

张智胜,陶俊,谢绍东,等.2013.成都城区 PM_{2.5} 季节污染特征及来源解析[J].环境科学学报,33(11):2947-2952

Zhang Z S, Tao J, Xie S D, et al. 2013. Seasonal variations and source apportionment of PM_{2.5} at urban area of Chengdu [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 33(11):2947-2952

成都城区 PM_{2.5} 季节污染特征及来源解析

张智胜¹,陶俊^{1,*},谢绍东²,周来东³,宋丹林³,张普³,曹军骥⁴,罗磊⁵

1. 环境保护部华南环境科学研究所,广州 510655

2. 北京大学环境科学与工程学院,北京 100871

3. 成都市环境保护科学研究院,成都 610072

4. 中国科学院地球环境研究所,西安 710075

5. 中国气象局成都高原气象研究所,成都 610071

收稿日期:2013-06-08

修回日期:2013-07-31

录用日期:2013-08-07

摘要:于 2009—2010 年各季节典型月在成都城区采集了大气 PM_{2.5} 样品,对 PM_{2.5} 的质量浓度及其主要化学成分(含碳组分、水溶性无机离子和元素)进行了测定.结果显示:成都城区 PM_{2.5} 平均质量浓度高达(165.1 ± 85.1) μg·m⁻³,是国家环境空气质量标准年均 PM_{2.5} 限值的 4.7 倍. OC、EC 和水溶性二次离子(SO₄²⁻, NO₃⁻ 和 NH₄⁺) 的平均浓度分别为(22.6 ± 10.2) μg·m⁻³, (9.0 ± 5.4) μg·m⁻³ 和(62.8 ± 44.3) μg·m⁻³, 分别占 PM_{2.5} 浓度的 13.7%、5.5% 和 38.0%. PM_{2.5} 及其主要化学成分浓度季节特征明显,即秋冬季高于春夏季. 利用正交矩阵因子分析(PMF)对成都城区 PM_{2.5} 的来源进行解析,结果表明,土壤尘及扬尘、生物质燃烧、机动车源和二次硝酸盐/硫酸盐的贡献率分别为 14.3%、28.0%、24.0% 和 31.3%. 就季节变化而言,生物质燃烧源贡献率在四个季节均维持在较高水平;土壤尘及扬尘的贡献率在春季显著提高;机动车源的贡献率在夏季中表现突出;而二次硝酸盐/硫酸盐的贡献率在秋冬季中则最为显著.

关键词:成都;PM_{2.5};碳气溶胶;水溶性无机离子;源解析

文章编号:0253-2468(2013)11-2947-06

中图分类号:X513

文献标识码:A

Seasonal variations and source apportionment of PM_{2.5} at urban area of Chengdu

ZHANG Zhisheng¹, TAO Jun^{1,*}, XIE Shaodong², ZHOU Laidong³, SONG Danlin³, ZHANG Pu³, CAO Junji⁴, LUO Lei⁵

1. South China Institute of Environmental Sciences, MEP, Guangzhou 510655

2. College of Environmental Sciences and Engineering, Peking University, Beijing 100871

3. Chengdu Academy of Environmental Protection, Chengdu 610072

4. Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710075

5. Institute of Plateau Meteorology, China Meteorological Administration, Chengdu 610071

Received 8 June 2013;

received in revised form 31 July 2013;

accepted 7 August 2013

Abstract: Daily PM_{2.5} samples were collected from 2009 to 2010 during a typical month of each season at an urban site of Chengdu. The mass concentration and chemical compositions (including carbonaceous species, water-soluble inorganic ions and elements) of PM_{2.5} were determined. The results showed that the average PM_{2.5} mass concentration was (165.1 ± 85.1) μg·m⁻³, which was 4.7 times the annual PM_{2.5} National Ambient Air Quality Standard of China. The average concentrations of OC, EC and total secondary inorganic ions (SO₄²⁻, NO₃⁻ and NH₄⁺) were (22.6 ± 10.2) μg·m⁻³, (9.0 ± 5.4) μg·m⁻³ and (62.8 ± 44.3) μg·m⁻³, accounting for 13.7%, 5.5% and 38.0% of PM_{2.5} mass concentration, respectively. Higher levels of PM_{2.5} mass concentration and their major chemical compositions were found in autumn and winter compared to those found in spring and summer. Positive Matrix Factorization (PMF) model was performed to identify the sources of PM_{2.5} at urban Chengdu. Four sources significantly contributing to the observed PM_{2.5} were: soil dust and fugitive dust, biomass burning, vehicle emissions and secondary nitrate/sulfate, with the

基金项目: 国家环境保护公益性行业科研专项(No. 201009001); 中央级公益性科研院所基本科研业务专项(No. PM-ZX021-201211-104)

Supported by the Special Scientific Research Funds for Environment Protection Commonweal Section (No. 201009001) and the Central Research Institute's Basic Scientific Special Funds (No. PM-ZX021-201211-104)

作者简介: 张智胜(1986—),男,工程师(博士),E-mail: zhangzhisheng@scies.org; * 通讯作者(责任作者), E-mail: taojun@scies.org

Biography: ZHANG Zhisheng (1986—), male, engineer (Ph. D.), E-mail: zhangzhisheng@scies.org; * **Corresponding author**, E-mail: taojun@scies.org

contributions of 14.3%, 28.0%, 24.0% and 31.3% to $PM_{2.5}$ mass concentration, respectively. These four sources exhibited distinct seasonal patterns: the relative contribution of biomass burning to total $PM_{2.5}$ was relatively high for all seasons; the relative contribution of soil dust and fugitive dust increased significantly during spring; vehicle emissions contributed significantly during summer; and the highest relative contribution to $PM_{2.5}$ during autumn and winter was secondary nitrate/sulfate factor.

Keywords: Chengdu; $PM_{2.5}$; carbonaceous aerosol; water-soluble inorganic ions; source apportionment

1 引言 (Introduction)

大气细颗粒物 ($PM_{2.5}$, 空气动力学当量直径小于 $2.5 \mu m$ 的颗粒物) 对人体健康 (Samet *et al.*, 2000), 能见度 (Watson, 2002; 吴兑等, 2012) 以及气候变化 (Ramanathan *et al.*, 2001) 均具有重要影响. 鉴于细颗粒物的健康、环境和气候效应, 目前在全球范围内开展了一系列 $PM_{2.5}$ 观测研究以了解其来源和理化特征 (Malm *et al.*, 2004; Viana *et al.*, 2008), 这对准确评估颗粒物的影响及制定相应的控制策略具有深远的意义. 尽管中国先后开展了有限的 $PM_{2.5}$ 观测研究, 但却主要集中在京津冀、长三角和珠三角地区 (He *et al.*, 2001; Ye *et al.*, 2003; Lai *et al.*, 2007; Wang *et al.*, 2008; 周敏等, 2013), 而在人口密集且空气污染形势严峻的四川盆地却鲜有报道 (Cao *et al.*, 2007; Zhao *et al.*, 2010). 为了减缓空气污染对该地区人体健康和社会经济发展的负面影响, 迫切需要对该地区展开 $PM_{2.5}$ 的污染特征及来源解析研究.

成都位于四川盆地的西部, 是我国西南地区最大的城市之一, 人口超过 1000 万. 城区东西两侧分别为龙泉山脉和邛崃山脉, 地形比较封闭, 加上较高的静小风频率, 使得该地区颗粒物浓度常年处于较高水平 (Tao *et al.*, 2013a; Tao *et al.*, 2013b). 本研究通过 2009 年 4 月至 2010 年 1 月各季节典型

月份在成都城区的加强观测实验, 获取了 $PM_{2.5}$ 中含碳组分 (含有机碳 (OC) 和元素碳 (EC))、水溶性无机离子和元素等第一手观测数据, 探讨了 $PM_{2.5}$ 及其主要化学组分的季节污染变化特征, 并利用正交矩阵因子分析模式对 $PM_{2.5}$ 进行来源解析, 以期当地政府制定相应的 $PM_{2.5}$ 污染控制政策提供科学支撑.

2 研究方法 (Methods)

2.1 样品采集

采样地点设在中国气象局成都高原气象研究所的办公楼楼顶, 距离地面约 15 m, 周围是集中居住区, 5 km 范围内无工业污染源, 是较为典型的城区大气观测站点. 研究于 2009 至 2010 年期间利用额定流量为 $5.0 L \cdot min^{-1}$ 的小流量颗粒物采样器 (Airmetrics Corp., USA) 共采集了 121 组 $PM_{2.5}$ 样品 (见表 1) 和 10 组空白样品. 采样期间每日 (当日的 10:00 到次日的 10:00) 同时使用 47 mm 的石英滤膜和特氟龙滤膜采集样品. 空白样品则在装载滤膜 24 h 不开机运行的情况下获取. 石英膜在采样前通过 $800 \text{ }^\circ C$ 高温灼烧 3 h 以去除可能的碳污染. 特氟龙膜在采样前后于恒温恒湿箱 (温度 $20 \sim 23 \text{ }^\circ C$, 相对湿度 $35\% \sim 45\%$) 平衡 24 h 后, 再用精度为 $1 \mu g$ 的电子天平 (Sartorius, Göttingen, Germany) 进行称量以确定 $PM_{2.5}$ 的质量浓度. 所有样品均放入冷冻柜 ($-18 \text{ }^\circ C$) 中保存至实验分析.

表 1 研究期间采样信息及气象参数概况

Table 1 Summary of sampling information and meteorological conditions during study period

季节	采样时间	样品数量 /个	降雨总量 /mm	风速 /($m \cdot s^{-1}$)	相对湿度	温度 / $^\circ C$	能见度 /km
春	2009-4-29—2009-5-17	29	49	0.7 ± 0.4	$67.9\% \pm 11.2\%$	20.0 ± 1.9	9.8 ± 3.2
夏	2009-7-6—2009-8-6	31	216	0.6 ± 0.3	$79.2\% \pm 7.1\%$	25.4 ± 1.7	10.1 ± 1.6
秋	2009-10-26—2009-11-26	31	11	0.5 ± 0.5	$75.8\% \pm 7.0\%$	12.3 ± 4.8	7.5 ± 3.1
冬	2010-1-1—2010-1-31	30	0	0.5 ± 0.3	$76.1\% \pm 9.5\%$	7.4 ± 1.5	6.8 ± 3.3

2.2 实验室化学分析

采用美国沙漠研究所研制的 DRI Model 2001 热光碳分析仪 (Atmoslytic Inc., USA) 对石英膜样品中碳组分进行测定. 根据美国 IMPROVE 热-光反射协议 (Thermal-Optical Reflectance) 对 OC 和 EC 进行

划分, 将 OC 定义为 $OC1 + OC2 + OC3 + OC4 + OP$, EC 定义为 $EC1 + EC2 + EC3 - OP$. 该方法主要测试原理及详细步骤可参考文献 (Cao *et al.*, 2007).

剪取 $1/4$ 石英膜并加入 10 mL 去离子水 ($>18.2 M\Omega$), 超声萃取 1 h 后采用 $0.45 \mu m$ 的过

滤器过滤定容,然后使用中国科学院地球环境研究所气溶胶实验室的 Dionex-600 型离子色谱仪对水溶性阴阳离子进行测定,具体分析方法可参考文献 (Zhang *et al.*, 2011)。

使用中国科学院地球环境研究所气溶胶实验室能量色散仪型 X 荧光光谱仪 (XRF, Epsilon5, Netherlands) 对特氟龙膜上气溶胶所含的元素进行了测定,具体的分析步骤可参见文献 (Xu *et al.*, 2012)。

2.3 源解析受体模式

正交矩阵因子法 (PMF) 具有同时确定污染源廓线和源贡献的优点,且无需掌握完整的源成分清单 (Reff *et al.*, 2007)。考虑到我国大气颗粒物源成分清单不完善以及受多种污染源影响的现状,本研究采用了 PMF 方法来识别和解析成都 PM_{2.5} 的来源及贡献。PMF 模型需输入 PM_{2.5} 及其化学成分的浓度矩阵和测量偏差矩阵。各化学物种的测量偏差由平行样和空白样的标准偏差平方和的平方根所求得。化学物种缺失值由该物种的平均值所代替,同时偏差设置为该值的 4 倍以降低该值对结果的影响 (Polissar *et al.*, 2001)。缺失率或未检出率较高 (大于总体样品 20%) 的水溶性离子 (如 Ca²⁺、Na⁺、

Mg²⁺ 和 F⁻) 被剔除,同时不确定性高或源指代性弱的元素也被排除,因此共有 15 种化学物种 (见表 2) 输入模式进行运算。此外,2009 年 4 月 24 日至 26 日的样品由于受到严重的沙尘事件影响也被剔除 (Tao *et al.*, 2013a)。

3 结果与讨论 (Results and discussion)

3.1 PM_{2.5} 季节变化特征

2009—2010 年成都城区大气 PM_{2.5} 平均质量浓度高达 165.1 μg·m⁻³,是国家环境空气质量标准 (GB3095—2012) 年均 PM_{2.5} 限值 (35 μg·m⁻³) 的 4.7 倍。成都 PM_{2.5} 浓度季节变化特征明显,即秋冬季显著高于春夏季 (t 检验, $p < 0.05$)。秋冬季 PM_{2.5} 质量浓度较高主要是由于秋冬季太阳辐射弱,边界层较低,静小风天气频繁,污染物难以扩散,同时秋冬季降雨较少,有利于污染物的累积和二次气溶胶的形成。这也使得秋冬季成为成都地区出现霾天气的高发季节 (由表 1 可知秋冬两季平均能见度分别为 7.5 km 和 6.8 km)。在春夏季中,太阳辐射比较强烈,边界层较高,加上降雨对污染物有一定的清除作用,从而使得 PM_{2.5} 浓度处于较低水平。

表 2 成都 PM_{2.5} 及其主要化学成分季节浓度水平

化学组分	总体	春季	夏季	秋季	冬季
PM _{2.5}	165.1 ± 85.1	133.2 ± 55.5	113.5 ± 39.3	188.0 ± 106.9	225.5 ± 73.2
OC	22.6 ± 10.2	20.7 ± 6.0	14.9 ± 3.8	23.3 ± 9.7	31.5 ± 11.6
EC	9.0 ± 5.4	5.7 ± 1.8	7.1 ± 2.8	11.6 ± 8.0	11.6 ± 3.6
SO ₄ ²⁻	32.8 ± 21.9	15.5 ± 6.0	27.8 ± 12.1	36.5 ± 25.2	50.6 ± 20.6
NO ₃ ⁻	19.7 ± 14.6	9.7 ± 6.2	12.1 ± 5.5	25.5 ± 17.6	31.2 ± 12.8
NH ₄ ⁺	10.4 ± 8.7	4.6 ± 4.6	4.7 ± 4.2	13.7 ± 8.6	18.2 ± 7.3
Cl ⁻	5.0 ± 3.1	2.7 ± 1.7	3.8 ± 1.4	6.2 ± 3.3	7.1 ± 3.4
K ⁺	3.4 ± 1.9	3.0 ± 1.8	2.2 ± 0.8	4.1 ± 2.0	4.3 ± 1.9
Al	1.05 ± 2.13	2.41 ± 4.05	0.37 ± 0.20	0.69 ± 0.31	0.82 ± 0.45
Si	1.09 ± 2.19	2.28 ± 4.26	0.38 ± 0.21	0.78 ± 0.32	1.01 ± 0.34
Ti	0.13 ± 0.14	0.19 ± 0.26	0.06 ± 0.02	0.11 ± 0.06	0.14 ± 0.05
Mn	0.14 ± 0.08	0.11 ± 0.09	0.10 ± 0.05	0.14 ± 0.07	0.20 ± 0.10
Fe	1.68 ± 1.79	2.39 ± 3.21	0.79 ± 0.35	1.37 ± 0.65	2.23 ± 1.00
Zn	0.82 ± 0.47	0.45 ± 0.24	0.69 ± 0.27	0.95 ± 0.46	1.19 ± 0.51
Pb	0.32 ± 0.19	0.19 ± 0.08	0.23 ± 0.08	0.37 ± 0.08	0.49 ± 0.21
Cu	0.05 ± 0.03	0.03 ± 0.01	0.04 ± 0.02	0.07 ± 0.03	0.08 ± 0.04

3.2 PM_{2.5} 主要化学组分的季节变化特征

PM_{2.5} 中 OC 和 EC 总体均值分别为 (22.6 ± 10.2) μg·m⁻³ 和 (9.0 ± 5.4) μg·m⁻³, 分别占 PM_{2.5}

浓度的 13.7% 和 5.5%, 可见碳组分是 PM_{2.5} 的重要组成部分。EC 来源于燃料高温燃烧产生的单质碳或难溶性高分子碳聚物,在大气环境中相对稳定,因此

它常被认作为高温燃烧源一次气溶胶的指示物 (Turpin and Huntzicker, 1995). OC 则可由成千上万种有机物组成,除了包括污染源直接排放的一次有机碳(POC),还包含由人为或天然源排放的挥发性有机物经大气氧化作用生成的二次有机碳(SOC) (Pandis *et al.*, 1992). 因此,OC 与 EC 间的相互关系可初步判断碳气溶胶的来源. 图 1 为成都城区不同季节 OC 与 EC 之间的关系. 由图 1 可知,四季中 OC 和 EC 之间都呈显著线性拟合关系,初步说明碳气溶胶主要受燃烧源的影响. OC/EC 比值也可辅助判断碳气溶胶的来源,如 Watson 等(2001)曾报道机动车源和生物质燃烧源释放的颗粒物中 OC/EC 比值分别为 1.1 和 9.0. 注意到春季 OC/EC 均值(3.8)不仅显著高于其它季节(*t* 检验, $p < 0.05$),且 OC 与 EC 间的拟合关系较其它季节弱($R^2 = 0.32$),表明多种燃烧源的相对贡献可能发生了明显的改变. 这可能是由于春季生物质燃烧对碳气溶胶相对贡献较高的原因所导致的(陶俊等, 2011).

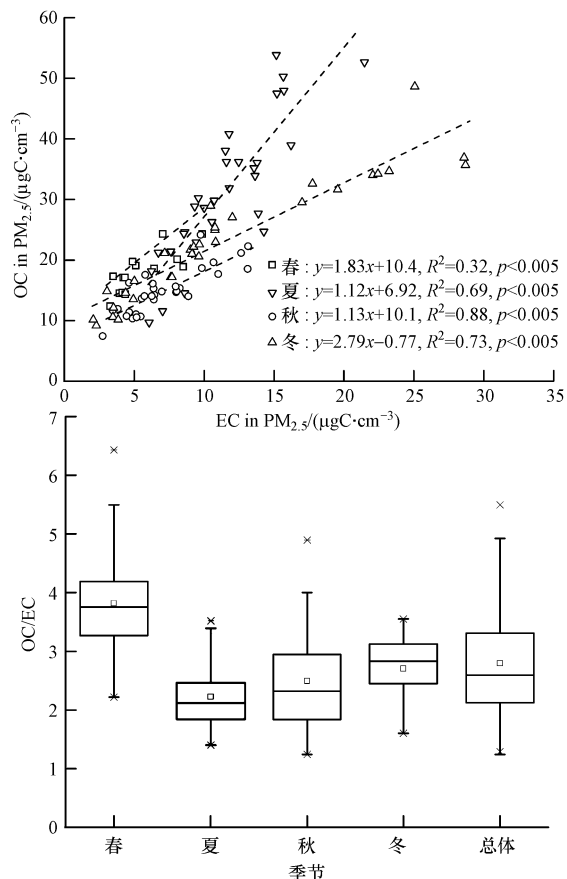


图 1 成都各季节 $PM_{2.5}$ 中 OC 与 EC 的拟合关系及比值

Fig. 1 The fit relationship between OC and EC in $PM_{2.5}$ and OC/EC ratio for each season at Chengdu

成都城区 $PM_{2.5}$ 中水溶性二次离子 (SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+) 的总浓度为 $(62.8 \pm 44.3) \mu g \cdot m^{-3}$, 占 $PM_{2.5}$ 质量浓度的 38.0%, 可见水溶性二次离子是 $PM_{2.5}$ 的主要组成成分. 城区细颗粒物中 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 主要是经前体物 SO_2 和 NO_x 在大气氧化剂作用下生成硫酸和硝酸所形成. NH_4^+ 则通常被认为是由氨气与大气形成的二次污染物硫酸或硝酸反应生成 (Seinfeld and Pandis, 2006). 因此水溶性二次离子主要有硫酸铵和硝酸铵两种形态. 由表 2 可知,水溶性二次离子秋冬季的浓度均值 ($87.7 \mu g \cdot m^{-3}$) 远高于春夏季 ($37.5 \mu g \cdot m^{-3}$), 表明了秋冬季稳定的边界层条件,有助于 SO_2 和 NO_x 的大气氧化过程,从而有利于硫酸盐和硝酸盐的生成. 此外,硝酸铵具有半挥发性,在秋冬季温度较低的情况下有利于硝酸盐以颗粒态形式存在.

3.3 成都城区 $PM_{2.5}$ 的来源解析

为了确定因子(源)数量,分别对模型进行了多次运算,通过比较分析,最终确定 5 个因子最为合理. 在此条件下所获得的 $PM_{2.5}$ 质量浓度及化学成分的重建值与实测值的 R^2 在 0.78 至 0.97 间,其中 $PM_{2.5}$ 重建值与实测值间的 R^2 为 0.97,斜率为 1.02. 5 个因子的源廓线和贡献如图 2 和 3 所示,可判断分别为:①土壤尘及扬尘、②生物质燃烧、③机动车源、④二次硝酸盐/硫酸盐和⑤其它,对大气 $PM_{2.5}$ 的

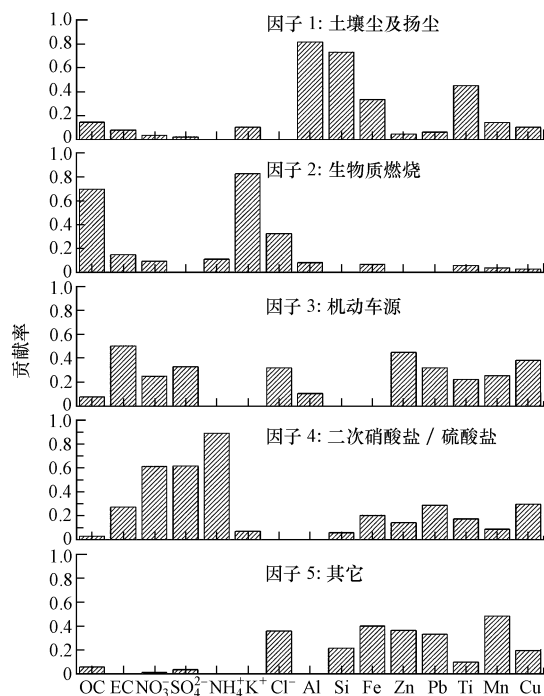


图 2 PMF 方法解析出的源廓线图

Fig. 2 Source profiles derived from PMF

平均贡献率分别为 14.3%、28.0%、24.0%、31.3% 和 2.4%。

第 1 个因子中,因子对 Al、Si、Ti 和 Fe 等地壳元素的贡献较大,符合土壤尘及扬尘的源谱特征。由图 3 可知该源在春季期间贡献率为 28.8%,显著高于其它季节(约 10%)。成都地处四川盆地,虽西靠青藏高原,北有岷山和秦岭山脉作为天然屏障,但春季北方大范围的沙尘受风力夹挟南迁仍可传输至成都,如 2009 年 4 月 24 日至 26 日期间成都大气 PM_{2.5} 受到北方沙尘的严重影响(Tao *et al.*, 2013; Wang *et al.*, 2013)。尽管在 PMF 模式中已排除这些极端事件的影响,但成都春季降雨较少,难以清除土壤尘所携带的细颗粒,且细颗粒经干、湿沉降聚集在地面后仍可在自然力或人为活动的影响下以扬尘形式再次进入大气,从而使得春季大气颗粒物受到土壤尘及扬尘的影响较重。

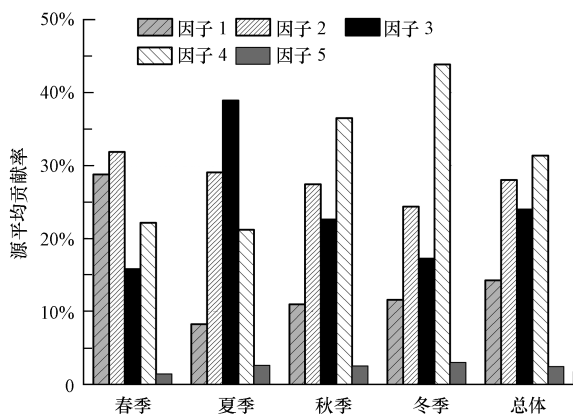


图 3 PMF 法解析出的源在各季节对 PM_{2.5} 质量浓度的平均贡献率

Fig.3 Estimated average source contributions to PM_{2.5} mass concentration based on PMF for each season

第 2 个因子中,因子对 K⁺ 和 OC 的贡献最大,同时对 Cl⁻ 的贡献也相对较高。据文献报道,生物质燃烧过程释放的颗粒物中富含 OC、K⁺、EC 和 Cl⁻ 等组分(Engling *et al.*, 2009),同时细颗粒物中 K⁺ 通常被认为是生物质燃烧的示踪物(Duan *et al.*, 2004)。因此,可以判断该因子为生物质燃烧源。该因子对 PM_{2.5} 的贡献率在各季节中虽变化不大,但总体贡献率达 28.0%,说明生物质燃烧源是成都城区大气 PM_{2.5} 的重要来源。在全国生物质燃烧的污染物排放清单研究中,四川省的生物质燃烧活动(以燃料秸秆、薪柴和露天秸秆燃烧为主)所释放的 PM_{2.5} 量居全国首位(陆炳等, 2011)。这些都表

明生物质燃烧是成都乃至四川省的重要空气污染源。

第 3 种因子中,因子对 EC、Zn、Cu 和 Pb 等组分的相对贡献较大。燃料在机动车引擎的高温燃烧下可释放出大量的 EC(Huang *et al.*, 2006)。Zn 和 Cu 可来自于轮胎、刹车片和润滑油(唐孝炎等, 2006)。虽然政府自 2000 年起明令禁止添加 Pb 作为汽油中的抗爆剂,但原油中仍含有微量的 Pb,另外刹车磨损过程亦会产生 Pb 颗粒(Lough *et al.*, 2005)。因此,该因子较符合机动车源的排放特征。源解析结果显示,该类因子对成都 PM_{2.5} 的平均贡献率为 24.0%,其中在夏季的贡献率最高,达 38.9%。这可能是由于夏季较为频繁的降雨不仅抑制了扬尘的生成,且能减少周边生物质燃烧气溶胶对城区的影响,从而突显了城区机动车源排放的贡献。

第 4 种因子中,因子对 NH₄⁺、SO₄²⁻ 和 NO₃⁻ 的贡献率最大,由此可判断该因子属于二次硝酸盐和二次硫酸盐。该因子代表着成都城区及周边化石燃料燃烧(如机动车燃油等)和生物质燃烧活动产生的气态污染物通过光化学反应所形成的二次污染。源解析结果显示,该因子对 PM_{2.5} 在秋冬季的贡献率(均值为 40.2%)明显高于春夏季(21.7%)。这表明了成都秋冬季边界层稳定和降雨少等天气条件更加有利于二次污染的形成,进而使它成为秋冬季高 PM_{2.5} 浓度水平的重要因素。

第 5 种因子中,因子对 Mn、Fe、Cl⁻、Zn 和 Pb 等组分贡献较大,表明可能来自于制造工厂的工序过程,但该因子对 PM_{2.5} 的贡献率较低,年平均仅为 2.4%。

4 结论(Conclusions)

1) 成都城区大气 PM_{2.5} 平均质量浓度高达 165.1 μg·m⁻³, 远高于国家环境空气质量标准限值。PM_{2.5} 及其主要化学成分浓度水平呈现出秋冬季高于春夏季的季节变化特点,是污染源与天气条件的综合影响结果。

2) 成都城区大气 PM_{2.5} 中 OC 与 EC 各季节都呈现出显著的线性拟合关系,表明了碳气溶胶受燃烧源的重要影响。但 OC/EC 值在春季存在明显差异,表明春季受生物质燃烧的相对贡献可能更高。此外,水溶性二次离子总平均浓度为 62.8 μg·m⁻³, 占 PM_{2.5} 质量浓度的 38.0%, 是 PM_{2.5} 的主要组成部分。

3) 基于 PMF 模式方法,成都城区 PM_{2.5} 的来源

和贡献分别为:土壤尘及扬尘(14.3%)、生物质燃烧(28.0%)、机动车源(24.0%)、二次硝酸盐/硫酸盐(31.3%)和其它(2.4%)。就季节变化而言,生物质燃烧源贡献率在四个季节均维持在较高水平;土壤尘及扬尘的贡献率在春季显著提高;机动车源的贡献率在夏季中表现突出;而二次硝酸盐/硫酸盐的贡献率在秋冬季中则最为显著。

责任作者简介: 陶俊(1979—),男,博士,副研究员。主要的研究方向是大气环境与大气化学,已发表论文40余篇。

参考文献(References):

- Cao J J, Lee S C, Chow J C, *et al.* 2007. Spatial and seasonal distributions of carbonaceous aerosols over China [J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 112(D22): 1-9
- Duan F, Liu X, Yu T, *et al.* 2004. Identification and estimate of biomass burning contribution to the urban aerosol organic carbon concentrations in Beijing [J]. *Atmospheric Environment*, 38(9): 1275-1282
- Engling G, Lee J J, Tsai Y W, *et al.* 2009. Size-resolved anhydrosugar composition in smoke aerosol from controlled field burning of rice straw [J]. *Aerosol Science and Technology*, 43(7):662-672
- He K B, Yang F M, Ma Y L, *et al.* 2001. The characteristics of PM_{2.5} in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 35(29): 4959-4970
- Huang X F, Yu J Z, He L Y, *et al.* 2006. Size distribution characteristics of elemental carbon emitted from Chinese vehicles: Results of a tunnel study and atmospheric implications [J]. *Environmental Science & Technology*, 40(17):5355-5360
- Lai S C, Zou S C, Cao J J, *et al.* 2007. Characterizing ionic species in PM_{2.5} and PM₁₀ in four Pearl River Delta cities, South China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 19(8):939-947
- Lough G C, Schauer J J, Park J S, *et al.* 2005. Emissions of metals associated with motor vehicle roadways [J]. *Environmental Science & Technology*, 39(3):826-836
- 陆炳, 孔少飞, 韩斌, 等. 2011. 2007年中国大陆地区生物质燃烧排放污染物清单[J]. *中国环境科学*, 31(2):186-194
- Malm W C, Schichtel B A, Pitchford M L, *et al.* 2004. Spatial and monthly trends in speciated fine particle concentration in the United States [J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 109(D3): 1-13
- Pandis S N, Harley R A, Cass G R, *et al.* 1992. Secondary organic aerosol formation and transport [J]. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 26(13):2269-2282
- Polissar A V, Hopke P K, Poirot R L. 2001. Atmospheric aerosol over Vermont: Chemical composition and sources [J]. *Environmental Science & Technology*, 35(23):4604-4621
- Ramanathan V, Crutzen P J, Kiehl J T, *et al.* 2001. Atmosphere-Aerosols, climate, and the hydrological cycle [J]. *Science*, 294(5549):2119-2124
- Reff A, Eberly S I, Bhawe P V. 2007. Receptor modeling of ambient particulate matter data using positive matrix factorization: Review of existing methods [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 57(2):146-154
- Samet J M, Dominici F, Currier F C, *et al.* 2000. Fine particulate air pollution and mortality in 20 US Cities, 1987—1994 [J]. *New England Journal of Medicine*, 343(24):1742-1749
- Seinfeld J H, Pandis S N. 2006. *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change* [M]. New York: Wiley-Interscience
- 唐孝炎, 张远航, 邵敏. 2006. *大气环境化学* [M]. 北京: 高等教育出版社
- Tao J, Zhang L M, Engling G, *et al.* 2013a. Chemical composition of PM_{2.5} in an urban environment in Chengdu, China: Importance of springtime dust storms and biomass burning [J]. *Atmospheric Research*, 122:270-283
- Tao J, Cheng T T, Zhang R J, *et al.* 2013b. Chemical composition of PM_{2.5} at an urban site of Chengdu in southwestern China [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 30(4):1070-1084
- 陶俊, 柴发合, 朱李华, 等. 2011. 2009年春季成都城区碳气溶胶污染特征及其来源初探[J]. *环境科学学报*, 31(12):2756-2761
- Turpin B J, Huntzicker J J. 1995. Identification of secondary organic aerosol episodes and quantitation of primary and secondary organic aerosol concentrations during SCAQS [J]. *Atmospheric Environment*, 29(23):3527-3544
- Viana M, Kuhlbusch T A J, Querol X, *et al.* 2008. Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results [J]. *Journal of Aerosol Science*, 39(10):827-849
- Wang H L, Zhuang Y H, Wang Y, *et al.* 2008. Long-term monitoring and source apportionment of PM_{2.5}/PM₁₀ in Beijing, China [J]. *Journal of Environmental Sciences-China*, 20(11):1323-1327
- Wang Q Y, Cao J J, Shen Z X, *et al.* 2013. Chemical characteristics of PM_{2.5} during dust storms and air pollution events in Chengdu, China [J]. *Particuology*, 11(1):70-77
- Watson J G. 2002. Visibility: Science and regulation [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 52(6):628-713
- Watson J G, Chow J C, Houck J E. 2001. PM_{2.5} chemical source profiles for vehicle exhaust, vegetative burning, geological material, and coal burning in Northwestern Colorado during 1995 [J]. *Chemosphere*, 43(8):1141-1151
- 吴兑, 刘放汉, 梁延刚, 等. 2012. 粤港细粒子(PM_{2.5})污染导致能见度下降与灰霾天气形成的研究[J]. *环境科学学报*, 32(11):2660-2669
- Xu H M, Cao J J, Ho K F, *et al.* 2012. Lead concentrations in fine particulate matter after the phasing out of leaded gasoline in Xi'an, China [J]. *Atmospheric Environment*, 46:217-224
- Ye B M, Ji X L, Yang H Z, *et al.* 2003. Concentration and chemical composition of PM_{2.5} in Shanghai for a 1-year period [J]. *Atmospheric Environment*, 37(4):499-510
- Zhang T, Cao J J, Tie X X, *et al.* 2011. Water-soluble ions in atmospheric aerosols measured in Xi'an, China: Seasonal variations and sources [J]. *Atmospheric Research*, 102(1/2):110-119
- Zhao Q, He K, Rahn K A, *et al.* 2010. Dust storms come to Central and Southwestern China, too: implications from a major dust event in Chongqing [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(6):2615-2630
- 周敏, 陈长虹, 王红丽, 等. 2013. 上海秋季典型大气高污染过程中有机碳和元素碳的变化特征[J]. *环境科学学报*, 33(1):181-188