

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社



2020

Vol.41 No.4
第41卷 第4期

目次

基于深度学习的华东地区 PM _{2.5} 浓度遥感反演	刘林钰, 张永军, 李彦胜, 刘欣怡, 万一 (1513)
秋冬季区域性大气污染过程对长三角北部典型城市的影响	李瑞, 李清, 徐健, 李亮, 葛朝军, 黄凌, 孙登红, 刘子义, 张坤, 周国柱, 王杨君, 胡子梅, 宋燕西, 陈勇航, 李莉 (1520)
基于 GAM 模型的西安市 O ₃ 浓度影响因素解析	黄小刚, 邵天杰, 赵景波, 曹军骥, 吕晓虎 (1535)
北京及周边 6 个城市大气 PM _{2.5} 中左旋葡聚糖及其异构体的时空分布特征	朱红霞, 陶雪梅, 王超, 张霖琳, 郑晓燕 (1544)
典型沿海城市采暖期细颗粒物组分特征及来源解析	李明燕, 杨文, 魏敏, 朱红晓, 刘厚凤 (1550)
成都地区黑碳气溶胶变化特征及其来源解析	王璐, 袁亮, 张小玲, 贾月涛 (1561)
天津夏季郊区 VOCs 对臭氧生成的影响	姚青, 韩素芹, 张裕芬, 毕晓辉, 王晓佳, 蔡子颖 (1573)
涂料制造行业挥发性有机物排放成分谱及影响	吴健, 高松, 陈曦, 杨勇, 伏晴艳, 车祥, 焦正 (1582)
典型超低排放燃煤电厂可凝结颗粒物特征和成因	邓建国, 王刚, 张莹, 李妍菁, 段雷, 蒋靖坤 (1589)
中国地表水硝酸盐分布及其来源分析	张鑫, 张妍, 毕直磊, 山泽萱, 任丽江, 李琦 (1594)
中、韩滨海城市化区域水体全氟化合物的空间特征及生态风险	杨洪法, 史斌, 周云桥, 杨璐, 孟晶, 陈礼强, 王铁宇 (1607)
小清河入海口近十年水质变化及驱动因素分析	范新风, 韩美, 王磊, 李秀萍, 周璟 (1619)
浙江省 H 市水处理及供水系统 4 种人工甜味剂的分布特征	马晓雁, 胡慧, 陆思嘉, 李青松, 薛乐飞, 李雪纯, 邓靖 (1629)
三峡库区支流梅溪河附石藻类群落变化及其与环境因子的关系	米文梅, 施军琼, 杨燕君, 杨宋琪, 何书哈, 吴忠兴 (1636)
骆马湖浮游植物演替规律及驱动因子	张庆吉, 王业宇, 王金东, 王日昕, 邓建明, 蔡永久, 彭凯, 陈业, 龚志军 (1648)
拉鲁湿地水生植物群落多样性与水环境因子的关系	王佳俊, 田瀚鑫, 周磊, 徐德福, 张建伟, 彭措次仁 (1657)
基于网络分析解析水源水库春季水体反硝化群落演变特征及驱动因素	周石磊, 孙悦, 张艺冉, 黄廷林, 张春华, 方凯开, 曾明正, 李再兴, 崔建升 (1666)
岱海水体氮、磷时空分布特征及其差异性分析	赵丽, 陈俊伊, 姜霞, 郑朔方, 王书航 (1676)
巢湖滨岸水塘洼地沉积物反硝化速率及对外源碳氮的响应	李如忠, 王莉, 刘超 (1684)
镁改性芦苇生物炭控磷效果及其对水体修复	丁玉琴, 李大鹏, 张帅, 陈丽媛, 徐楚天, 陈姝彤, 朱企, 黄勇 (1692)
氢氧化镁对水体内源磷释放的控制作用	杨春懿, 詹艳慧, 林建伟, 邱波, 徐文隆, 俞阳, 黄良君 (1700)
北京市道路雨水径流溶解性有机物化学组分特性	陈梦瑶, 杜晓丽, 于振亚, 朱英杰, 梁卉, 吴凡 (1709)
新型三维多孔光热材料制备及其高盐废水处理应用	黄乐, 徐颖峰, 谢茜青, 赵炯, 冯华军 (1716)
Ni 掺杂 Sb-SnO ₂ 瓷环粒子电极电催化氧化磺胺嘧啶	石秋俊, 刘安迪, 唐柏彬, 魏世强, 张进忠 (1725)
磁性 Fe ₃ O ₄ -CuO 非均相活化过碳酸钠降解 AO7	徐劫, 王琳, 陈家斌, 许芬, 王柯晴, 侯梓峰, 黄天寅 (1734)
赤泥活化过一硫酸盐降解环丙沙星: 性能和机制	史京转, 魏红, 周孝德, 李克斌, 史颖娟 (1743)
工业废水水质对微气泡臭氧氧化深度处理影响	张静, 张守敬, 刘春, 施佳泽, 陈晓轩, 张磊, 张瑞娜 (1752)
污泥水热炭对亚甲基蓝的吸附特性	陈丽媛, 李大鹏, 朱文娟, 徐楚天, 丁玉琴, 黄勇 (1761)
改性西瓜皮生物炭的制备及其对 Pb(II) 的吸附特性	毕景望, 单锐, 韩静, 袁浩然, 史月月, 张兴庆 (1770)
A ² /O 短程硝化耦合厌氧氨氧化系统构建与脱氮特性	刘小钗, 荣懿, 汶丽杰, 李党勇, 金鹏康 (1779)
基于甲烷氧化菌的城镇污水厂尾水极限脱氮系统构建及机制	杨娅男, 李彦澄, 李江, 吴攀, 杨钊, 向福亮 (1787)
HRT 对 CSTR 亚硝化颗粒污泥性能影响	王建芳, 齐泽坤, 钱飞跃, 刘文如, 张俊, 王伟, 沈聪 (1794)
低基质颗粒污泥反应器中亚硝化的实现过程及其污泥变化特征	朱琳, 程诚, 宋家俊, 郭凯成, 汪倩, 刘文如, 沈耀良 (1801)
不同 HRT 下污水中有机物在 ABR 中的转化过程及污泥形态特征	程诚, 朱琳, 郭凯成, 汪倩, 宋家俊, 刘文如, 沈耀良 (1808)
投加颗粒活性炭和二氧化锰对剩余污泥厌氧消化的影响	杨波, 贾丽娟, 徐辉, 李方, 刘艳彪 (1816)
中国 193 个城市规划区土壤微量元素污染与健康风险	李括, 彭敏, 杨峥, 杨柯, 刘飞, 赵传冬, 成晓梦, 马宏宏, 郭飞, 唐世琪, 刘应汉, 成杭新 (1825)
基于随机森林评价的兰州市主城区校园地表灰尘重金属污染	胡梦瑶, 王佳, 张亚云, 李春艳, 李娜娜 (1838)
扬州市不同功能区表层土壤中多环芳烃的含量、来源及其生态风险	姚成, 倪进治, 刘瑞, 杨柳明, 陈卫锋, 魏然 (1847)
桂西南土壤镉地质异常区水稻种植安全性评估	陈同斌, 庞瑞, 王佛鹏, 周浪, 宋波 (1855)
重庆市主要农耕地土壤 Cd 生物有效性及影响因素	王锐, 胡小兰, 张永文, 余飞, 朱海山, 李瑜 (1864)
棉秆炭对碱性水稻土壤-水稻中镉迁移转化的阻控作用	刘师豆, 朱新萍, 韩耀光, 赵一, 金航, 贾宏涛 (1871)
连续 4 a 施有机肥降低紫泥田镉活性与稻米镉含量	薛毅, 尹泽润, 盛浩, 马颖榴, 周清, 宋达清, 张杨珠 (1880)
纳米氢氧化镁对不同类型土壤镉形态的影响	邓继宝, 张春来, 徐卫红 (1888)
矿业废弃地复垦土壤-作物硒吸收特征及其对重金属拮抗效应	尹炳, 汪建飞, 师胜, 卜中原, 霍天满, 张世文 (1904)
不同生物炭对酸性农田土壤性质和作物产量的动态影响	杨彩迪, 宗玉统, 卢升高 (1914)
化肥减量有机替代对紫色土旱坡地土壤氮磷养分及作物产量的影响	朱浩宇, 高明, 龙翼, 徐国鑫, 王富华, 王子芳 (1921)
紫色土旱坡地氮流失通量对减肥施肥秸秆的响应	熊子怡, 王子芳, 龙翼, 严冬春, 徐国鑫, 高明 (1930)
浒苔生物炭对滨海盐碱土壤改良的效果及途径	吴丹, 孙萍, 路鹏展, 陈友媛, 郭嘉梦, 刘明, 王磊, 张彩杰 (1941)
极端干旱区咸水灌溉人工防护林土壤可溶性碳的垂直分布及其影响因素	孟天歌, 吴路遥, 张少磊, 徐燕莹, 李雄, 张建国 (1950)
红松人工林土壤酶活性与化学性质对氮添加的响应	吕来新, 宋蕾, 刘志理, 张金波, 金光泽 (1960)
稻田土壤 N ₂ O 消纳能力及 nosZ-I 型功能种群应答机制	郭俊丽, 田美洁, 葛体达, 魏文学, 王光军, 孙志龙, 刘毅 (1968)
京津冀电子废弃物回收利用潜力预测及环境效益评估	陈盼, 施晓清 (1976)
中国城市工业化发展与 PM _{2.5} 的关系: 兼论 EKC 曲线形成的内在机制	李雅男, 丁振民, 邓元杰, 侯孟阳, 姚顺波 (1987)
《环境科学》征订启事 (1618) 《环境科学》征稿简则 (1635) 信息 (1724, 1769, 1800)	

典型沿海城市采暖期细颗粒物组分特征及来源解析

李明燕¹, 杨文², 魏敏¹, 朱红晓¹, 刘厚凤^{1*}

(1. 山东师范大学地理与环境学院, 济南 250014; 2. 威海市环境保护监测站, 威海 264200)

摘要: 为明确威海市采暖期细颗粒物的组分及来源, 于2018年1~3月在威海市3个空气质量例行监测点采集了环境空气PM_{2.5}样品, 分析OC、EC、水溶性离子及元素组分特征, 利用PMF模型解析PM_{2.5}的来源。结果表明, 采样期间威海市PM_{2.5}日均质量浓度为(33.80 ± 22.45) μg·m⁻³, NO₃⁻、NH₄⁺、SO₄²⁻、OC和EC是其主要组分。作为沿海城市其Cl⁻占比相对较高, 同时PM_{2.5}组分特征体现出颗粒物成分受本地工业特征污染物排放的影响。NO₃⁻/SO₄²⁻和OC/EC比值均表明威海市采暖期移动源对PM_{2.5}贡献大; 水溶性离子中酸碱离子比例分析表明, 威海市采暖期PM_{2.5}呈弱碱性, NH₄⁺过量, 主要以NH₄NO₃和(NH₄)₂SO₄等形式存在。污染时段威海市二次污染物浓度上升明显, 主要组分NH₄⁺、NO₃⁻、SO₄²⁻、OC和EC质量浓度是清洁时段的4.21、5.27、3.23、2.02和1.81倍。源解析结果表明, 二次气溶胶占PM_{2.5}的32.4%~36.0%, 移动源(15.6%~18.9%)、燃煤源(12.1%~17.8%)、生物质燃烧源(9.0%~10.4%)和扬尘(8.6%~11.3%)是威海市环境空气PM_{2.5}的主要来源, 而工艺过程源(2.1%~8.3%)、非道路移动源(2.4%~3.7%)和海盐(3.5%~5.6%)贡献比例较小。

关键词: PM_{2.5}; 组分特征; 源解析; 正定矩阵因子分析法(PMF); 威海市

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)04-1550-11 DOI: 10.13227/j.hjkk.201907043

Characteristics and Sources Apportionment of Fine Particulate Matter in a Typical Coastal City During the Heating Period

LI Ming-yan¹, YANG Wen², WEI Min¹, ZHU Hong-xiao¹, LIU Hou-feng^{1*}

(1. College of Geography and Environment, Shandong Normal University, Ji'nan 250014, China; 2. Weihai Environmental Monitoring Station, Weihai 264200, China)

Abstract: To clarify the pollution characteristics and sources of PM_{2.5} in Weihai during the heating period, PM_{2.5} samples from ambient air were collected at three routine air quality monitoring sites from January to March 2018. The OC, EC, water-soluble ions, and elements in PM_{2.5} were analyzed, and the sources of PM_{2.5} were identified using the PMF model. The results showed that the average daily mass concentration of PM_{2.5} was (33.80 ± 22.45) μg·m⁻³, and the NO₃⁻, NH₄⁺, SO₄²⁻, OC, and EC were the main components of PM_{2.5}. As a coastal city, the Cl⁻ ratio was relatively high in PM_{2.5}. Meanwhile, the compositions of PM_{2.5} were affected by the emission of pollutants with local industrial characteristics. Both NO₃⁻/SO₄²⁻ and OC/EC showed that mobile sources had a high contribution during the heating period. The acid-base ions in water-soluble ions showed that PM_{2.5} is weakly alkaline, and NH₄⁺ is excessive. NH₄⁺ mainly existed in the form of NH₄NO₃ and (NH₄)₂SO₄. During the polluted period, the concentration of secondary pollutants significantly increased, and the mass concentrations of NH₄⁺, NO₃⁻, SO₄²⁻, OC, and EC were 4.21, 5.27, 3.23, 2.02, and 1.81 times that of the cleaning period, respectively. The PMF model showed that secondary aerosols were the major source of PM_{2.5}, accounting for 32.4%-36.0% of PM_{2.5}. The contributions of vehicle exhaust, coal combustion, biomass burning, and dust were 15.6%-18.9%, 12.1%-17.8%, 9.0%-10.4%, and 8.6%-11.3%, respectively, while the contributions of process emission (2.1%-8.3%), non-road mobile sources (2.4%-3.7%), and sea salt (3.5%-5.6%) were less.

Key words: PM_{2.5}; composition characteristic; source apportionment; positive matrix factorization(PMF); Weihai

细颗粒物(PM_{2.5})是引发我国冬季大气污染的主要污染物^[1,2]。有研究表明, PM_{2.5}对人体健康和区域气候等均有不利影响^[3~5]。因此, 目前对PM_{2.5}组分特征及来源分析仍为国内大气领域的研究热点。

PM_{2.5}组分因不同地区大气污染源排放结构和污染控制力度有明显变化, 近年来PM_{2.5}组分特征研究表明, 气态污染物(SO₂、NO₂和NH₃)等前体物转化生成二次颗粒物在PM_{2.5}中占比呈增加趋势, 是PM_{2.5}超标的主要内因^[6]。张敬巧等^[7]对2016年聊城市冬季一次重污染过程研究发现, 重污染时段二

次无机离子比例均达到起始阶段的6倍以上。刘盈盈等^[8]发现SO₄²⁻和NH₄⁺对济南市PM_{2.5}浓度增加贡献更大, 二次无机离子和二次有机碳是济南冬季重污染的主因。大多数PM_{2.5}源解析研究显示, 我国京津冀、珠三角、长三角等城市细颗粒物的主要人为源是移动源、燃煤源、扬尘及生物质燃烧源等^[9~13], 不同城市上述污染源的贡献比例不同。与内陆城市

收稿日期: 2019-07-04; 修订日期: 2019-11-22

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金项目(41605113); 中国博士后科学基金项目(2018M632713)

作者简介: 李明燕(1995~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气颗粒物来源解析, E-mail: limingyan0321@126.com

* 通信作者, E-mail: 110027@sdnu.edu.cn

不同,沿海城市青岛^[14]、烟台^[15]等 $\text{PM}_{2.5}$ 组分还受海盐离子 (Na^+ 、 Cl^- 和 SO_4^{2-} 等) 的影响. 目前颗粒物组分特征和来源解析研究多集中在污染相对严重的城市或区域,位于山东省最东部的唯一空气质量达标城市威海细颗粒物组成和来源的研究尚未见报道.

威海市三面环海,西邻烟台、青岛,西北、北侧与京津冀、东北辽宁以渤海湾和海峡相隔,东与韩国、日本隔海相望. 其大气颗粒物污染除受本地排放影响,还易受西、西北、北及东部海外输送的影响. 在采暖期区域性持续性重污染过程中,威海市也出现 $\text{PM}_{2.5}$ 超标现象^[2, 16, 17]. 因此对威海市细颗粒物开展监测分析及来源解析研究,可阐明该地颗粒物的组成和来源,以期为进一步研究威海地区乃至跨国间污染物区域传输和污染控制奠定基础.

1 材料与方法

1.1 样品采集

按照从沿海到内陆的顺序依次选择 3 个监测站点(图 1),SD ($122^\circ 03' 40.64''\text{E}$, $37^\circ 31' 58.88''\text{N}$)、LG ($122^\circ 08' 34.26''\text{E}$, $37^\circ 20' 40.84''\text{N}$)、WD ($122^\circ 04' 5.48''\text{E}$, $37^\circ 11' 52.62''\text{N}$),采样点均设在楼顶空气质量例行监测点采样平台,距地面 15 m 左右,周围无大的遮挡物. SD 点临海,位于市区,经济发达,离交通干线较近;LG 点为典型的工业园区,园区内分布多家化工企业;WD 点位于郊区,周边主要是居民区.

采样时间为 2018 年的 1 月 20 日~2 月 8 日和 2 月 24 日~3 月 24 日,共 50 d(包括两天空白样),采用间断采样方式,每天采样两次(08:00~19:30; 20:00~次日 07:30),共采集 300 个样品. 利用切割粒径 (Da_{50}) 为 $(2.5 \pm 0.2) \mu\text{m}$ 和捕集效率的几何标准差 (σ_g) 为 $(1.2 \pm 0.1) \mu\text{m}$ 的 $\text{PM}_{2.5}$ 切割器,使用 47 mm 的石英滤膜和特氟龙滤膜采集样品. 石英滤膜使用前置于马弗炉中 450°C 灼烧 6 h 以去除碳质

污染物质. 空白样品在装载滤膜不开机运行的情况下获取. 样品在 -18°C 保存至实验分析.

1.2 样品分析

对采集到的膜样品,测定 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度、OC/EC、可溶性离子组分及元素浓度.

使用精度 10^{-6}g 梅特勒 XP-6 天平对滤膜进行称量,称重前滤膜置于恒温恒湿箱中恒重 24 h. OC 和 EC 含量使用美国沙漠所生产的 DRI2001A 热-光碳分析仪 (Thermal Optical Carbon Analyzer) 分析,最低检测限定义为空白滤膜标准偏差的 3 倍表示,OC: $0.54 \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$, EC: $0.06 \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$. 金属元素分析采用微波消解萃取法 (ETHOS ONE, 麦尔斯通),经 ICP-MS 或 ICP-OES (赛默飞世尔) 测定元素浓度. 检测环境颗粒物中 18 种组分,Al、Fe、Ti、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、Sr、Cd、Sn、Sb、Pb、V、Cr、As 和 Si. 采用离子色谱法测定水溶性离子,经离子水超声提取,阴离子或阳离子色谱柱交换分离后,由电导检测器检测,根据保留时间定性,峰高及峰面积定量确定离子浓度. 采用的离子色谱仪是 ICS-2100,变色龙 6.8,AS-DV 自动进样器 (赛默飞世尔),检测环境颗粒物中的 9 种离子组分, Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 F^- 、 Cl^- 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} .

1.3 源解析受体模型

正定矩阵因子分析法 (positive matrix factorization, PMF) 作为受体模型法的一种,在大气颗粒物源解析领域得到了广泛使用^[18]. 本研究采用美国 EPA PMF v5.0 模型. 其基本公式为 $X = GF + E$,即输入矩阵 X 被分解为源谱分布矩阵 F 和污染源贡献矩阵 G 加上残差分布矩阵 E ,其中 X 为 $n \times m$ 的矩阵, $n \times m$ 代表 n 个样品的 m 种化学成分; G 和 F 分别为 $n \times p$ 和 $p \times m$ 的矩阵, p 为主要污染源的数目. 结合样本残差 e_{ij} 和不确定度 u_{ij} 定义目标函数 Q ,根据 Paatero 和 Tapper 的算法寻找 Q 最小的最优解来获取污染源成分谱及源贡献信息. 具体计算公式如式(1)和(2)所示.

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

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

式中, X_{ij} 为样品 i 中 j 物种的质量浓度, $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; g_{ik} 为第 k 个排放源对样品 i 的贡献; f_{kj} 为来源 k 中 j 物种的含量; e_{ij} 代表样品 i 中 j 物种实测值与解析值之间的残差; u_{ij} 为第 i 个样品第 j 个物种的不确定度.

1.4 质量控制和质量保证

样品采集和分析过程,质量控制和质量保证严

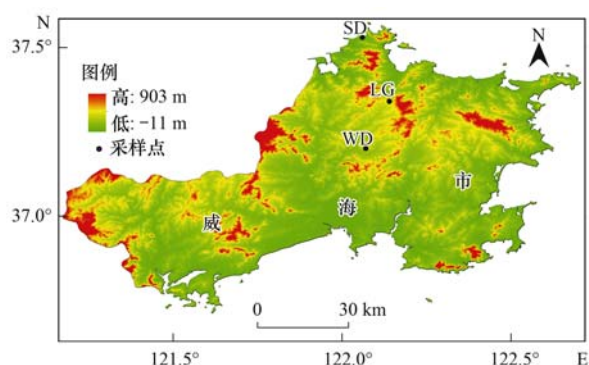


图 1 研究区位置及采样点位置示意

Fig. 1 Location of sampling sites

格按照实验相关技术规范进行. 样品采集和分析过程中均设置空白, 实行质量控制措施, 同时每种分析仪均使用标准物质校准, 各水溶性离子和元素标准曲线的相关系数不小于 0.995, 加标回收率在 80%~120% 之间, 碳组分在每日分析的开始和结束进行人工校正, 三校正峰峰面积偏差 3.0% 以内, 每个样品分析完后, 5% CH_4/He 内标定量标定, 达到质量控制范围. 采样期间手工采样与威海市空气监测站例行监测平台在线监测结果相关性显著 ($P < 0.05$), 3 台仪器采样前进行校正, 分析结果之间具有可比性.

2 结果与讨论

2.1 $\text{PM}_{2.5}$ 主要化学组分特征

2.1.1 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度及其组分变化特征

采样期间, 3 个采样点 SD、WD 和 LG 点的 $\text{PM}_{2.5}$ 主要组分浓度分析结果见图 2. $\text{PM}_{2.5}$ 浓度范围为 8.18 ~ 129.95 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均浓度为 (33.80 ± 22.45) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 与中国生态环境部公布的同期深圳 (34 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 和大连 (41 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 浓度较相似, 明显低于省内城市青岛 (53 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 和济南 (71 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 等. 本研究 3 个采样点 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度差异不大, 表现为 SD (36.30 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) > WD (36.14 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) > LG (34.81 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$).

作为沿海城市威海市 $\text{PM}_{2.5}$ 组分中 Cl^- 比例相对较高, 同时 $\text{PM}_{2.5}$ 组分也体现出颗粒物成分受本地工业结构影响. 与其他北方城市主要组分一致的是 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 、OC 和 EC, 占比 64.75%, 其次是 Cl^- 、 Ca^{2+} 、Fe 和 Si, 占比 6.50%. 与相邻沿海城市烟台相比^[15], 威海市 Cl^- 、 Ca^{2+} 和 Fe 比例相对较高, Cl^- 主要来源于海盐、燃煤和生物质燃烧等, 与威海市三面临海, 受海盐影响更有关, 也受到附近燃煤电厂的影响; Ca^{2+} 主要受扬尘影响, 采样点附近建筑施工且车流量大; Fe 来源复杂, 主要来自地壳和工业过程等, 也与燃煤过程有关^[2]. 威海 $\text{PM}_{2.5}$ 组分中水溶性离子占比最大 (WD: 58.54% > LG: 53.80% > SD: 52.09%), 碳组分次之 (WD: 16.16% > LG: 13.54% > SD: 11.49%), 元素占比最小 (SD: 3.01% > WD: 2.30% > LG: 2.87%). WD 点水溶性离子和碳组分占比相对较高, WD 点附近冶金等工业行业较多, 同时生物质燃烧排放大量污染物, 二次转化作用较强^[19].

水溶性离子以二次无机离子 (SNA) NO_3^- 、 NH_4^+ 和 SO_4^{2-} 为主, 质量浓度分别为 (7.50 ± 8.15)、(5.35 ± 4.96) 和 (4.39 ± 3.14) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占水溶性

离子的 90.01%, 一次离子 Cl^- 、 Ca^{2+} 、 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 和 F^- 占比不足 10%, 其浓度 $\text{Cl}^- > \text{Ca}^{2+} > \text{Na}^+ > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{F}^-$. SNA 占比高于冬季重污染地区成都^[20] (85.6%, 2017 年)、北京南郊区^[13] (75.7%, 2016 年) 和兰州^[21] (82.14%, 2013 年), 主要与气体污染物二次转化程度高有关^[22]. 碳组分中有机碳 OC 含量高于元素碳 EC, 平均质量浓度分别为 (3.30 ± 2.11) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 (1.33 ± 0.67) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中占比分别为 9.77% 和 3.95%. 金属组分中, Fe 和 Si 的平均质量浓度分别为 (0.47 ± 0.23) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 (0.45 ± 0.30) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中占比为 1.38% 和 1.34%, Al、Zn 和 Cu 等组分在 $\text{PM}_{2.5}$ 中占比均低于 1.00%. 在 WD 站点测出 Ni 和 Pb 成分占比 (0.14% 和 0.12%) 相对 SD (0.04% 和 0.07%) 和 LG (0.03% 和 0.08%) 点明显偏高, 可能与本地金属加工企业工艺排放有关.

观测期间细颗粒物二次化学组分的浓度变化趋势与 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度特征基本一致, 本文将在 2.1.3 节中分析威海市污染阶段和清洁阶段 $\text{PM}_{2.5}$ 各化学组分的浓度和比例特征.

2.1.2 $\text{PM}_{2.5}$ 化学组分比值特征

$\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比值分析表明, 威海市采暖季移动源贡献突出. 通常, 汽油车和柴油车等燃烧排放的氮氧化物和硫氧化物比例为 13:1, 煤炭燃烧比例为 1:2^[23], 大气颗粒物中 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 的比值来分析该地区受移动源 (如机动车尾气) 和固定源 (如燃煤源) 的影响程度, 比值大于 1, 移动源贡献突出, 反之, 固定源贡献大^[18, 20]. 威海 SD、WD 和 LG 点 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比值分别为 1.65、1.78 和 1.69, 均大于 1, 移动源贡献高于省内城市烟台冬季^[15] (1.35, 2016 ~ 2017 年) 和济南冬季^[24] (1.16, 2013 ~ 2014 年) 及重污染城市北京全年^[10] (1.25, 2014 ~ 2015 年).

OC/EC 比值分析表明威海市碳质组分主要来源为机动车尾气, LG 点也受到燃煤排放影响; OC 主要为二次有机碳, 一次排放源贡献较小^[25]. OC/EC 比值可大致判断碳质组分来源, OC/EC 在 1.0 ~ 4.2 范围内主要源于机动车尾气, 2.5 ~ 10.5 范围内主要源于燃煤排放, 16.8 ~ 40.0 范围内主要源于生物质燃烧^[26], 32.9 ~ 81.6 范围内主要源于餐饮烹饪^[22], 同时 OC/EC > 2 还表示二次有机碳 (SOC) 存在^[27, 28], SD、WD 和 LG 点比值分别为 2.34、2.48 和 2.59. 为进一步明确二次有机碳的污染特征, 采用公式 (3) 进行估算:

$$\text{SOC} = \text{OC} - \text{EC} \times (\text{OC}/\text{EC})_{\min} \quad (3)$$

式中, $(\text{OC}/\text{EC})_{\min}$ 为采样点采样期间 OC/EC 最小值.

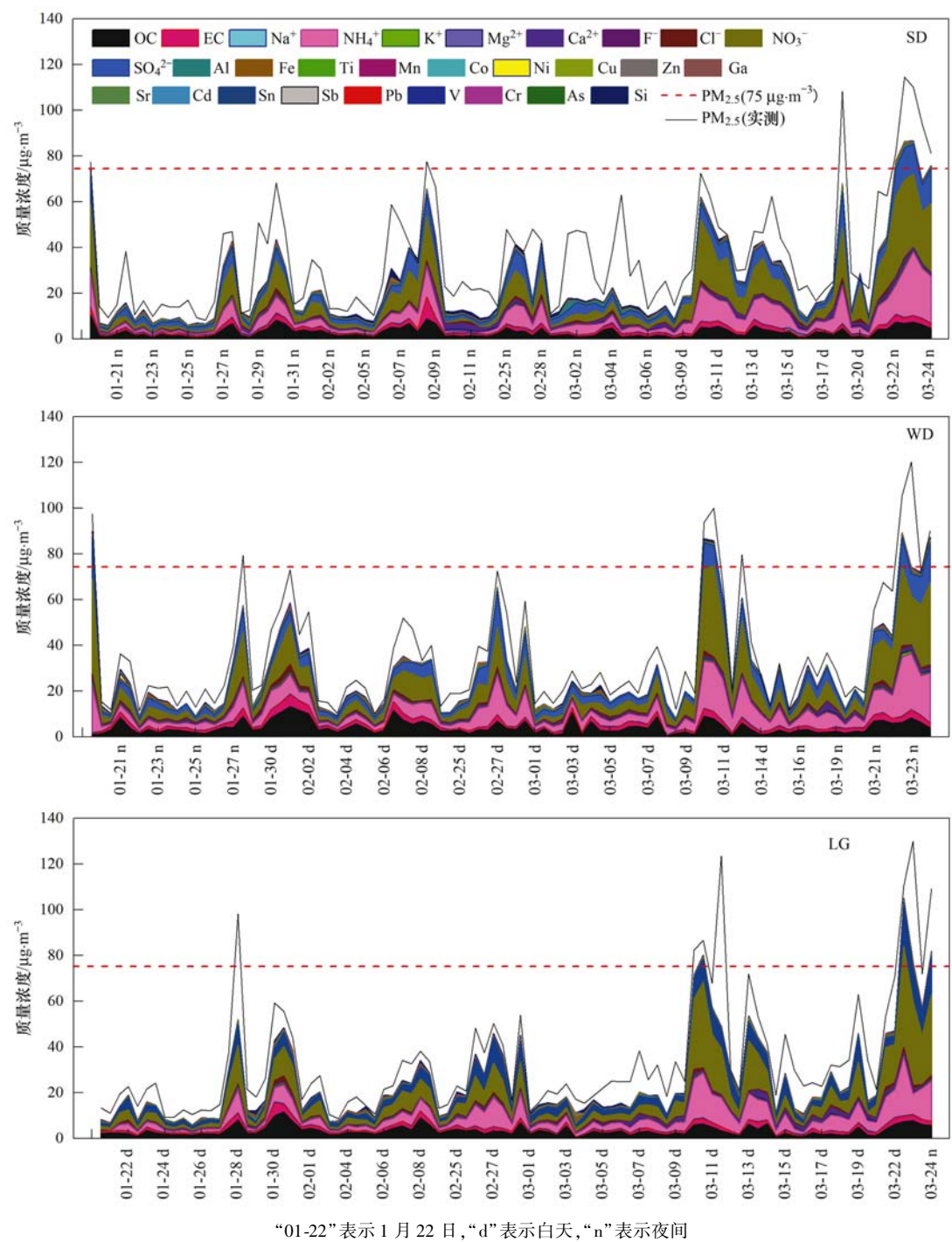


图 2 采样期间 SD、WD 和 LG 这 3 个站点 $PM_{2.5}$ 及组分变化时间序列

Fig. 2 Time-series diagram of $PM_{2.5}$ and SD, WD, and LG components during the sampling period

SD、WD 和 LG 点 SOC 值依次为 2.10、2.91 和 2.20 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, SOC/OC 比值依次为 71.77%、69.94% 和 64.66%, 相较于成都冬季^[20] (白天 8.5 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 28.1%, 夜间 11.9 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 31.8%, 2017 年) 和西安冬季^[26] [(12.77 ± 10.91) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 49%, 2017 年], 威海市二次有机碳浓度低, 相对占比高。

水溶性离子中酸碱离子的比例会影响 $PM_{2.5}$ 的酸碱性^[20], 阴离子会增加 $PM_{2.5}$ 的酸性, 阳离子会增

加 $PM_{2.5}$ 的碱性, 可用阴阳离子电荷平衡判断 $PM_{2.5}$ 的酸碱性^[23, 29], 阴阳离子平衡公式见公式 (4) 和 (5):

$$AE = \frac{[SO_4^{2-}]}{48} + \frac{[NO_3^-]}{62} + \frac{[Cl^-]}{35.5} + \frac{[F^-]}{19} \quad (4)$$
$$CE = \frac{[Na^+]}{23} + \frac{[NH_4^+]}{18} + \frac{[K^+]}{39} + \frac{[Mg^{2+}]}{12} + \frac{[Ca^{2+}]}{20} \quad (5)$$

式中, AE 和 CE 分别表示阴阳离子电荷浓度,

$\text{nmol} \cdot \text{m}^{-3}$; $[X]$ 表示某水溶性离子的质量浓度, $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$.

SD、WD 和 LG 点 AE/CE 的值分别为 0.64、0.64 和 0.68, 均小于 1, 阴离子被完全中和, 阳离子相对剩余, 说明威海市采暖期 $\text{PM}_{2.5}$ 呈弱碱性, 主要源于碱性离子 NH_4^+ 过量, 控制大气中 NH_3 的排放有利于缓解威海气溶胶污染现状^[20]. 需进一步分析威海市大气中 NH_4^+ 的存在形式, NH_4^+ 主要以 NH_4NO_3 、 NH_4HSO_4 、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 和 NH_4Cl 形式存在, NH_4Cl 易挥发且 Cl^- 相对于 SNA 含量少, 因此忽略 NH_4Cl 形式, 假设威海市 NH_4^+ 主要以 NH_4NO_3 、 NH_4HSO_4 和 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 形式存在^[23, 30]. 当 NH_4^+ 以 NH_4NO_3 和 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 或以 NH_4NO_3 和 NH_4HSO_4 的形式存在时, 可分别用公式 (6) 和 (7) 计算其浓度:

$$[\text{NH}_4^+] = \frac{18}{62} \times [\text{NO}_3^-] + \frac{36}{96} \times [\text{SO}_4^{2-}] \quad (6)$$

$$[\text{NH}_4^+] = \frac{18}{62} \times [\text{NO}_3^-] + \frac{18}{97} \times [\text{SO}_4^{2-}] \quad (7)$$

式中, $[X]$ 表示某二次离子的质量浓度, $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$.

NH_4^+ 实测值和计算值的相关性分析如图 3 所示, 3 个采样点由式 (6) 得到的计算值与实测值相关性更强, 线性回归方程的斜率更接近 1, 说明由式 (6) 得到的值比式 (7) 更接近实测值, 因此, 威海市采暖期 NH_4^+ 主要以 NH_4NO_3 和 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 的形式存在.

2.1.3 污染与清洁时段 $\text{PM}_{2.5}$ 组分特征

威海市污染时段二次污染物浓度上升明显, 二次转化程度高^[31]. 污染时段 ($\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度 $\geq 75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) 和清洁时段 ($\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度 $< 75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) $\text{PM}_{2.5}$ 组分对比见图 4, NH_4^+ 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 在污染时段质量浓度上升显著, 其质量浓度分别为 (18.76 ± 5.22) 、 (30.73 ± 7.73) 和 $(12.63 \pm 3.29) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 是清洁时段的 4.21、5.27 和 3.23 倍, 平均为 4.38 倍. 三者污染时段在 $\text{PM}_{2.5}$ 中的占比分别为 19.00%、31.12% 和 12.79%, 其中 NO_3^- 质量浓度和比例增长最为显著, 说明 SNA 的增加是威海市采暖期大气污染过程 $\text{PM}_{2.5}$ 迅速升高的主要原因^[13]. OC 和 EC 污染时段质量浓度分别为 $(6.49 \pm 2.12) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(2.39 \pm 0.64) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 是清洁时段的 2.02 和 1.81 倍. 污染时段一次污染物 Cl^- 、 Ca^{2+} 、 K^+ 、Al 和 Fe 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中的占比低于清洁时段, 占比分别为 1.34%、0.90%、0.69%、0.56% 和 0.77%.

2.2 基于 PMF 受体模型的 $\text{PM}_{2.5}$ 来源解析

选取 $\text{PM}_{2.5}$ 、OC、EC、 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、

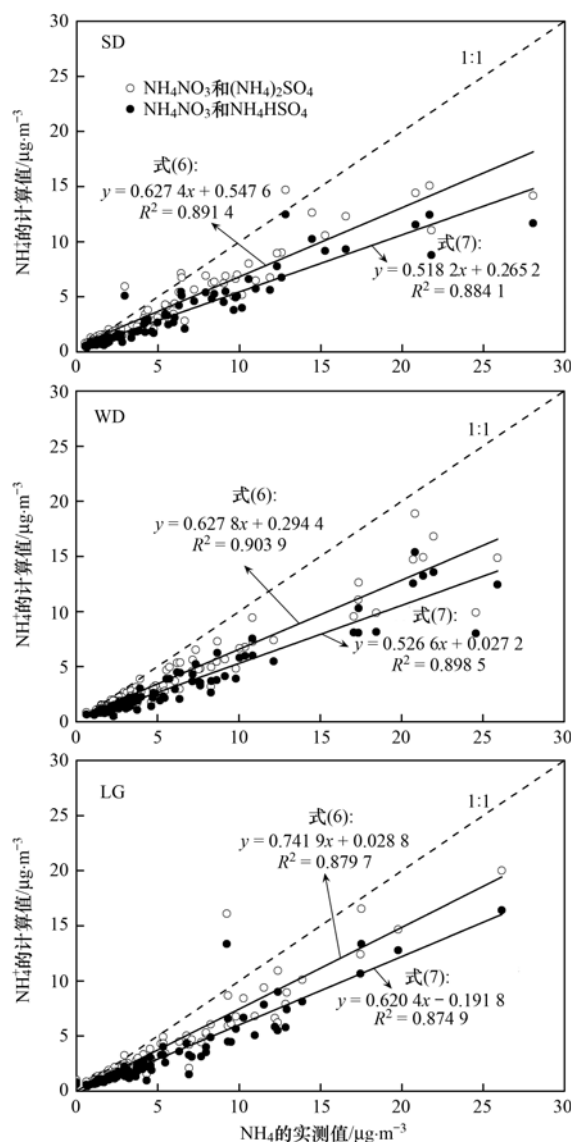


图 3 采样期间 NH_4^+ 浓度的计算值和实测值对比

Fig. 3 Comparison of calculated and measured concentrations of NH_4^+ during the sampling period

Ca^{2+} 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、Al、Fe、Ti、Mn、Ni、Cu、Zn、Ga、Sr、Sn、Sb、Pb、V、Cr、As 和 Si 这 27 种组分, 将各组分浓度和与之对应的不确定度输入 EPA PMF v5.0 模型中运算, 选取 5~10 个因子进行测试, 根据威海市污染源分布与模拟结果, 确定 SD 和 WD 点 Factor = 9, LG 点 Factor = 10, 得到 $\text{PM}_{2.5}$ 源成分谱见图 5 和图 6.

二次无机气溶胶源: SD、WD 和 LG 点的因子 1 主要特征组分为 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ , 是二次无机气溶胶的典型特征廓线^[20], 与燃煤、机动车和生物质燃烧等有关^[32], SD、WD 和 LG 点二次无机盐贡献率分别为 36.0%、34.5% 和 32.4%.

移动源: SD、WD 和 LG 点的因子 2 的主要特征组分为 OC、EC、Pb、As 和 Sb 等, OC 和 EC 可来源于机动车尾气排放^[28], 本研究章节 2.1.2 中 OC/EC

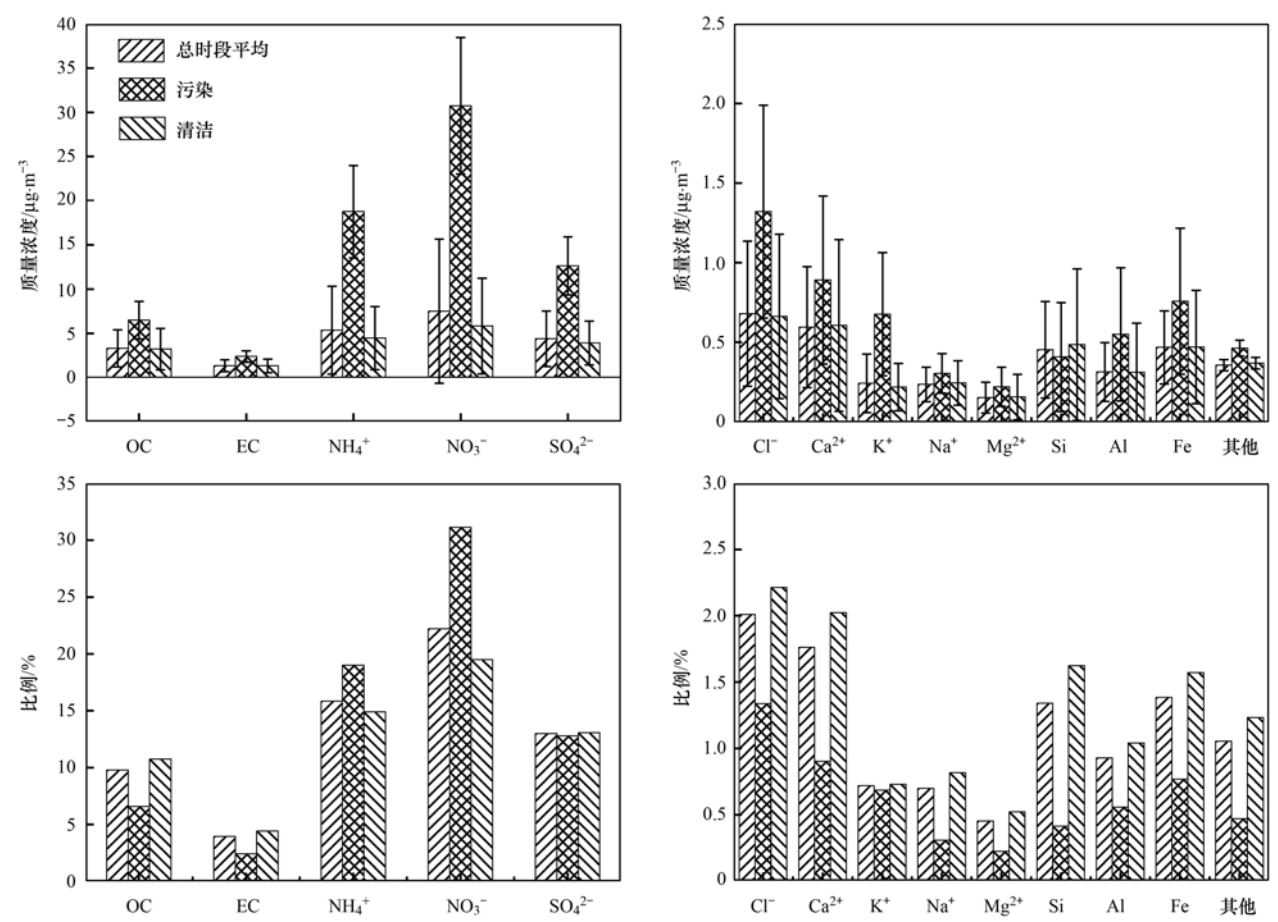


图 4 采样期间污染与清洁时段 $\text{PM}_{2.5}$ 组分

Fig. 4 $\text{PM}_{2.5}$ components between polluted and clean episodes during the sampling period

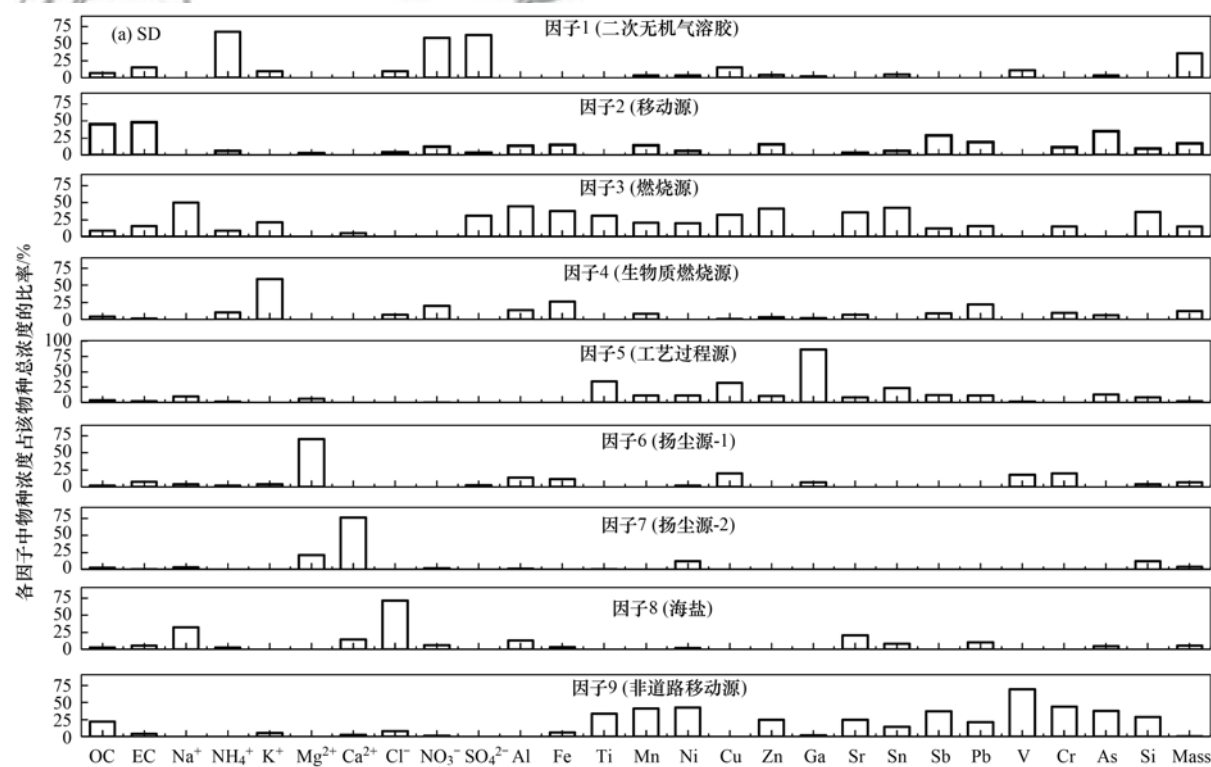
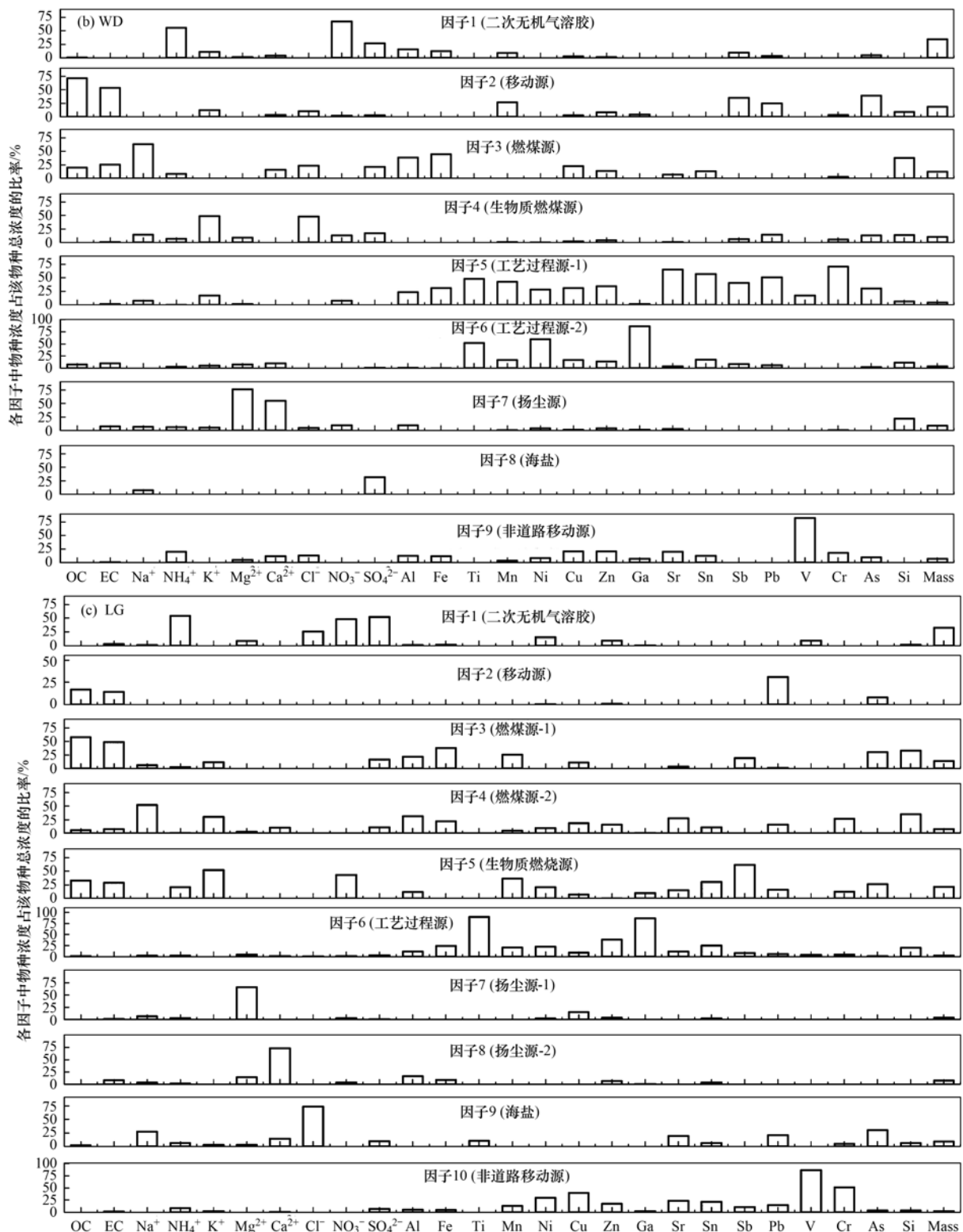


图 5 PMF 解析的源贡献特征

Fig. 5 Profiles of the factors resolved by the PMF model



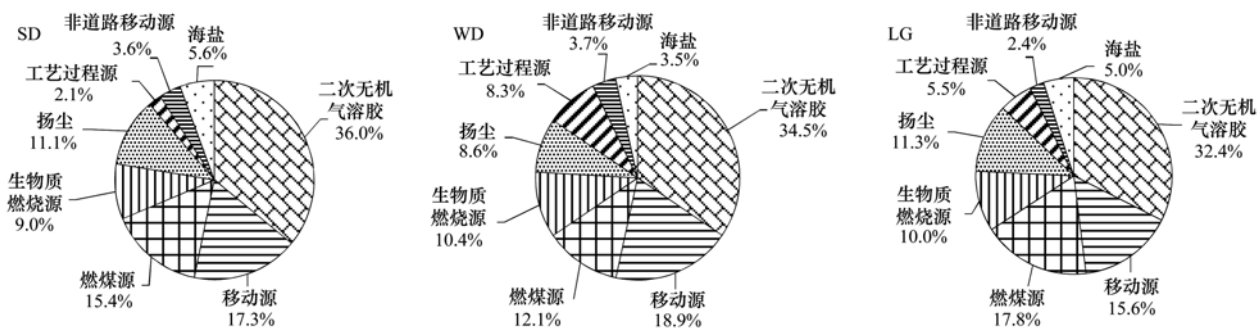
续图 5

比值也表明 PM_{2.5} 受移动源影响明显,目前机动车多使用无铅汽油,但在刹车及与道路摩擦过程中也会释放 Pb^[25]. SD、WD 和 LG 点移动源贡献率分别为 17.3%、18.9% 和 15.6%.

燃煤源:SD 和 WD 点因子 3 以及 LG 点因子 4 主要特征组分为 Na⁺、Al、Fe、K⁺ 和 Si 等, LG 点因子 3 主要特征组分为 OC、EC、Al、Fe、As 和 Si, OC 和

EC,除来源于机动车外,燃煤也是其重要来源^[28], Na⁺、Al、Fe 和 As 也为燃煤源的特征组分^[33, 34], 3 个采样点周边分布有火电厂和工业锅炉,煤炭是主要燃料. SD、WD 和 LG 点的燃煤源贡献率分别为 15.4%、12.1% 和 17.8%.

生物质燃烧源:SD 点因子 4 和 LG 点因子 5 主要特征组分为 K⁺ 和 NO₃⁻,其次为 Sb、Al、Fe 和 Pb

图6 威海市 PM_{2.5} 主要来源贡献率Fig. 6 Contributions of PM_{2.5} sources in Weihai

等,WD 点因子 4 主要特征组分为 K^+ 和 Cl^- . K^+ 是典型的生物质燃烧源的标志物, Cl^- 也可能来源于生物质燃烧^[35]. SD、WD 和 LG 点的生物质燃烧源贡献率分别为 9.0%、10.4% 和 10.0%.

工艺过程源:SD、WD 和 LG 点因子 5 以及 WD 点因子 5 和 6 的主要特征组分为 Ga、Cr、Ti、Ni、Cu、Sn 和 Mn 等金属元素, Ga 多用于合金、电子工业等领域, Cr、Ti、Cu 和 Sn 等常用于电镀行业^[31], Sr 等多来源于金属加工、合金行业. 据实地调查 3 个采样点附近均分布有金属、电子制造厂等金属加工厂. SD、WD 和 LG 点工艺过程源的贡献率分别为 2.1%、8.3% 和 5.5%.

扬尘源:SD 点因子 6 和 7、WD 点因子 7 以及 LG 点因子 7 和 8, 主要特征组分为 Mg^{2+} 和 Ca^{2+} , Mg^{2+} 和 Ca^{2+} 均是扬尘的主要标志物^[20], 经实地考察, 3 个点附近均有居民楼和道路施工, 且附近均临近交通线, 有建筑和道路扬尘产生. SD、WD 和 LG 点扬尘源的贡献率分别为 11.1%、8.6% 和 11.3%.

海盐源:SD 点因子 8 和 LG 点的因子 9 的主要特征组分为 Cl^- 和 Na^+ , WD 点因子 8 的主要特征组分是 SO_4^{2-} 和 Na^+ , Cl^- 、 Na^+ 和 SO_4^{2-} 是海盐源的标志物^[36,37]. SD、WD 和 LG 点海盐源的贡献率分别为 5.6%、3.5% 和 5.0%.

非道路移动源:SD 和 WD 点因子 9 以及 LG 点因子 10, 主要特征组分是 V, 其次为 Ni、Cr、Mn、As、Ti 和 Zn 等, V 主要来自重油燃烧^[38], Ni 与燃油有关^[24], 威海是海滨城市, 港口及海边有船舶, 船舶燃料一般使用重油. SD、WD 和 LG 点非道路移动源的贡献率分别为 3.6%、3.7% 和 2.4%.

2.3 威海市 PM_{2.5} 源解析结果分析

威海市 3 个采样点 PMF 解析结果(图 7), 采暖期二次无机气溶胶占 PM_{2.5} 的 32.4%~36.0%, 移动源(15.6%~18.9%)、燃煤源(12.1%~17.8%)、生物质燃烧源(9.0%~10.4%) 和扬尘(8.6%~

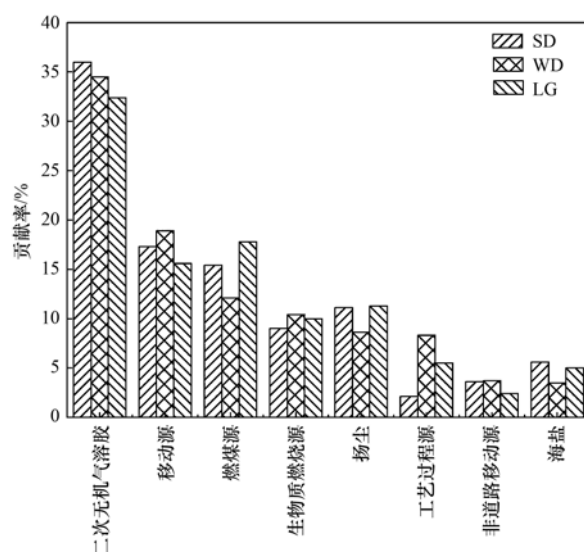


图7 威海市 3 个采样点源解析结果对比

Fig. 7 Comparison of PMF results of the three sampling sites in Weihai

11.3%) 是威海市环境空气 PM_{2.5} 的主要贡献源, 而工艺过程源(2.1%~8.3%)、非道路移动源(2.4%~3.7%) 和海盐(3.5%~5.6%) 贡献比例较小. 各采样点污染源解析贡献比例差异主要与其周边排放源有关. WD 点移动源贡献较高, 附近为典型居民区和商业区, 交通流量较大; 其海盐贡献相对较低, 与 3 个站点中其距海距离相对较远有关. SD 和 LG 点扬尘源贡献较高, 主要与站点周边建筑施工和道路扬尘有关; SD 点临海且位于市区, 生物质燃烧源贡献较小, 海盐贡献相对较大. WD 和 LG 工艺过程源占比较高, WD 点附近分布多家电子加工以及金属加工业厂, LG 点位于工业园区附近, 受工业排放影响较大. 可见, 3 个采样点源解析结果与周边污染源的排放影响密切相关. 威海市 PM_{2.5} 排放源分布见图 8.

3 结论

(1) 采样期间(2018 年 1~3 月, 采暖期)威海市 PM_{2.5} 日均质量浓度为 $(33.80 \pm 22.45) \mu g \cdot m^{-3}$, 明

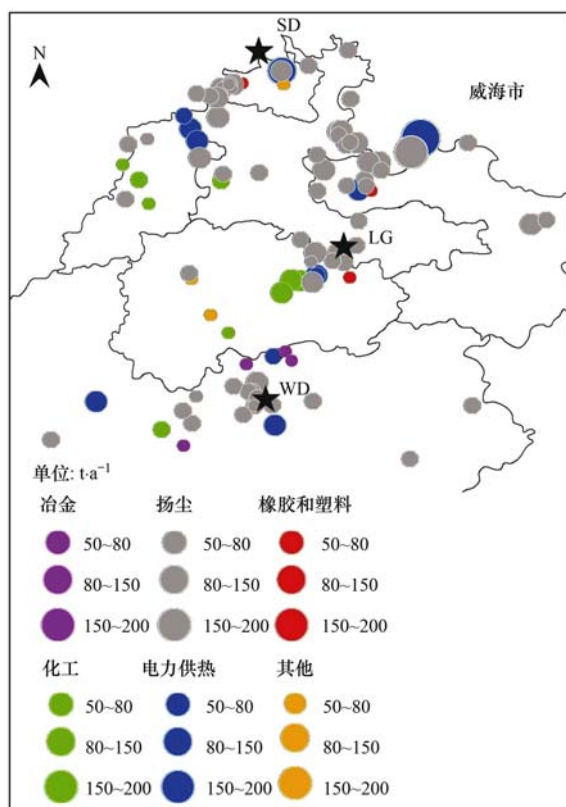


图 8 3 个采样点附近 PM_{2.5} 排放源分布

Fig. 8 PM_{2.5} emission sources near the three sampling sites

显低于青岛和济南等其他省内城市. 与其他北方城市类似, NO_3^- 、 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 、OC 和 EC 是 PM_{2.5} 的主要组分, 占比为 64.75%. Cl^- 比例相对较高, 同时 Ni 和 Pb 等组分占比特征体现出受本地工业特征污染物排放的影响.

(2) $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 和 OC/EC 比值均表明威海市采暖期移动源对 PM_{2.5} 贡献大; SOC 和 SOC/OC 比值表明 OC 主要为二次有机碳; 水溶性离子中酸碱离子比例分析表明, 威海市采暖期 PM_{2.5} 呈弱碱性, NH_4^+ 主要以 NH_4NO_3 和 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 形式存在.

(3) 威海市采暖期污染时段二次污染物浓度上升明显, NH_4^+ 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 质量浓度是清洁时段的 4.21、5.27 和 3.23 倍, OC 和 EC 浓度是清洁时段的 2.02 倍和 1.81 倍, 说明二次污染是威海市采暖期污染的主要原因.

(4) PMF 源解析结果表明, 二次气溶胶占 PM_{2.5} 的 32.4%~36.0%, 移动源 (15.6%~18.9%)、燃煤源 (12.1%~17.8%)、生物质燃烧源 (9.0%~10.4%) 和扬尘 (8.6%~11.3%) 是威海市环境空气 PM_{2.5} 的主要来源, 而工艺过程源 (2.1%~8.3%)、非道路移动源 (2.4%~3.7%) 和海盐 (3.5%~5.6%) 贡献比例较小.

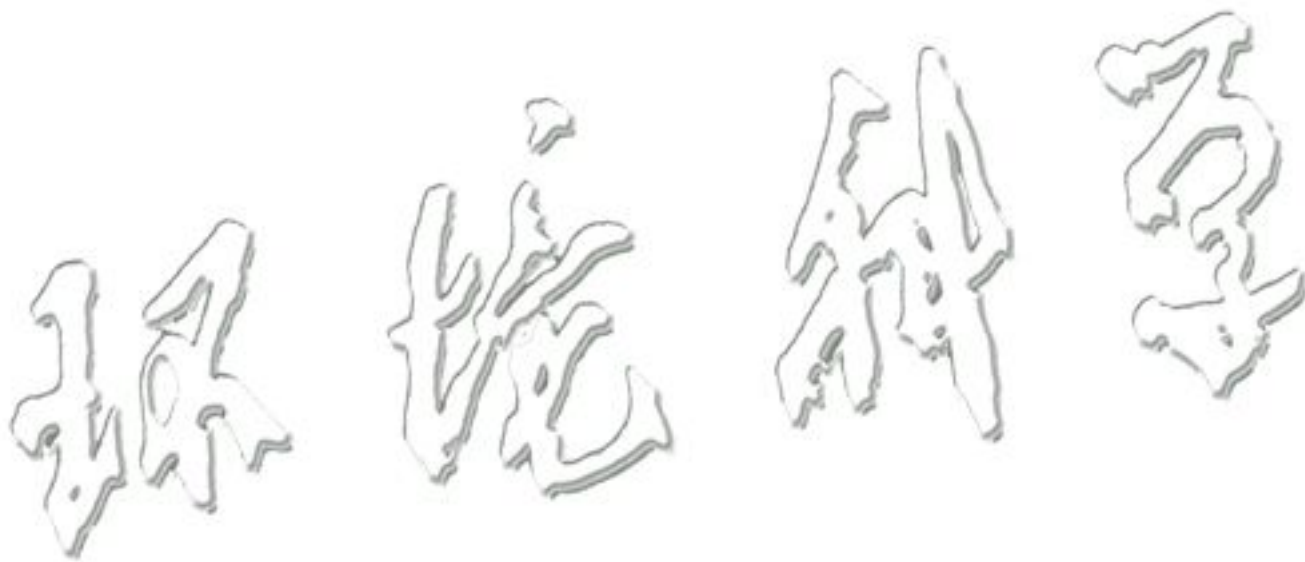
致谢: 感谢中国科学院生态环境研究中心在本研究采样及分析过程中提供的支持.

参考文献:

- [1] 刘素, 马彤, 杨艳, 等. 太原市冬季 PM_{2.5} 化学组分特征与来源解析[J]. 环境科学, 2019, 40(4): 1537-1544.
Liu S, Ma T, Yang Y, et al. Chemical composition characteristics and source apportionment of PM_{2.5} during winter in Taiyuan[J]. Environmental Science, 2019, 40(4): 1537-1544.
- [2] 赵雪艳, 杨文, 王静, 等. 典型物流城市 2016 年冬季 2 次污染过程 PM_{2.5} 污染特征及来源解析[J]. 环境科学, 2019, 40(3): 1052-1061.
Zhao X Y, Yang W, Wang J, et al. Source apportionment and pollution characteristics of PM_{2.5} during the two heavy pollution episodes in the winter of 2016 in a typical logistics city[J]. Environmental Science, 2019, 40(3): 1052-1061.
- [3] Ni Y, Wu S W, Ji W J, et al. The exposure metric choices have significant impact on the association between short-term exposure to outdoor particulate matter and changes in lung function: findings from a panel study in chronic obstructive pulmonary disease patients[J]. Science of the Total Environment, 2016, 542: 264-270.
- [4] Hsu C Y, Chiang H C, Lin S L, et al. Elemental characterization and source apportionment of PM₁₀ and PM_{2.5} in the western coastal area of central Taiwan[J]. Science of the Total Environment, 2016, 541: 1139-1150.
- [5] Huang X J, Liu Z R, Zhang J K, et al. Seasonal variation and secondary formation of size-segregated aerosol water-soluble inorganic ions during pollution episodes in Beijing[J]. Atmospheric Research, 2016, 168: 70-79.
- [6] Qin Y M, Li Y J, Wang H, et al. Particulate matter (PM) episodes at a suburban site in Hong Kong: evolution of PM characteristics and role of photochemistry in secondary aerosol formation[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, 16(22): 14131-14145.
- [7] 张敬巧, 吴亚君, 张萌, 等. 聊城冬季一重污染过程 PM_{2.5} 污染特征及成因分析[J]. 环境科学, 2018, 39(9): 4026-4033.
Zhang J Q, Wu Y J, Zhang M, et al. PM_{2.5} pollution characterization and cause analysis of a winter heavy pollution event, Liaocheng city[J]. Environmental Science, 2018, 39(9): 4026-4033.
- [8] 刘盈盈, 殷宝辉, 王静, 等. 济南冬季大气重污染过程颗粒物组分变化特征[J]. 环境化学, 2018, 37(12): 2749-2757.
Liu Y Y, Yin B H, Wang J, et al. Characteristics of airborne particles compositions during winter heavy pollution days in Jinan[J]. Environmental Chemistry, 2018, 37(12): 2749-2757.
- [9] 王彤, 华阳, 许庆成, 等. 京津冀郊区站点秋冬季大气 PM_{2.5} 来源解析[J]. 环境科学, 2019, 40(3): 1035-1042.
Wang T, Hua Y, Xu Q C, et al. Source Apportionment of PM_{2.5} in suburban area of Beijing-Tianjin-Hebei region in autumn and winter[J]. Environmental Science, 2019, 40(3): 1035-1042.
- [10] Huang X J, Liu Z R, Liu J Y, et al. Chemical characterization and source identification of PM_{2.5} at multiple sites in the Beijing-Tianjin-Hebei region, China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, 17(21): 12941-12962.
- [11] Wang Y, Zhuang G S, Zhang X Y, et al. The ion chemistry, seasonal cycle, and sources of PM_{2.5} and TSP aerosol in Shanghai[J]. Atmospheric Environment, 2006, 40(16): 2935-2952.
- [12] 赵莉斯, 于瑞莲, 徐玲玲, 等. 厦门海沧区 PM_{2.5} 中金属元素污染评价及来源分析[J]. 环境科学, 2017, 38(10): 4061-4070.
Zhao L S, Yu R L, Xu L L, et al. Pollution assessment and

- source analysis of metals in PM_{2.5} in Haicang district, Xiamen city, China[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(10): 4061-4070.
- [13] 高韩钰, 魏静, 王跃思. 北京南郊区 PM_{2.5} 中水溶性无机盐季节变化及来源分析[J]. *环境科学*, 2018, **39**(5): 1987-1993.
- Gao H Y, Wei J, Wang Y S. Seasonal variation and source analysis of water-soluble inorganic salts in PM_{2.5} in the southern suburbs of Beijing[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(5): 1987-1993.
- [14] 徐少才, 王静, 吴建会, 等. 青岛市 PM_{2.5} 化学组分特征及综合来源解析[J]. *中国环境监测*, 2018, **34**(4): 44-53.
- Xu S C, Wang J, Wu J H, *et al.* Characterization of chemical composition and comprehensive source apportionment of PM_{2.5} in Qingdao[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2018, **34**(4): 44-53.
- [15] 刘童, 王晓军, 陈倩, 等. 烟台市环境受体 PM_{2.5} 四季污染特征与来源解析[J]. *环境科学*, 2019, **40**(3): 1082-1090.
- Liu T, Wang X J, Chen Q, *et al.* Pollution characteristics and source apportionment of ambient PM_{2.5} during four seasons in Yantai city[J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(3): 1082-1090.
- [16] 程丽萍, 李嘉欣, 赵纲, 等. 基于 SPAMS 的石家庄市 2018 年春节期间重污染过程研究[J]. *河北工业科技*, 2019, **36**(1): 66-74.
- Cheng L P, Li J X, Zhao G, *et al.* Study on the process of heavy pollution during Spring festival in Shijiazhuang city in 2018 based on a single particle aerosol mass spectrometer[J]. *Hebei Journal of Industrial Science and Technology*, 2019, **36**(1): 66-74.
- [17] 李岳, 殷宝辉, 耿春梅, 等. 武清地区冬季一次重污染过程垂直分布特征[J]. *环境科学研究*, 2019, **32**(6): 1012-1019.
- Li Y, Yin B H, Geng C M, *et al.* The vertical distribution of air pollutants in a typical winter haze episode in Wuqing area[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2019, **32**(6): 1012-1019.
- [18] 黄凡, 陈楠, 周家斌, 等. 2016—2017 年武汉市城区大气 PM_{2.5} 污染特征及来源解析[J]. *中国环境监测*, 2019, **35**(1): 17-25.
- Huang F, Chen N, Zhou J B, *et al.* Characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in urban areas of Wuhan during 2016-2017[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2019, **35**(1): 17-25.
- [19] 陈楚, 王体健, 李源昊, 等. 濮阳市秋冬季大气细颗粒物污染特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2019, **40**(8): 3421-3430.
- Chen C, Wang T J, Li Y H, *et al.* Pollution characteristics and source apportionment of fine particulate matter in autumn and winter in Puyang, China[J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(8): 3421-3430.
- [20] 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.
- [21] 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.
- [22] 刘晓迪, 孟静静, 侯战方, 等. 济南市夏、冬季 PM_{2.5} 中化学组分的季节变化特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2018, **39**(9): 4014-4025.
- Liu X D, Meng J J, Hou Z F, *et al.* Analysis of seasonal variations in chemical characteristics and sources of PM_{2.5} during summer and winter in Ji'nan city[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(9): 4014-4025.
- [23] 王念飞, 陈阳, 郝庆菊, 等. 苏州市 PM_{2.5} 中水溶性离子的季节变化及来源分析[J]. *环境科学*, 2016, **37**(12): 4482-4489.
- Wang N F, Chen Y, Hao Q J, *et al.* Seasonal variation and source analysis of the water-soluble inorganic ions in fine particulate matter in Suzhou[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(12): 4482-4489.
- [24] 刘雨思, 李杏茹, 张怡萌, 等. 济南市秋冬季大气细粒子污染特征及来源[J]. *环境化学*, 2017, **36**(4): 787-798.
- Liu Y S, Li X R, Zhang Y M, *et al.* Characteristics and sources of airborne fine particles during the fall and winter in Ji'nan[J]. *Environmental Chemistry*, 2017, **36**(4): 787-798.
- [25] 林瑜, 叶芝祥, 杨怀金, 等. 成都市西南郊区春季大气 PM_{2.5} 的污染水平及来源解析[J]. *环境科学*, 2016, **37**(5): 1629-1638.
- Lin Y, Ye Z X, Yang H J, *et al.* Pollution level and source apportionment of atmospheric particles PM_{2.5} in southwest suburb of Chengdu in spring[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(5): 1629-1638.
- [26] 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.
- [27] Li H M, Wang Q G, Yang M, *et al.* Chemical characterization and source apportionment of PM_{2.5} aerosols in a megacity of southeast China[J]. *Atmospheric Research*, 2016, **181**: 288-299.
- [28] Liu B S, Wu J H, Zhang J Y, *et al.* Characterization and source apportionment of PM_{2.5} based on error estimation from EPA PMF 5.0 model at a medium city in China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **222**: 10-22.
- [29] Xu L L, Chen X Q, Chen J S, *et al.* Seasonal variations and chemical compositions of PM_{2.5} aerosol in the urban area of Fuzhou, China[J]. *Atmospheric Research*, 2012, **104-105**: 264-272.
- [30] 张云峰, 于瑞莲, 胡恭任, 等. 泉州市大气 PM_{2.5} 中水溶性离子季节变化特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2017, **38**(10): 4044-4053.
- Zhang Y F, Yu R L, Hu G R, *et al.* Seasonal variation and source apportionment of water-soluble ions in PM_{2.5} in Quanzhou city[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(10): 4044-4053.
- [31] 闫广轩, 雷豪杰, 张靖雯, 等. 新乡冬季 PM_{2.5} 中金属元素与水溶性离子年际变化及其来源解析[J]. *环境科学*, 2019, **40**(3): 1071-1081.
- Yan G X, Lei H J, Zhang J W, *et al.* Interannual variation of metal elements and water-soluble ions in PM_{2.5} during wintertime in Xinxiang and their source apportionment[J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(3): 1071-1081.
- [32] 范美益, 曹芳, 张园园, 等. 徐州市冬季大气细颗粒物水溶性无机离子污染特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2017, **38**(11): 4478-4485.
- Fan M Y, Cao F, Zhang Y Y, *et al.* Characteristics and sources of water soluble inorganic ions in fine particulate matter during winter in Xuzhou[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(11):

- 4478-4485.
- [33] 李妙玲. 北京大气细颗粒物的化学组成特征及来源解析 [D]. 北京: 北京化工大学, 2018. 37-63.
- Li M L. Chemical composition and source apportionment of atmospheric fine particles in Beijing [D]. Beijing: Beijing University of Chemical Technology, 2018. 37-63.
- [34] 王苏蓉, 喻义勇, 王勤耕, 等. 基于 PMF 模式的南京市大气细颗粒物源解析[J]. 中国环境科学, 2015, **35**(12): 3535-3542.
- Wang S R, Yu Y Y, Wang Q G, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} in Nanjing by PMF [J]. China Environmental Science, 2015, **35**(12): 3535-3542.
- [35] 杨留明, 王申博, 郝祺, 等. 郑州市 PM_{2.5} 中水溶性离子特征及来源分析[J]. 环境科学, 2019, **40**(7): 2977-2984.
- Yang L M, Wang S B, Hao Q, *et al.* Characteristics and source analysis of water-soluble ions in PM_{2.5} in Zhengzhou [J]. Environmental Science, 2019, **40**(7): 2977-2984.
- [36] 张棕巍, 胡恭任, 于瑞莲, 等. 厦门市大气 PM_{2.5} 中水溶性离子污染特征及来源解析[J]. 中国环境科学, 2016, **36**(7): 1947-1954.
- Zhang Z W, Hu G R, Yu R L, *et al.* Characteristics and sources apportionment of water-soluble ions in PM_{2.5} of Xiamen city, China[J]. China Environmental Science, 2016, **36**(7): 1947-1954.
- [37] Ivošević T, Orlić I, Radović I B. Long term fine aerosol analysis by XRF and PIXE techniques in the city of Rijeka, Croatia[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2015, **363**: 119-123.
- [38] 闫广轩, 张朴真, 黄海燕, 等. 郑州-新乡冬季 PM_{2.5} 中元素浓度特征及其源分析[J]. 环境科学, 2019, **40**(5): 2027-2035.
- Yan G X, Zhang P Z, Huang H Y, *et al.* Concentration characteristics and source analysis of PM_{2.5} during wintertime in Zhengzhou-Xinxiang[J]. Environmental Science, 2019, **40**(5): 2027-2035.



CONTENTS

PM _{2.5} Inversion Using Remote Sensing Data in Eastern China Based on Deep Learning	LIU Lin-yu, ZHANG Yong-jun, LI Yan-sheng, <i>et al.</i> (1513)
Regional Air Pollution Process in Winter over the Yangtze River Delta and Its Influence on Typical Northern Cities	LI Rui, LI Qing, XU Jian, <i>et al.</i> (1520)
Influencing Factors of Ozone Concentration in Xi'an Based on Generalized Additive Models	HUANG Xiao-gang, SHAO Tian-jie, ZHAO Jing-bo, <i>et al.</i> (1535)
Spatial and Temporal Distribution Characteristics of Levoglucosan and Its Isomers in PM _{2.5} in Beijing and Six Surrounding Cities	ZHU Hong-xia, TAO Xue-mei, WANG Chao, <i>et al.</i> (1544)
Characteristics and Sources Apportionment of Fine Particulate Matter in a Typical Coastal City During the Heating Period	LI Ming-yan, YANG Wen, WEI Min, <i>et al.</i> (1550)
Characteristics and Source Apportionment of Black Carbon in Chengdu	WANG Lu, YUAN Liang, ZHANG Xiao-ling, <i>et al.</i> (1561)
Effects of VOCs on Ozone Formation in the Tianjin Suburbs in Summer	YAO Qing, HAN Su-qin, ZHANG Yu-fen, <i>et al.</i> (1573)
Source Profiles and Impact of Volatile Organic Compounds in the Coating Manufacturing Industry	WU Jian, GAO Song, CHEN Xi, <i>et al.</i> (1582)
Characteristics of Condensable Particulate Matter in Ultra-low Emission Coal-Fired Power Plants	DENG Jian-guo, WANG Gang, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (1589)
Distribution and Source Analysis of Nitrate in Surface Waters of China	ZHANG Xin, ZHANG Yan, BI Zhi-lei, <i>et al.</i> (1594)
Spatial Characteristics and Ecological Risks of Perfluoroalkyl Substances in Coastal Urbanized Areas of China and South Korea	YANG Hong-fa, SHI Bin, ZHOU Yun-qiao, <i>et al.</i> (1607)
Analysis of Water Quality Change and Its Driving Factors of the Xiaoqing River Estuary in Recent Ten Years	FAN Xin-feng, HAN Mei, WANG Lei, <i>et al.</i> (1619)
Distribution of Four Artificial Sweeteners in Water Treatment and Water Supply System in City H of Zhejiang Province	MA Xiao-yan, HU Hui, LU Si-jia, <i>et al.</i> (1629)
Changes in Epilithic Algae Community and Its Relationship with Environmental Factors in the Meixi River, a Tributary of the Three Gorges Reservoir	MI Wen-mei, SHI Jun-qiong, YANG Yan-jun, <i>et al.</i> (1636)
Succession Pattern of Phytoplankton and Its Drivers in Lake Luoma, Jiangsu Province	ZHANG Qing-ji, WANG Ye-yu, WANG Jin-dong, <i>et al.</i> (1648)
Relationship Between Diversity of Aquatic Plant Communities and Water Environmental Factors in Lhalu Wetland	WANG Jia-jun, TIAN Han-xin, ZHOU Lei, <i>et al.</i> (1657)
Evolution Characteristics and Driving Factors of Denitrification Community Based on Network Analysis in the Process of Spring Thermal Layer Formation in Zhoucun Reservoir	ZHOU Shi-lei, SUN Yue, ZHANG Yi-ran, <i>et al.</i> (1666)
Temporal and Spatial Distribution Characteristics and Difference Analysis of Nitrogen and Phosphorus in Daihai Lake	ZHAO Li, CHEN Jun-yi, JIANG Xia, <i>et al.</i> (1676)
Sediment Denitrification Rate and Its Response to Exogenous Carbon and Nitrogen in the Ponds and Bottomland of the Chaohu Lakeshore Zone	LI Ru-zhong, WANG Li, LIU Chao (1684)
Phosphate Control Effect and Water Body Remediation of Magnesium Modified Reed Biochar	DING Yu-qin, LI Da-peng, ZHANG Shuai, <i>et al.</i> (1692)
Efficiency of Magnesium Hydroxide Capping and Amendment to Control Phosphorus Release from Sediments	YANG Chun-yi, ZHAN Yan-hui, LIN Jian-wei, <i>et al.</i> (1700)
Characteristics of Chemical Fractions of Dissolved Organic Matter in Road Runoff in Beijing	CHEN Meng-yao, DU Xiao-li, YU Zhen-ya, <i>et al.</i> (1709)
3D Porous Photothermal Materials for High Salt Wastewater Treatment	HUANG Le, XU Ying-feng, XIE Qian-qing, <i>et al.</i> (1716)
Electrocatalytic Oxidation of Sulfadiazine with Ni-Doped Sb-SnO ₂ Ceramic Ring Particle Electrode	SHI Qiu-jun, LIU An-di, TANG Bo-bin, <i>et al.</i> (1725)
Degradation of A07 with Magnetic Fe ₃ O ₄ -CuO Heterogeneous Catalyzed Sodium Percarbonate System	XU Jie, WANG Lin, CHEN Jia-bin, <i>et al.</i> (1734)
Red Mud-activated Peroxymonosulfate for Ciprofloxacin Degradation: Efficiency and Mechanism	SHI Jing-zhuan, WEI Hong, ZHOU Xiao-de, <i>et al.</i> (1743)
Influence of Industrial Wastewater Quality on Advanced Treatment of Microbubble Ozonation	ZHANG Jing, ZHANG Shou-jing, LIU Chun, <i>et al.</i> (1752)
Adsorption Properties of Sludge-hydrochar for Methylene Blue	CHEN Li-yuan, LI Da-peng, ZHU Wen-juan, <i>et al.</i> (1761)
Preparation of Modified Watermelon Biochar and Its Adsorption Properties for Pb(II)	BI Jing-wang, SHAN Rui, HAN Jing, <i>et al.</i> (1770)
Construction and Denitrification Performance of A ² /O Based on Partial Nitrification Coupled with an ANAMMOX System	LIU Xiao-chai, RONG Yi, WEN Li-jie, <i>et al.</i> (1779)
Construction and Mechanism of Methanotroph-based Ultimate Denitrification System for Tailwater of Urban Sewage Plants	YANG Ya-nan, LI Yan-cheng, LI Jiang, <i>et al.</i> (1787)
Impact of Hydraulic Retention Time on Performance of Partial Nitrification Granular Sludge in Continuous Stirred-Tank Reactor	WANG Jian-fang, QI Ze-kun, QIAN Fei-yue, <i>et al.</i> (1794)
Realization Process of Nitrification and Changes in Sludge Characteristics in Granular Sludge Reactor for Low Strength Sewage Treatment	ZHU Lin, CHENG Cheng, SONG Jia-jun, <i>et al.</i> (1801)
Characteristics of Organics Transformation and Sludge Morphology in an ABR for Sewage Treatment with Different HRTs	CHENG Cheng, ZHU Lin, GUO Kai-cheng, <i>et al.</i> (1808)
Effect of Adding Granular Activated Carbon (GAC)/Manganese Dioxide (MnO ₂) for the Anaerobic Digestion of Waste Activated Sludge	YANG Bo, JIA Li-juan, XU Hui, <i>et al.</i> (1816)
Trace Metals Pollution and Health Risks for Planning Area Soils of 193 Chinese Cities	LI Kuo, PENG Min, YANG Zheng, <i>et al.</i> (1825)
Assessment of Heavy Metal Pollution in Surface Dust of Lanzhou Schools Based on Random Forests	HU Meng-jun, WANG Jia, ZHANG Ya-yun, <i>et al.</i> (1838)
Contents, Sources, and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Surface Soils of Various Functional Zones in Yangzhou City, China	YAO Cheng, NI Jin-zhi, LIU Rui, <i>et al.</i> (1847)
Safety Assessment of Rice Planting in Soil Cadmium Geological Anomaly Areas in Southwest Guangxi	CHEN Tong-bin, PANG Rui, WANG Fo-peng, <i>et al.</i> (1855)
Bioavailability and Influencing Factors of Soil Cd in the Major Farming Areas of Chongqing	WANG Rui, HU Xiao-lan, ZHANG Yong-wen, <i>et al.</i> (1864)
Control of Cadmium Migration and Transformation in Alkaline Paddy Soil-Rice Using Cotton Stalk Biochar	LIU Shi-dou, ZHU Xin-ping, HAN Yao-guang, <i>et al.</i> (1871)
Reduction of Soil Cadmium Activity and Rice Cadmium Content by 4-year-consecutive Application of Organic Fertilizer	XUE Yi, YIN Ze-run, SHENG Hao, <i>et al.</i> (1880)
Effects of Nano-magnesium Hydroxide on the Forms of Cadmium in Different Types of Soil	DENG Ji-bao, ZHANG Chun-lai, XU Wei-hong (1888)
Selenium Uptake Characteristics of Reclaimed Soil-Crop from Mining Wasteland and Its Antagonistic Effects on Heavy Metals	YIN Bing, WANG Jian-fei, SHI Sheng, <i>et al.</i> (1904)
Dynamic Effects of Different Biochars on Soil Properties and Crop Yield of Acid Farmland	YANG Cai-di, ZONG Yu-tong, LU Sheng-gao (1914)
Effects of Fertilizer Reduction and Application of Organic Fertilizer on Soil Nitrogen and Phosphorus Nutrients and Crop Yield in a Purple Soil Sloping Field	ZHU Hao-yu, GAO Ming, LONG Yi, <i>et al.</i> (1921)
Response of Nitrogen Loss Flux in Purple Soil Sloping Field to Reduced Fertilizer and Combining Straw	XIONG Zi-yi, WANG Zi-fang, LONG Yi, <i>et al.</i> (1930)
Effect and Approach of <i>Enteromorpha prolifera</i> Biochar to Improve Coastal Saline Soil	WU Dan, SUN Ping, LU Peng-zhan, <i>et al.</i> (1941)
Vertical Distribution of Soil Dissolved Carbon and Its Influencing Factors in the Artificial Shelterbelt Irrigated with Saline Water in an Extreme Drought Desert	MENG Tian-ge, WU Lu-yao, ZHANG Shao-lei, <i>et al.</i> (1950)
Response of Soil Enzyme Activity and Chemical Properties to Nitrogen Addition in a Korean Pine Plantation	LÜ Lai-xin, SONG Lei, LIU Zhi-li, <i>et al.</i> (1960)
Consumption Capacity of N ₂ O in Paddy Soil and the Response Mechanism of <i>nosZ-I</i> -containing Communities	GUO Jun-li, TIAN Mei-jie, GE Ti-da, <i>et al.</i> (1968)
Predicting the Recycling Potential and Evaluating the Environmental Benefits of Waste Electrical and Electronic Equipment in Beijing-Tianjin-Hebei	CHEN Pan, SHI Xiao-qing (1976)
Relationship Between Urban Industrialization and PM _{2.5} Concentration in China and the Internal Mechanism of EKC	LI Ya-nan, DING Zhen-min, DENG Yuan-jie, <i>et al.</i> (1987)