$ 为 $(5.3 \pm 3.1) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 总碳质气溶胶 (TCA) 占 $\text{PM}_{2.5}$ 的 23% 左右; 丁峰等^[15] 的研究表明, 2014 ~ 2018 年南京城区的 $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 分别为 $(6.4 \pm 3.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(3.1 \pm 1.8) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 各占 $\text{PM}_{2.5}$ 的 12.2% 和 6.0%. 而本研究中 $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 5 a 均值分别为 $(10.0 \pm 5.2) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(1.6 \pm 1.1) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别占 $\text{PM}_{2.5}$ 的 31.1% 和 5.2%, 总碳占 $\text{PM}_{2.5}$ 的 36.3%, 明显高于南京 2011 ~ 2015 年的 22%^[14] 以及 2014 ~ 2018 年的 18.2%^[15], 表明南京北郊的 $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 在长期治理下有着一定

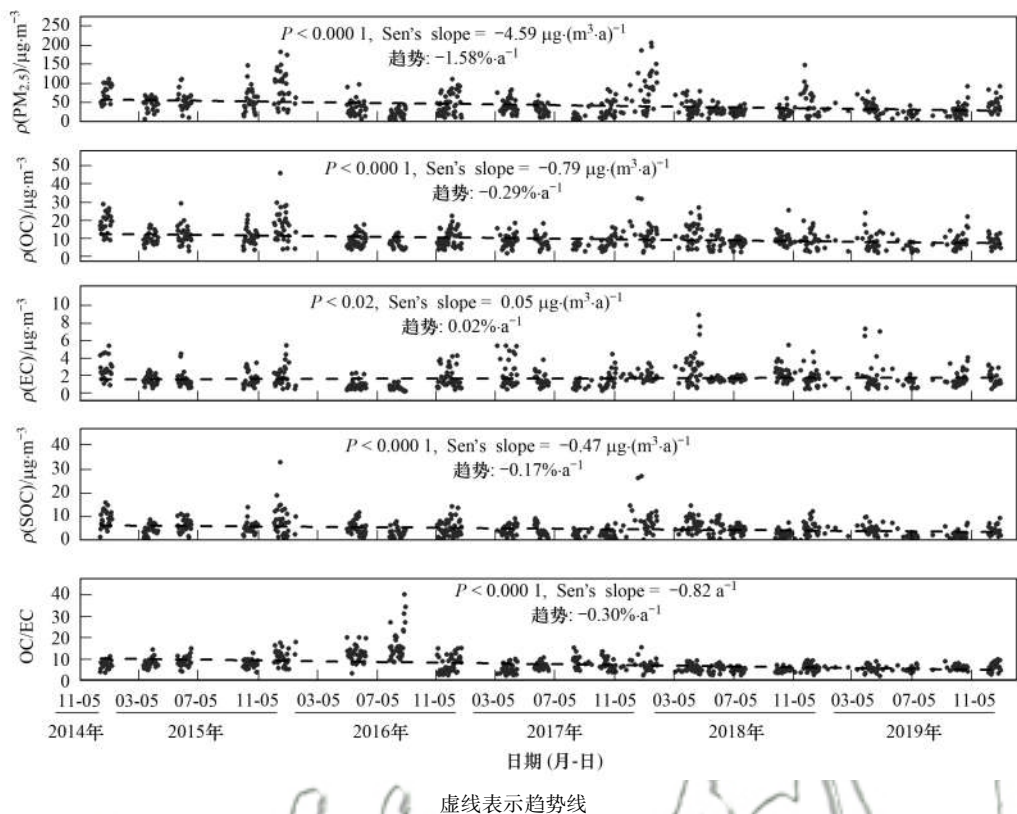


图1 2015 ~ 2019 年南京北郊 $\text{PM}_{2.5}$ 、OC、EC、SOC 浓度和 OC/EC 比值的变化趋势

Fig. 1 Trends of concentrations of $\text{PM}_{2.5}$, OC, EC, and SOC and OC/EC ratio in the northern suburbs of Nanjing from 2015 to 2019

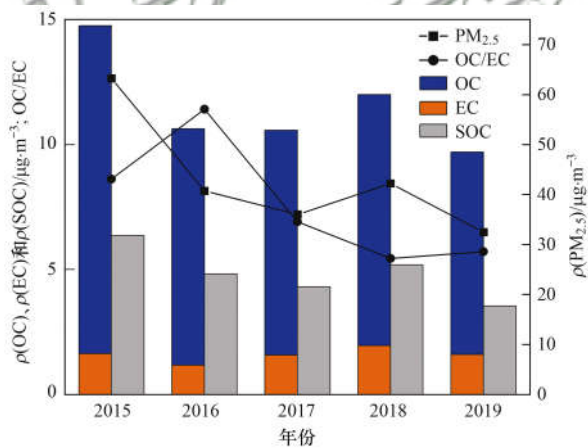


图2 2015 ~ 2019 年南京北郊 $\text{PM}_{2.5}$ 、OC、EC、SOC 浓度和 OC/EC 比值的年均值变化

Fig. 2 Annual means of concentrations of $\text{PM}_{2.5}$, OC, EC and SOC, and OC/EC ratio in the northern suburbs of Nanjing from 2015 to 2019

的下降,但碳质气溶胶的污染水平仍高于城区. 与国内主要城市相比(表2), 2015 ~ 2019 年南京北郊的 $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 平均值明显低于北京^[3] 和西安^[21] 等北方城市,与上海^[22]、广州^[23] 和宁波^[24] 等南方城市相比, $\rho(\text{OC})$ 略高, $\rho(\text{EC})$ 略低. 与国外城市相比, OC 和 EC 的浓度水平要明显低于一些发展中国家的城市,如印度的德里^[25],但仍高于发达国家的城市,如韩国的首尔^[26],这种差异主要是由各地的

能源结构不同引起的.

2.1.2 OC 和 EC 的季节变化

采样期间 OC 和 EC 季节性分布特征如图3所示,整体而言,OC 和 EC 都是冬高夏低,这与之前的研究结果一致^[27, 28]. OC 在冬季浓度水平较高,主要是由于冬季的静稳天气使得污染物不易扩散、更易积聚;而夏季虽然光照充足,有利于光化学反应的进行,但频繁的降水带来的清除作用,导致污染物浓度整体降低. EC 的季节变化主要受一次排放的影响,冬春季高于夏秋季,可能与冬春季节气温低,使得因供暖和机动车启动产生的一次排放增加有关. 从单个季节的长期变化来看(图4和图5),OC 在冬季和夏季都呈显著下降[冬: $P < 0.0001$, $-2.05 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $-0.74\%\cdot\text{a}^{-1}$; 夏: $P < 0.0001$, $-0.85 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $-0.38\%\cdot\text{a}^{-1}$],春季和秋季的下降趋势并不显著[春: $P = 0.26$, $-0.29 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $-0.13\%\cdot\text{a}^{-1}$; 秋: $P = 0.87$, $-0.04 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $-0.02\%\cdot\text{a}^{-1}$]. EC 在冬季呈显著下降[$P = 0.001$, $-0.15 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $-0.05\%\cdot\text{a}^{-1}$],春季和秋季的上升趋势与其他季节相比并不明显[春: $P = 0.02$, $0.12 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $0.06\%\cdot\text{a}^{-1}$; 秋: $P = 0.03$, $0.11 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $0.05\%\cdot\text{a}^{-1}$],夏季则呈显著上升[$P < 0.0001$, $0.15 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$, $0.07\%\cdot\text{a}^{-1}$],但这种上升主要是由 2018 年夏季

表 1 2015 ~ 2019 年南京北郊 OC/PM_{2.5}、EC/PM_{2.5}和 SOC/OC 的年均值/%

Table 1 Annual means of OC/PM_{2.5}, EC/PM_{2.5}, and SOC/OC in the northern suburbs of Nanjing from 2015 to 2019/%

项目	2015 年	2016 年	2017 年	2018 年	2019 年	平均值
OC/PM _{2.5}	23.8	31.7	34.5	33.0	32.1	31.1
EC/PM _{2.5}	3.1	3.5	6.0	6.5	6.5	5.2
SOC/OC	47.8	53.0	47.6	50.2	46.3	49.2

表 2 国内外主要城市 PM_{2.5}、OC 和 EC 浓度对比¹⁾/μg·m⁻³

Table 2 Comparison of PM_{2.5}, OC, and EC concentrations in domestic and foreign cities/μg·m⁻³

城市	采样年份	OC	EC	PM _{2.5}	方法	文献
南京	2015 ~ 2019	10.2 ± 5.3	1.6 ± 1.1	43.4 ± 31.0	TOT/NIOSH	本研究
南京	2014 ~ 2018	6.4 ± 3.9	3.1 ± 1.8	n. a	TOT/NIOSH	[15]
南京	2012 ~ 2013	13.8 ± 9.3	5.3 ± 3.1	117.6 ± 78.0	TOR/IMPROVE-A	[16]
北京	2015 ~ 2016	12.9 ± 8.4	4.1 ± 1.9	82.5 ± 52.1	TOR/IMPROVE-A	[3]
西安	2017	17.6 ± 11.8	4.1 ± 3.0	73.9 ± 69.0	TOR/IMPROVE-A	[21]
上海	2014	7.8 ± 4.6	2.1 ± 1.6	n. a	TOT/NIOSH	[22]
广州	2015 ~ 2016	8.2 ± 5.0	1.8 ± 0.8	66.0 ± 43.1	TOT/NIOSH	[23]
宁波	2012 ~ 2013	9.0	2.9	51.6	TOR/IMPROVE-A	[24]
德里	2013 ~ 2016	15.7 ± 12.7	7.3 ± 6.2	131.0 ± 79.0	TOR/IMPROVE-A	[25]
首尔	2014 ~ 2015	6.4 ± 3.0	1.0 ± 0.4	42.6 ± 23.3	TOT/NIOSH	[26]

1) n. a 表示无数据

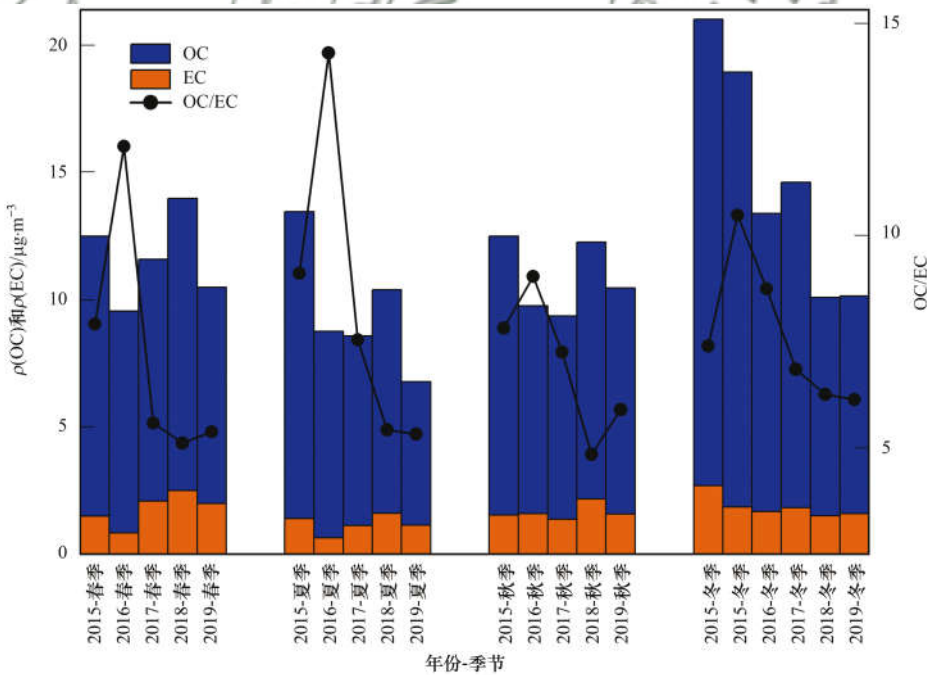


图 3 2015 ~ 2019 年南京北郊 OC、EC 的浓度和 OC/EC 比值的季节变化

Fig. 3 Seasonal variations in concentrations of OC and EC, and OC/EC ratio in the northern suburbs of Nanjing from 2015 to 2019

EC 的明显回升造成的,剔除 2018 年的数据之后,整体趋势由上升变为下降. OC 和 EC 在冬季都呈显著下降,说明南京市近年来对高污染的冬季的大气管控治理成效显著.

2.2 OC 和 EC 的来源变化

在大气颗粒物中,OC、EC 之间的相关性可以

在一定程度上反映二者来源之间的关系: OC 和 EC 的相关性好,说明它们可能来自于相似或一致的污染源;反之,则表明两者的来源差异很大^[29]. 本研究期间,OC、EC 在春季($P < 0.01$, $r = 0.775$)和秋季($P < 0.01$, $r = 0.798$)的相关性高于夏季($P < 0.01$, $r = 0.655$)和冬季($P < 0.01$, $r = 0.648$),这说

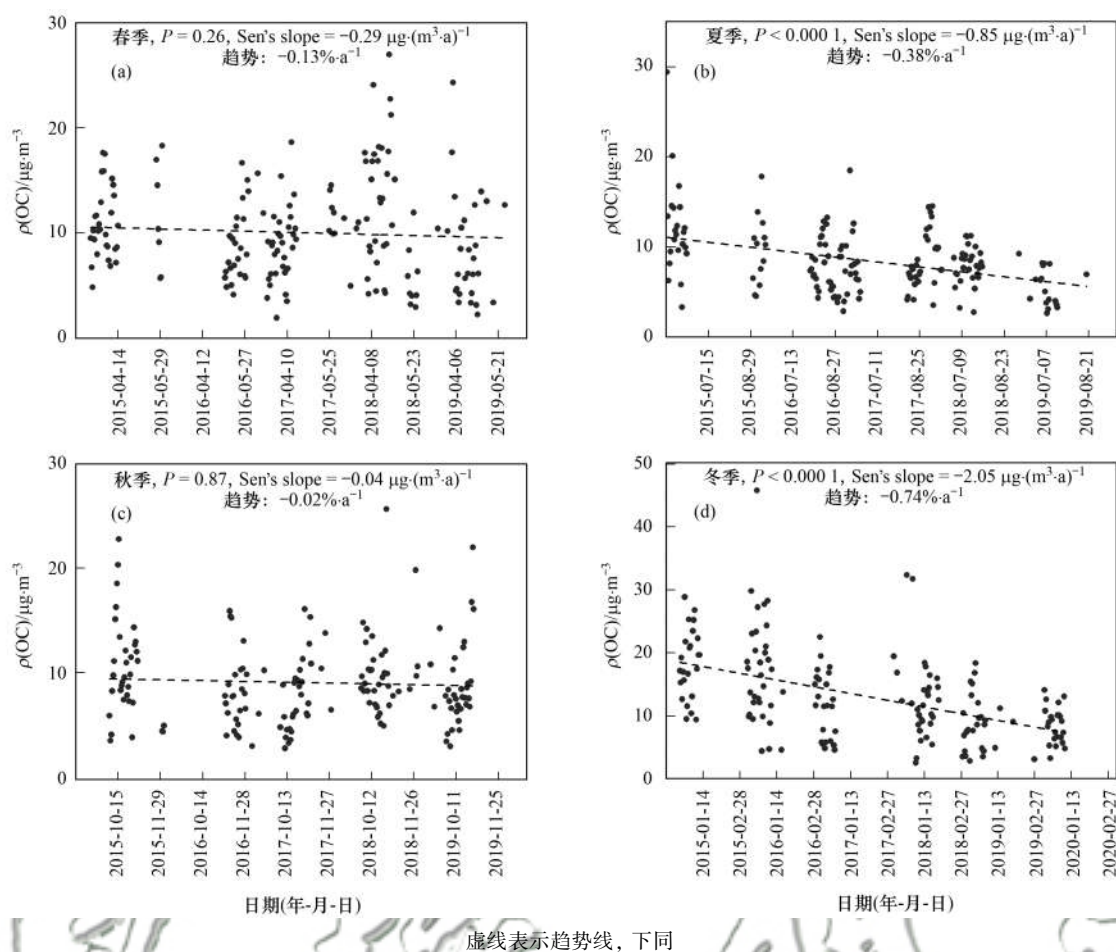


图 4 2015~2019 年南京北郊 OC 浓度的季节变化趋势

Fig. 4 Seasonal variation trends of OC concentrations in the northern suburbs of Nanjing from 2015 to 2019

明春季和秋季 OC、EC 的来源较为相似,而夏季和冬季则相对复杂。夏季季风活跃,可能会受到外来污染源的影响,同时光照强有利于光化学反应生成 SOC。冬季大气层结稳定,污染物易积聚,同时湿度高使得液相反应生成的 SOC 增多。

此外,OC 与 EC 的比值可以用来分析碳质颗粒物的来源和排放特征,不同污染源中的 OC/EC 比值不同。有研究表明机动车排放源的 OC/EC 比值为 2.5~5.0;工业排放源中 OC/EC 略微升高至 3.5~5.5^[30];燃煤和生物质燃烧的 OC/EC 比值分别为 8.1~12.7 和 2.5~10.5^[31,32]。总体而言(图 1 和图 2),OC/EC 年均值的最大值出现在 2016 年,为 11.5 ± 6.5 ,最小值在 2019 年,为 5.8 ± 1.6 ,且呈显著下降($P < 0.000 1$, -0.82 a^{-1} , $-0.30\% \cdot \text{a}^{-1}$)。从单个季节的长时间变化来看(图 3),尤其是冬季,OC/EC 比值也有着不同程度地下降,这说明各个季节的来源也有着与整体一致的变化。OC/EC 比值的下降,在一定程度上表明这几年中对应着较低 OC/EC 比值的排放源,如机动车尾气排放和工业源对 OC 和 EC 贡献有所上升,而对应着较高 OC/EC 比值的

排放源,如生物质燃烧源和燃煤源的贡献有所下降,与此对应的是 OC 的明显下降和 EC 的小幅回升。这种变化一方面可能受到了“煤改气”、“煤改电”和秸秆禁烧等措施的影响,另一方面工业的发展以及机动车保有量的增长也是重要因素。OC/EC 比值无论是年均值还是季节均值均大于 2.0,表明研究区域存在二次污染^[29],有必要进一步分析 SOC 的变化。

计算结果表明,2015~2019 年 SOC 的浓度变化与 $\text{PM}_{2.5}$ 和 OC 一致,呈显著下降 [$P < 0.000 1$, $-0.47 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$, $-0.17\% \cdot \text{a}^{-1}$],具体变化为 2015~2017 年下降,2018 年有所回升,2019 年继续下降,5 a 均值为 $(5.0 \pm 3.5) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,占 OC 的 49.2%,明显高于 2014~2018 年在南京草场门地区测得的 9.3%~31.9%^[15],与其它主要城市如北京(32%, 2017 年)和石家庄(38%, 2017 年)相比也高出不少,与天津(47%, 2017 年)较为接近^[33]。SOC 的浓度虽然显著下降,但占比无明显变化(表 1),这说明南京北郊地区的二次污染仍处于一个较高的水平。而 SOC 主要是由挥发性有机物(VOCs)经过一

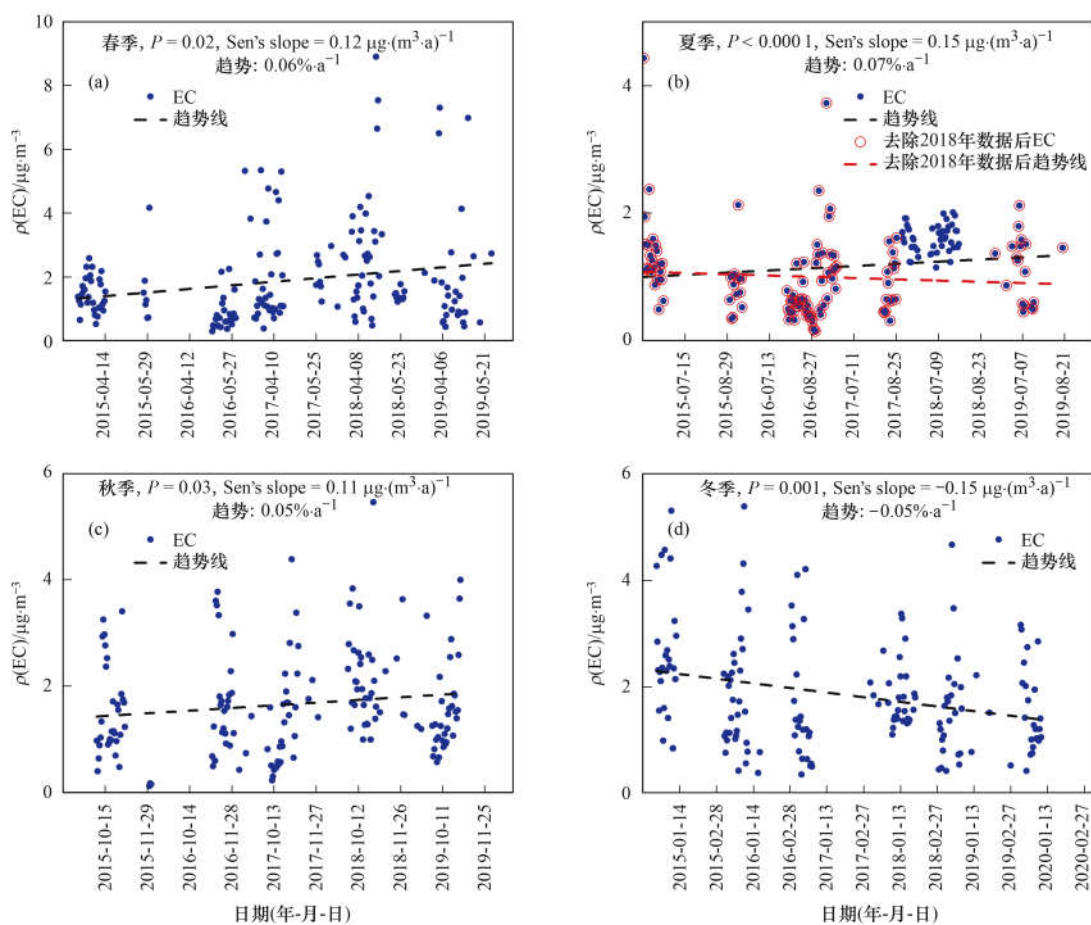


图5 2015~2019年EC浓度的季节变化趋势

Fig. 5 Seasonal variation trends of EC concentrations in the northern suburbs of Nanjing from 2015 to 2019

系列复杂的光化学反应生成^[5],因此,今后的治理可能还要关注 VOCs 的排放。

3 结论

(1) 采样期间南京北郊地区的 $\rho(\text{OC})$ 和 $\rho(\text{EC})$ 平均值分别为 $(10.0 \pm 5.2) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(1.6 \pm 1.1) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。从季节分布来看,OC 和 EC 都是冬高夏低。通过趋势分析发现,PM_{2.5} 和 OC 都呈显著下降趋势[PM_{2.5}: $P < 0.000 1$, $-4.59 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$, $-1.58\% \cdot \text{a}^{-1}$; OC: $P < 0.000 1$, $-0.79 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$, $-0.29\% \cdot \text{a}^{-1}$]. EC 的上升趋势相较而言并不明显 [$P = 0.02$; $0.05 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$, $0.02\% \cdot \text{a}^{-1}$]. 从冬季的长期变化来看,OC 和 EC 都呈显著下降 [$P < 0.000 1$, $-2.05 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$, $-0.74\% \cdot \text{a}^{-1}$; $P = 0.001$, $-0.15 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$, $-0.05\% \cdot \text{a}^{-1}$],且下降幅度是总体的数倍。这些变化表明近年来南京市对于大气污染的治理,尤其是高污染的冬季,已经取得了一定成效。

(2) OC 和 EC 的相关性表明,冬季和夏季的来源较春季和秋季更复杂。同时,OC/EC 比值总体呈显著下降 [$P < 0.000 1$; -0.82 a^{-1} , $-0.30\% \cdot \text{a}^{-1}$],且

从单个季节来看也有一致的变化,可能与燃煤源和生物质燃烧源的贡献降低,而工业源和机动车排放源的影响日益显著有关。

(3) OC/EC 比值大于 2.0,说明南京北郊存在明显的二次污染。通过计算发现, SOC 的变化趋势与 OC 一致,呈显著下降 [$P < 0.000 1$; $-0.47 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$, $-0.17\% \cdot \text{a}^{-1}$],浓度平均值为 $(5.0 \pm 3.5) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,占 OC 的 49.2%。SOC 的浓度有显著下降,但占比无明显变化,表明研究区域的二次污染仍比较严重。SOC 主要来源于以 VOCs 为前体物的光化学反应,所以今后的治理可以针对 VOCs,以减轻二次污染。

参考文献:

- [1] 张婷婷, 马文林, 元学奎, 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.
- [2] 李立伟, 肖致美, 陈魁, 等. 京津冀区域 PM_{2.5} 中碳组分污染特征研究[J]. 环境科学学报, 2018, **38**(4): 1306-1316.
Li L W, Xiao Z M, Chen K, et al. Characteristics of carbonaceous species of PM_{2.5} in the region of Beijing, Tianjin

- and Hebei, China[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38** (4): 1306-1316.
- [3] Ji D S, Gao W K, Maenhaut W, *et al.* Impact of air pollution control measures and regional transport on carbonaceous aerosols in fine particulate matter in urban Beijing, China; insights gained from long-term measurement [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, **19**(13): 8569-8590.
- [4] Chen D, Cui H F, Zhao Y, *et al.* A two-year study of carbonaceous aerosols in ambient PM_{2.5} at a regional background site for western Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Research*, 2017, **183**: 351-361.
- [5] Zhou S Z, Wang Z, Gao R, *et al.* Formation of secondary organic carbon and long-range transport of carbonaceous aerosols at Mount Heng in South China [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **63**: 203-212.
- [6] Sudheer A K, Aslam M Y, Upadhyay M, *et al.* Carbonaceous aerosol over semi-arid region of western India: Heterogeneity in sources and characteristics [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **178-179**: 268-278.
- [7] Yao L, Huo J T, Wang D F, *et al.* Online measurement of carbonaceous aerosols in suburban Shanghai during winter over a three-year period: Temporal variations, meteorological effects, and sources [J]. *Atmospheric Environment*, 2020, **226**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117408.
- [8] 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.
- [9] 夏晓圣, 汪军红, 宋伟东, 等. 2000 ~ 2019 年中国 PM_{2.5} 时空演化特征 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(11): 4832-4843.
- Xia X S, Wang J H, Song W D, *et al.* Spatio-temporal evolution of PM_{2.5} concentration during 2000 ~ 2019 in China [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(11): 4832-4843.
- [10] 李惠娟, 周德群, 魏永杰. 2015 ~ 2018 年我国 PM_{2.5} 健康损害价值的动态评估 [J]. *环境科学*, 2020, **41** (12): 5225-5235.
- Li H J, Zhou D Q, Wei Y J. Dynamic assessment of PM_{2.5} health damage value in China from 2015 to 2018 [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(12): 5225-5235.
- [11] 时燕, 刘瑞梅, 罗毅, 等. 近 20 年来中国 PM_{2.5} 污染演变的时空过程 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(1): 1-13.
- Shi Y, Liu R M, Luo Y, *et al.* Spatiotemporal variations of PM_{2.5} pollution evolution in China in recent 20 years [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(1): 1-13.
- [12] 罗毅, 邓琼飞, 杨昆, 等. 近 20 年来中国典型区域 PM_{2.5} 时空演变过程 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(7): 3003-3013.
- Luo Y, Deng Q F, Yang K, *et al.* Spatial-temporal change evolution of PM_{2.5} in typical regions of China in recent 20 years [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(7): 3003-3013.
- [13] Yin Z X, Huang X F, He L Y, *et al.* Trends in ambient air pollution levels and PM_{2.5} chemical compositions in four Chinese cities from 1995 to 2017 [J]. *Journal of Thoracic Disease*, 2020, **12**(10): 6396-6410.
- [14] 殷丽娜. 南京市大气细颗粒物中碳组分的时空分布特征及来源研究 [D]. 南京: 南京大学, 2016.
- Yin L N. Seasonal and spatial variations and potential sources of carbon fractions in fine particle matters in Nanjing [D]. Nanjing: Nanjing University, 2016.
- [15] 丁峰, 朱志峰, 陆晓波, 等. 2014 ~ 2018 年南京 PM_{2.5} 中碳组分污染特征分析 [J]. *中国环境监测*, 2020, **36**(2): 165-172.
- Ding F, Zhu Z F, Lu X B, *et al.* Characteristics analysis of carbon components in PM_{2.5} in Nanjing from 2014 to 2018 [J]. *Environmental Monitoring in China*, 2020, **36** (2): 165-172.
- [16] Li B, Zhang J, Zhao Y, *et al.* Seasonal variation of urban carbonaceous aerosols in a typical city Nanjing in Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **106**: 223-231.
- [17] 徐足飞, 曹芳, 高嵩, 等. 南京北郊秋季 PM_{2.5} 碳质组分污染特征及来源分析 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(7): 3033-3041.
- Xu Z F, Cao F, Gao S, *et al.* Characteristics and source analysis of carbonaceous components of PM_{2.5} during autumn in the northern suburb of Nanjing [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(7): 3033-3041.
- [18] 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.
- [19] Singh A, Chou C C K, Chang S Y, *et al.* Long-term (2003 ~ 2018) trends in aerosol chemical components at a high-altitude background station in the western North Pacific: Impact of long-range transport from continental Asia [J]. *Environmental Pollution*, 2020, **265**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.114813.
- [20] Boreddy S K R, Haque M M, Kawamura K. Long-term (2001 ~ 2012) trends of carbonaceous aerosols from a remote island in the western North Pacific: An outflow region of Asian pollutants [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(2): 1291-1306.
- [21] 牟臻, 陈庆彩, 王羽琴, 等. 西安市 PM_{2.5} 中碳质气溶胶污染特征 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(4): 1529-1536.
- Mu Z, Chen Q C, Wang Y Q, *et al.* Characteristics of carbonaceous aerosol pollution in PM_{2.5} in Xi'an [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(4): 1529-1536.
- [22] Chang Y H, Deng C R, Cao F, *et al.* Assessment of carbonaceous aerosols in Shanghai, China-Part 1: long-term evolution, seasonal variations, and meteorological effects [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17** (16): 9945-9964.
- [23] 刘晶晶, 胡猷舟, 黄凤莲, 等. 广州 PM_{2.5} 中有机碳和元素碳的污染特征 [J]. *湖南科技大学学报 (自然科学版)*, 2019, **34**(4): 111-117.
- Liu J J, Hu X Z, Huang F L, *et al.* Characteristics of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in PM_{2.5} in Guangzhou, China [J]. *Journal of Hunan University of Science and Technology (Natural Science Edition)*, 2019, **34**(4): 111-117.
- [24] 杜博涵, 黄晓锋, 何凌燕, 等. 宁波市 PM_{2.5} 中碳组分的时空分布特征和二次有机碳估算 [J]. *环境科学*, 2015, **36**(9): 3128-3134.
- Du B H, Huang X F, He L Y, *et al.* Seasonal and spatial variations of carbon fractions in PM_{2.5} in Ningbo and the estimation of secondary organic carbon [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(9): 3128-3134.
- [25] Jain S, Sharma S K, Vijayan N, *et al.* Seasonal characteristics of aerosols (PM_{2.5} and PM₁₀) and their source apportionment using PMF: A four year study over Delhi, India [J]. *Environmental Pollution*, 2020, **262**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.114337.
- [26] Park E H, Heo J, Kim H, *et al.* Long term trends of chemical constituents and source contributions of PM_{2.5} in Seoul [J].

- Chemosphere, 2020, **251**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.126371.
- [27] 王荔, 马嫣, 郑军, 等. 南京北郊 PM_{2.5} 中含碳物质和水溶性离子的污染特性[J]. 科学技术与工程, 2015, **15**(17): 91-99.
- Wang L, Ma Y, Zheng J, *et al.* Characterization apportionment of carbonaceous aerosol and water-soluble ions in PM_{2.5} at suburban Nanjing [J]. Science Technology and Engineering, 2015, **15**(17): 91-99.
- [28] 鲍孟盈. 南京北郊工业区碳质气溶胶污染特征及生物质燃烧的影响研究[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2017.
- Bao M Y. Study on the characteristics of carbonaceous aerosols in the industrial area in northern Nanjing and the effect of biomass burning[D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2017.
- [29] 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.
- [30] Wu X F, Vu T V, Shi Z B, *et al.* Characterization and source apportionment of carbonaceous PM_{2.5} particles in China—A review [J]. Atmospheric Environment, 2018, **189**: 187-212.
- [31] Wang L P, Zhou X H, Ma Y J, *et al.* Carbonaceous aerosols over China—review of observations, emissions, and climate forcing [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2016, **23**(2): 1671-1680.
- [32] Sun K, Qu Y, Wu Q, *et al.* Chemical characteristics of size-resolved aerosols in winter in Beijing [J]. Journal of Environmental Sciences, 2014, **26**(8): 1641-1650.
- [33] Ji D S, Gao M, Maenhaut W, *et al.* The carbonaceous aerosol levels still remain a challenge in the Beijing-Tianjin-Hebei region of China: Insights from continuous high temporal resolution measurements in multiple cities [J]. Environment international, 2019, **126**: 171-183.



CONTENTS

Impacts of Changes in Meteorological Conditions During COVID-19 Lockdown on PM _{2.5} Concentrations over the Jing-Jin-Ji Region	QIU Yu-lu, CHEN Lei, ZHU Jia, <i>et al.</i> (2831)
Influence of COVID-19 Prevention and Control Measures on PM _{2.5} Concentration, Particle Size Distribution, Chemical Composition, and Source in Zhengzhou, China	 HUANG Bing-yi, WANG Shen-bo, HE Bing, <i>et al.</i> (2840)
Concentration Variation and Source Analysis of Metal Elements in PM _{2.5} During COVID-19 Control in Suzhou	MIAO Qing, YANG Qian, WU Ye-zheng, <i>et al.</i> (2851)
Changes in Carbonaceous Aerosol in the Northern Suburbs of Nanjing from 2015 to 2019	XIE Tian, CAO Fang, ZHANG Yan-lin, <i>et al.</i> (2858)
Source Apportionment of PM _{2.5} Based on Hybrid Chemical Transport and Receptor Model in Chongqing	PENG Chao, LI Zhen-liang, CAO Yun-qing, <i>et al.</i> (2867)
Analysis on the Characteristics of Oxidation Potential and Influence Sources of PM _{2.5} in Baoding City in Winter	WU Ji-yan, YANG Chi, ZAHNG Chun-yan, <i>et al.</i> (2878)
Pollution Characteristics and Sources of Water-soluble Organic Nitrogen in PM _{2.5} in Jiangbei New Area, Nanjing	GUAN Lu, DING Cheng, ZHANG Yu-xiu, <i>et al.</i> (2888)
Organic Aerosols and Source Analysis of Fine Particles in the Background of Shiwanda Mountain, Guangxi	XING Jia-li, CAO Fang, WANG Qian, <i>et al.</i> (2895)
Comparison of Regional Transportation and Transformation Models of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Research on Key Influencing Factors: Take the Beijing-Tianjin-Hebei Region as Example	ZHANG Xin-lu, LIU Shi-jie, HAN Mei-li, <i>et al.</i> (2906)
Exploring Formation of Ozone in Typical Cities in Beijing-Tianjin-Hebei Region Using Process Analysis	TANG Ying-xiao, YAO Qing, CAI Zi-ying, <i>et al.</i> (2917)
Characteristics and Meteorological Factors of PM _{2.5} -O ₃ Compound Pollution in Tianjin	XIAO Zhi-mei, LI Yuan, KONG Jun, <i>et al.</i> (2928)
Spatio-temporal Characteristics of Air Quality and Influencing Factors in Shandong Province from 2016 to 2020	ZHOU Meng-ge, YANG Yi, SUN Yuan, <i>et al.</i> (2937)
Trend Changes in Ozone Pollution and Sensitivity Analysis of Ozone in Henan Province	YAN Yang-yang, YIN Sha-sha, HE Qin, <i>et al.</i> (2947)
Effects of Tropical Cyclones on Ozone Pollution in the Pearl River Delta in Autumn	ZHAO Wei, LÜ Meng-yao, LU Qing, <i>et al.</i> (2957)
Real-time Composition and Sources of VOCs in Summer in Wuhan	SU Wei-feng, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, <i>et al.</i> (2966)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Summer in Yuncheng City	WEN Xiao-yu, ZHAO Wen-ting, LUO Shu-zhen, <i>et al.</i> (2979)
Neonicotinoid Insecticides Threaten Surface Waters at the National Scale in China	FAN Dan-dan, LIU Hong-ling, YANG Liu-yan (2987)
Spatiotemporal Distribution and Risk Assessment of Pharmaceuticals in Typical Drinking Water Sources in the Middle Reaches of the Yangtze River	 WU Jun-mei, WEI Lin, PENG Jing-qian, <i>et al.</i> (2996)
Pollution Characteristics and Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Underground and Surface Drinking Water Sources in Northeast Inner Mongolia	 ZHANG Kun-feng, CHANG Sheng, FU Qing, <i>et al.</i> (3005)
Impact of Land Use Types at Different Scales on Surface Water Environment Quality and Its Driving Mechanism	SONG Jing-wen, ZHANG Xue-xia, JIANG Dong-yang, <i>et al.</i> (3016)
Shallow Groundwater Around Plateau Lakes: Spatiotemporal Distribution of Nitrogen and Its Driving Factors	LI Gui-fang, YANG Heng, YE Yuan-hang, <i>et al.</i> (3027)
Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of Lake Qinghai	ZHANG Ya-ran, CHE Fei-fei, FU Zheng-hui, <i>et al.</i> (3037)
Analysis of Heavy Metal Pollution Characteristics and Potential Ecological Risks of Surface Sediments in Dongjiang Lake	ZHAO Xiao-liang, LI Xiang, LU Hong-bin, <i>et al.</i> (3048)
Kinetic Release Characteristics of Organic Phosphorus of Sediment-water and Water Quality Risks	LIU Zhe-zhe, NI Zhao-kui, LIU Si-ru, <i>et al.</i> (3058)
Distribution Characteristics, Source Analysis, and Pollution Evaluation of Organic Matter in Surface Sediments of Qingpu District, Yangtze River Delta Integration Demonstration Area	 ZHANG Zhi-bo, DUAN Yan-ping, TU Yao-jen, <i>et al.</i> (3066)
Distribution Characteristics of Microplastics and Their Migration Patterns in Xiangxi River Basin	CHEN Sheng-sheng, LI Wei-ming, ZHANG Kun, <i>et al.</i> (3077)
Community Structure and Microbial Function Responses of Biofilms Colonizing on Microplastics with Vertical Distribution in Urban Water	 CHEN Yu-fang, YAN Zhen-hua, ZHANG Yan, <i>et al.</i> (3088)
Community Structure of Phytoplankton and Environmental Impact Factors in Lake Hongze from 2015 to 2020	QU Ning, DENG Jian-ming, ZHANG Zhen, <i>et al.</i> (3097)
Structural Characteristics of Zooplankton and Phytoplankton Communities and Its Relationship with Environmental Factors in Different Regions of Nanhu Lake in Jiaxing City	 WANG Ya-wen, LI Ying-he, ZHANG Bo, <i>et al.</i> (3106)
Temporal and Spatial Variation Characteristics and Source Analysis of Agricultural Non-point Source Pollution Load in Guangdong During the Past 20 Years	 GE Xiao-jun, HUANG Bin, YUAN Zai-jian, <i>et al.</i> (3118)
Output Characteristics and Driving Mechanism of Agricultural Non-point Source (AGNPS) Pollutant in Plain and Valley Region of Upper Yangtze River, China	 TAN Shao-jun, LIU Yang, ZHU Xiao-jie, <i>et al.</i> (3128)
Risk Assessment Method of Non-point Source Pollution Output for Watershed Using High Resolution Data	GU Jing-jing, YE Yun-tao, DONG Jia-ping, <i>et al.</i> (3140)
Spectral Characteristics Change in Dissolved Organic Matter in Urban River Under the Influences of Different Intensities of Non-point Source Pollution	CHEN Xu-dong, GAO Liang-min (3149)
Combination of Ecological Ditch and Bioretention Pond to Control Rural Runoff Pollution	SHI Lei, YANG Xiao-li, WU Qing-yu, <i>et al.</i> (3160)
Influence of Different Hydraulic Disturbance Intensities on the Migration of Aged PSMPs Between Sediment and Water	WU Xiang-xiang, AI Ping, LI Da-peng (3168)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of Rainfall Runoff from Roofs in the Central District of Beijing	XI Yue, GUO Jing, TAO Lei, TIAN Ying, <i>et al.</i> (3177)
Inter-annual Changes in Runoff Quality from Green Roofs with Different Vegetation	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, GE De, <i>et al.</i> (3187)
Effectivity of Multiphase Fenton-like System of Iron Reduction Induced by Bisphenol A Authigenic Photoelectron	CAO Si-yu, XU Lu, FU Quan-chao, <i>et al.</i> (3195)
Removal Characteristics of Four Typical Antibiotics in Denitrification System	TANG Jia, CHEN Xi, QIN Mu-chuan, <i>et al.</i> (3204)
Adsorption Capacity and Mechanism of Biochar Derived from Typical Agricultural Wastes for Cadmium in Aqueous Solutions	GONG Pei-yun, SUN Li-juan, SONG Ke, <i>et al.</i> (3211)
Effect of Humic Acid-Heavy Metals on the Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX Bacteria and Its Kinetic Analysis	LI Yun, CUI Nan, XIONG Xing-xing, <i>et al.</i> (3221)
Responding Mechanism of Vegetation Cover to Climate Change and Human Activities in Southwest China from 2000 to 2020	XU Yong, HUANG Wen-ting, DOU Shi-qing, <i>et al.</i> (3230)
Spatial Distribution and Eco-stoichiometric Characteristics of Soil Nutrient Elements Under Different Vegetation Types in the Yellow River Delta Wetland	 SUN De-bin, LI Yun-zhao, YU Jun-bao, <i>et al.</i> (3241)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of Perfluoroalkyl Substances in Surface Soils of the Northeast Tibetan Plateau	 WEN Xiang-jie, CHEN Zhao-hui, XU Wei-xin, <i>et al.</i> (3253)
Effect of Land Use/Land Cover Change on the Concentration of Se and Heavy Metals in Soils from a "Return Cropland to Forest" Area, Southwest China	 LIU Yong-lin, LIU Shu-ling, WU Mei, <i>et al.</i> (3262)
Speciation Characteristics and Risk Assessment of Soil Heavy Metals from Puding Karst Critical Zone, Guizhou Province	 ZHANG Qian, HAH Gui-lin (3269)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Germanium in Soil in the Eastern Mountainous Area of the Nanyang Basin	DONG Qiu-yao, LAI Shu-ya, SONG Chao, <i>et al.</i> (3278)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Risk Assessment of Golden Snub-nosed Monkey (<i>Rhinopithecus roxellana</i>) Habitat in Shennongjia Mountains	 YAN Jia-li, YU Zi-ling, YU Hui-liang, <i>et al.</i> (3288)
Utilization and Remediation of Heavily Cadmium-Contaminated Agricultural Soils by Two Crop Rotation Patterns After Lime and Sepiolite Passivation	 XU Lu, ZHOU Chun-hai, LIU Mei, <i>et al.</i> (3299)
Effects of Phosphorus Sufficiency and Deficiency on Cadmium Uptake and Transportation by Rice	TAN Wen-tao, HUO Yang, ZHOU Hang, <i>et al.</i> (3308)
Responses of Cd Accumulation in Rice and Spectral Characteristics of Soil Dissolved Organic Matter Regulated by Soil Amendments	LUO Hui-long, CHEN Juan, ZHANG Yun-hui, <i>et al.</i> (3315)
Responses of Soil Fungal Communities to Subalpine Meadow Degradation in Mount Wutai	LUO Zheng-ming, HE Lei, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (3328)
Response of Soil Fungal Communities in Diversified Rotations of Wheat and Different Crops	JIN Hai-yang, YUE Jun-qin, YAN Ya-qian, <i>et al.</i> (3338)
Spatial Characterization of Stable Isotope Composition of Organic Carbon from Farmland Soils in Chongqing	LIAO Yu-qin, LONG Juan, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (3348)
Characteristics of Soil NO Emissions in the Yangtze River Delta Region for Year 2018	LIAO Jia-qiang, XUE Jin, WANG Wen-jin, <i>et al.</i> (3357)
Thermal Environment Evolution and Response Mechanism of Urban Sprawl Based on Multi-source Data	LIANG Jian-she, BAI Yong-ping, YANG Xue-di, <i>et al.</i> (3365)