

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2020011501

王志勇, 薛丹, 贾鸿岩, 等. 天津滨海新区大气细颗粒物载带碳组分特征[J]. 环境化学, 2021, 40(6): 1871-1876.

WANG Zhiyong, XUE Dan, JIA Hongyan, et al. Characterization of Carbonaceous Aerosols at Binhai District, China[J]. Environmental Chemistry, 2021, 40 (6): 1871-1876.

天津滨海新区大气细颗粒物载带碳组分特征^{*}

王志勇¹ 薛丹² 贾鸿岩² 刘静² 毛天宇¹ 宋善军³ 李彭辉² **

(1. 交通运输部天津水运工程科学研究所, 天津, 300456; 2. 天津理工大学环境科学与安全工程学院, 天津, 300384;
3. 中国计量科学研究院, 北京, 100029)

摘要 为了研究天津滨海新区大气细颗粒物载带的碳组分浓度水平和来源, 于2017年7月在东疆海泽物流园设置了大气监测点, 采集PM_{2.5}样品。基于热光反射法(TOR), 测定PM_{2.5}中有机碳(OC)和元素碳(EC)的浓度水平、污染特征; 利用OC/EC比值法、相关分析法和浓度丰度法等方法对大气颗粒物中碳组分的可能来源等进行分析。结果表明, 监测期间滨海新区PM_{2.5}的平均质量浓度为84.65 μg·m⁻³, 高于国家二级标准限值(75 μg·m⁻³), 其中, OC和EC的平均浓度分别为21.03 μg·m⁻³和8.12 μg·m⁻³, 各占PM_{2.5}的26.2%和9.9%。本次研究样本OC/EC比值在2.07—3.53, 平均值为2.66, 表明滨海新区存在明显的二次污染, 二次有机碳(SOC)含量为4.23 μg·m⁻³, 占OC的20.1%; 对OC、EC进行相关性分析, 结果显示, 两者相关性较好($R=0.776$, $P<0.01$), 具有共同的一次来源; 基于浓度丰度法对PM_{2.5}中8种碳组分浓度进行分析对比, 结果显示滨海大气颗粒物中的碳组分主要来源为机动车排放的汽油尾气, 部分来源于燃煤和道路扬尘。

关键词 天津滨海新区, PM_{2.5}, 含碳气溶胶, 来源解析。

Characterization of Carbonaceous Aerosols at Binhai District, China

WANG Zhiyong¹ XUE Dan² JIA Hongyan² LIU Jing²
MAO Tianyu¹ SONG Shanjun³ LI Penghui² **

(1. Tianjin Research Institute for Water Transport Engineering, Tianjin, 300456, China; 2. School of Environmental Science and Safety Engineering, Tianjin University of Technology, Tianjin, 300384, China; 3. National Institute of Metrology, China, Beijing, 100029, China)

Abstract To understand the concentration and source characteristics of carbonaceous aerosols in Tianjin Binhai district, fine particle was collected in Dongjiang logistics park. OC and EC concentrations were analyzed by the IMPROVE thermal/optical reflectance (TOR) protocol. And emission sources of carbonaceous species were analyzed based on OC/EC ratio, pollutant concentration and correlation results. During the observation campaign, the average concentration of PM_{2.5} was 84.65 μg·m⁻³, higher than the Class 2 of PM_{2.5} standard (75 μg·m⁻³) in China. The average concentrations of organic carbon (OC) and element carbon (EC) in PM_{2.5} were 21.03 μg·m⁻³, and 8.12 μg·m⁻³, accounting for 26.2% and 9.9% of particulate mass, respectively. The OC/EC ratios varied from 2.07—3.53, with an average value of 2.66, indicating the contribution of secondary pollution in Binhai District. Secondary organic carbon (SOC) calculated based on minimum OC/EC

2020年1月15日收稿(Received: January 15, 2020).

* 天津市高等学校科技发展基金计划(2017KJ244)资助。

Supported by Tianjin Municipal Education Commission Research Project (2017KJ244).

** 通讯联系人 Corresponding author, Tel: 13512422516; E-mail: lipenghui406@163.com

ratio method was $4.23 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, accounting for 20.1% of OC. OC and EC were well related with each other ($R=0.776$, $P<0.01$), indicating they shared common emission sources. Based on the analysis of eight carbon fraction concentrations, vehicle emission was the predominant source of carbonaceous aerosols in Binhai District, while coal combustion and road dust had less contribution.

Keywords Tianjin Binhai district, $\text{PM}_{2.5}$, carbonaceous aerosols, source apportionment.

大气颗粒物(PM)是我国大气环境中的首要污染物,其化学组成受地区排放特征的影响而变化。在颗粒物载带的化学物质中,碳气溶胶是其中重要组成部分,一般占细颗粒浓度的10%—70%,包含有机碳(OC)和元素碳(EC)两部分。EC主要由燃烧等过程直接排放产生,OC既包含污染源直接排放产生的一次有机碳(POC),也包含由气粒转化产生的二次有机碳(SOC)^[1]。由于含碳气溶胶能够对气候变化、辐射平衡、公众健康产生潜在的影响,受到了研究者的持续关注^[2-3]。研究内容涉及碳气溶胶浓度变化、SOC贡献等内容,但是这些研究主要集中在发达城市地区,其他地区对于细颗粒物($\text{PM}_{2.5}$)载带碳组分特征的研究仍存在不足,同时SOC的浓度评估和形成机制研究仍需进行^[4]。

近年来,我国大气颗粒物污染已由煤炭型污染转变为复合型污染,汽车尾气的排放对于大气颗粒物的贡献显著增加,PM的污染特征发生持续的变化^[5]。本研究在天津市滨海新区设置采样点,分析 $\text{PM}_{2.5}$ 载带含碳气溶胶的浓度特征和来源。鉴于该区域受机动车尾气和船舶尾气排放的影响显著,评估大气酸度变化对SOC浓度水平的影响。研究结果为明确区域大气颗粒物载带碳组分的污染特征,探索SOC生成机制,制定颗粒物污染控制政策提供相关的基础研究支持。

1 材料与方法(Materials and methods)

1.1 采样地点与样品采集

本研究于2017年7月在天津滨海新区东疆海泽物流园设置颗粒物采样点,园区面积约 0.72 km^2 ,采样点在物流园中心位置屋顶处采集,周围无遮挡。该区域中工业排放较少,受机动车尾气和船舶排放的影响较为显著。应用德国康姆德润达中流量采样器采集 $\text{PM}_{2.5}$ 样品。采样期间连续采集样品,采集时间为23 h(早晨9:00至次日8:00),采样器运行流量为 $2.3 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$,每天获得 $\text{PM}_{2.5}$ 样品1个,共采集到 $\text{PM}_{2.5}$ 样品15个(含平行样本1个,空白样品2个)。采样期间为天津全年最热时期,平均温度 28.1°C ,相对湿度范围25%—95%,平均风速 $2.44 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 。

1.2 样品分析

样品分析采用美国沙漠研究所研制的DRI Model 2001A热光碳分析仪,利用热光反射法(TOR)分析样品中的OC、EC浓度水平及其含碳组分质量浓度。其原理是:在无氧的纯He条件下,颗粒物中的有机碳会在140、280、480、580℃下分别挥发后经催化氧化炉反应,生成 CO_2 的结果分别对应OC的4个组分,即OC1、OC2、OC3、OC4,然后再将该样品在含有2%(体积分数) O_2 的He环境下,分别于580、740、840℃的温度下逐步加热,生成 CO_2 的结果分别对应EC的3个组分,即EC1、EC2、EC3。以上两个阶段所生成的二氧化碳,在还原炉中经二氧化锰催化被还原为 CH_4 ,再由火焰离子化检测器(FID)进行定量检测。在无氧加热的环境下,部分OC转变为裂解碳(OPC),使用633 nm的He-Ne激光照射样品,可检测OPC的生成量并利用反射光强的变化指示出EC氧化的起始点,从而准确确定OC和EC的分离点^[6]。

根据IMPROVE分析协议,将OC、EC分别定义为: $\text{OC}=\text{OC1+OC2+OC3+OC4+OPC}$, $\text{EC}=\text{EC1+EC2+EC3-OPC}$ 。

1.3 质量控制和保证

在分析样品前,对样品炉进行烘焙,利用He/ CH_4 校准气体对系统空白进行测试。每五个分析样品间进行一次平行性分析测试,确保分析误差小于10%。样品空白为伴随样品运输过程的空白滤膜进行碳组分分析,分析结果低于仪器检出限。

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 PM_{2.5} 及其载带含碳组分浓度特征

观测期间,天津市滨海新区大气颗粒物PM_{2.5}含量及其载带碳组分的质量浓度特征列于表1。结果显示,监测期间该区域PM_{2.5}的平均质量浓度为84.65 μg·m⁻³,高于国家在《环境空气质量标准》(GB 3095—2012)中规定的PM_{2.5}24 h平均质量浓度二级标准限值(75 μg·m⁻³)。其中,OC的平均质量浓度为21.03 μg·m⁻³,EC的平均质量浓度为8.12 μg·m⁻³,各占PM_{2.5}含量的26.2%、9.9%,TC(OC与EC之和)的平均质量浓度为29.15 μg·m⁻³,占PM_{2.5}的36.0%;OC质量浓度是EC的2.59倍,占TC含量的72%。

表1 PM_{2.5} 中 TC、OC、EC 的含量(μg·m⁻³)及其占比

Table 1 The concentration (μg·m⁻³) and proportion of TC, OC and EC in PM_{2.5}

	PM _{2.5}	TC	OC	EC	TC/PM _{2.5}	OC/PM _{2.5}	EC/PM _{2.5}
均值	84.65	29.15	21.03	8.12	36.00%	26.20%	9.90%
最小值	30.74	15.60	11.39	4.06	16.80%	12.30%	4.50%
最大值	92.65	44.00	33.81	12.31	59.80%	46.60%	14.40%

将本研究的观测结果与近10年国内其他地区(表2)的报道值相比较,结果显示滨海新区OC含量仅低于重庆,高于北京、上海、济南、武汉等城市,EC低于南京,但高于其他城市;OC/PM_{2.5}的值与广州地区相近,但明显高于其他城市,EC/PM_{2.5}稍低于广州、南京,高于其他城市^[7-13]。与天津市区2016年的数据相比,滨海新区在表中的各含碳水平的均高于市区,OC含量相差最大,为市区的2.8倍^[14]。

表2 不同城市PM_{2.5} 及其OC、EC、OC/EC 对比

Table 2 Comparison of OC, EC and OC/EC in different cities

城市Site	采样时间Sampling period	PM _{2.5} /(μg·m ⁻³)	OC/(μg·m ⁻³)	OC/PM _{2.5}	EC/(μg·m ⁻³)	EC/PM _{2.5}
北京 ^[7]	2014.6—2014.7	69.0±47.9	10.91±3.95	15.8%	1.67±0.64	2.4%
上海 ^[8]	2009.7	58.87±20.04	11.37±4.12	19.3%	3.68±1.27	6.3%
济南 ^[9]	2010.1—2011.1	115.12	16.98±10.31	14.75%	5.81±2.82	5.05%
武汉 ^[10]	2011.7—2012.2	127±48.7	19.4±10.5	15.3%	2.9±1.48	2.3%
南京 ^[11]	2007.6—2008.5	98.8	15.7	15.9%	10.4	10.5%
广州 ^[12]	2008.7	53.7±23.2	14.0±5.6	26.1%	4.7±2.2	10.1%
重庆 ^[13]	2012.3—2013.2	125.5±62.9	27.1	21.6%	7.01	6.72%
天津市区 ^[14]	2016.8—2016.9	64.10	7.5±3	11.7%	4.0±1.8	6.1%
本研究	2017.7	84.65	21.03	26.2%	8.12	9.9%

总碳质气溶胶(TCA)是指大气中的总含碳组分,环境空气颗粒物中的总有机物(organic matter, OM)含量通常用OC转化成的OM来估算,因此,国内外的研究多以此公式来估算TCA的含量^[15]:

$$\text{TCA} = 1.6\text{OC} + \text{EC} \quad (1)$$

据此计算,滨海新区TCA的含量为41.76 μg·m⁻³,占PM_{2.5}的49.3%,说明碳质气溶胶是滨海新区大气气溶胶的重要组成部分。

2.2 二次有机碳评估

在国内外研究中,OC/EC浓度比值通常被认为是判断二次有机碳生成的依据,Chow等研究认为,当OC/EC>2时可认为存在二次污染^[16]。本研究样品的OC/EC比值在2.07—3.53间,平均值为2.66,说明滨海新区存在明显的二次碳贡献。与其他城市研究结果相比(表3),滨海新区OC/EC观测值高于南京、天津市区报出值,低于其他城市^[7-14]。

表3 不同城市OC/EC对比

Table 3 OC/EC ratios observed in different cities

城市 Site	北京 ^[7] Beijing	上海 ^[8] Shanghai	济南 ^[9] Jinan	武汉 ^[10] Wuhan	南京 ^[11] Nanjing	广州 ^[12] Guangzhou	重庆 ^[13] Chongqing	天津市区 ^[14] Tianjin	本研究 This study
OC/EC	7.6	3.2	2.9	6.7	1.5	3	3.4	1.9	2.66

由于目前尚无直接测定大气颗粒物中二次有机碳含量的方法,国内外研究多采用OC/EC示踪比值法对二次有机碳浓度水平进行定量描述^[17]。Castro^[18]和Turpin^[15]研究提出了经验公式,其估算公式如下:

$$SOC = OC_{toc} - EC \times (OC/EC)_{min} \quad (2)$$

其中, SOC—二次有机碳含量($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$); OC_{toc}—有机碳含量($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$); EC—元素碳($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$); (OC/EC)_{min}—监测期间OC/EC所观测到的最小比值,无量纲。采样期间,OC/EC的最小比值为2.07,据此计算,SOC为 $4.23 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,占OC的20.1%。

对于SOC的形成机制一直是研究的热点,研究表明大气环境的酸度水平可能对SOC的生成产生影响^[19]。本研究通过收集采样期间大气环境的温度、湿度数据,运用Extended AIM Aerosol Thermodynamics Model大气无机热力学模型计算采样点颗粒物的酸度水平。应用数理统计软件(SPSS 22.0)对滨海新区大气颗粒物中SOC与酸度数据进行相关性分析,R为皮尔逊相关系数,当 $|R| \geq 0.8$ 时,可以认为两变量间高度相关; $0.8 > |R| \geq 0.5$ 时,可以认为两变量中度相关; $0.5 > |R| \geq 0.3$ 时,可以认为两变量低度相关; $|R| < 0.3$ 说明相关程度弱,基本不相关^[20]。结果如图1所示,SOC含量与酸度有显著的负相关($R=-0.802$, $P<0.01$),这与Li等^[21]在对庐山夏季大气颗粒物的研究结果相反。Li等^[21]的研究表明,由于受异质酸催化反应的影响,SOC的浓度变化与酸度呈显著正相关;然而Peltier等^[22]和Rengarajan等^[23]在Atlanta和印度西部夏季的研究结果表明,由于夏季大气颗粒物受酸度影响不明显,酸度对SOC的生成没有显著贡献。上述研究结果的差异可能受到其他因素的影响,例如,在黄炯丽等的研究中发现,SOC的含量在一定程度上受风速、气温和相对湿度等气象条件的影响,这些因素可能和酸度一起共同作用于SOC的生成^[24]。因此在后续的研究中,除了考虑大气酸度,也要综合考虑气象条件的不同对SOC形成机制的影响。

2.3 含碳气溶胶来源分析

Turpin等研究认为,大气颗粒物中的相关性研究是对碳质气溶胶进行来源解析的重要依据^[15]。目前国内研究常利用OC与EC的相关性来对各含碳组分的来源进行近似定性分析,通过研究OC、EC浓度水平的相关性,可以区分颗粒物中碳质气溶胶的来源^[25]。如果两者的相关性较好,表明其存在相似或者一致的污染来源;但若两者有较高的相关系数但OC/EC值波动较大,这可能是因为受到多个混合源的影响。应用数理统计软件(SPSS 22.0)对滨海新区PM_{2.5}中OC、EC进行相关性分析,图2为本研究相关性分析图, $R=0.776$ ($P<0.01$),表明滨海新区PM_{2.5}中OC、EC中度相关,具有共同的排放来源。

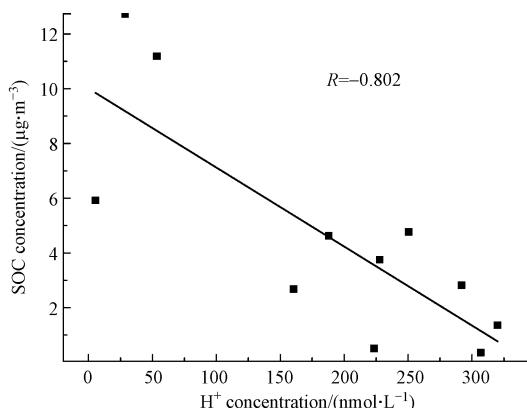


图1 SOC与酸度相关性散点图

Fig.1 The correlation between SOC and acidity

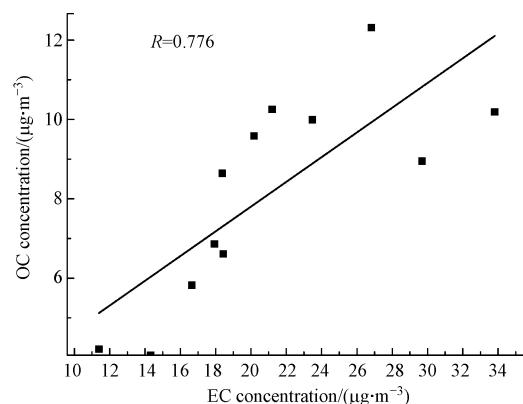


图2 OC、EC相关性

Fig.2 The correlation between OC and EC

滨海大气颗粒物 $\text{PM}_{2.5}$ 中 8 个碳组分的含量列于表 4。由表 4 可见, OC、EC 各碳组分排列顺序为: EC1>OC2>OC3>OPC>OC4>OC1>EC2>EC3, 其中, EC1 的含量最高, 为 $12.30 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; OC2、OC3 的含量次之, 分别为 $5.29 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $5.01 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; EC2、EC3 的含量最低, 均不足 $0.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别为 $0.45 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.08 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

表 4 OC、EC 各组分含量($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)

Table 4 The concentration of individual OC and EC compound ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)

	OC1	OC2	OC3	OC4	EC1	EC2	EC3	OPC
平均值	1.74	5.29	5.01	4.29	12.30	0.45	0.08	4.70
最小值	0.63	3.13	3.12	2.44	4.68	0.00	0.00	1.63
最大值	3.07	7.29	6.74	6.68	19.85	1.00	0.44	10.15

相关研究表明, OC、EC 中 8 种碳组分代表了不同的排放源, 由各组分含量的大小可以在一定程度上解释该颗粒物的来源^[26]。其中, OC1 和 OC2 分别是生物质燃烧源的特征组分和燃煤源排放的特征组分, EC1 为机动车汽油排放的特征组分, EC2 和 EC3 则表征柴油汽车排放的特征组分。由于不同地点使用不同方法进行源解析的相关分析, 不同文献对 OC3、OC4 和 OPC 的来源分类有所偏差, OC3 和 OC4 可能为机动车汽油排放、燃煤源排放或者道路扬尘的特征组分, OPC 可能是生物质燃烧源或者机动车汽油排放的特征组分^[27~28]。根据表 4 列出的滨海新区 8 种碳组分含量, 说明滨海大气颗粒物 $\text{PM}_{2.5}$ 载带的碳组分主要来源为机动车排放的汽油尾气, 部分来源于燃煤和道路扬尘。

3 结论(Conclusion)

(1) 监测期间, 天津滨海新区大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中 TCA 的含量占 $\text{PM}_{2.5}$ 的 49.3%, $\text{PM}_{2.5}$ 的平均质量浓度为 $84.65 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 即高于《环境空气质量标准》(GB 3095—2012)中 $\text{PM}_{2.5}$ 的 24 h 平均质量浓度二级标准限值($75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$); OC 的平均质量浓度为 $21.03 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 $\text{PM}_{2.5}$ 的 26.2%; EC 的平均质量浓度为 $8.12 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 $\text{PM}_{2.5}$ 的 9.9%。

(2) OC/EC 平均值为 2.66, 该地区存在二次污染, 通过 OC/EC 最小比值法计算得出 SOC 为 $4.23 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 OC 的 20.1%; SOC 浓度水平与大气酸度呈显著负相关。

(3) 应用相关分析法, 得出滨海新区 $\text{PM}_{2.5}$ 中 OC、EC 浓度水平具有较好的相关性($R=0.776$, $P<0.01$), 表明元素碳和有机碳具有共同的一次来源; 基于浓度丰度法, 通过对 OC 和 EC 各组分的质量浓度进行比较, 发现滨海新区大气颗粒物 $\text{PM}_{2.5}$ 载带的碳组分主要来源为机动车排放的汽油尾气, 部分来源于燃煤排放和道路扬尘。

参考文献(References)

- [1] SAFAI P D, RAJU M P, RAO P S P, et al. Characterization of carbonaceous aerosols over the urban tropical location and a new approach to evaluate their climatic importance [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, 92: 493-500.
- [2] CAPPÀ C D, ONASCH T B, MASSOLI P, et al. Radiative absorption enhancements due to the mixing state of atmospheric black carbon [J]. *Science*, 2013, 337(6098): 1078-1081.
- [3] XU J, WANG Q Z, DENG C R, et al. Insights into the characteristics and sources of primary and secondary organic carbon: High time resolution observation in urban Shanghai [J]. *Environmental Pollution*, 2018, 233: 1177-1187.
- [4] GRIVAS G, CHERISTANIDIS S, CHALOULAKOU A. Elemental and organic carbon in the urban environment of Athens. Seasonal and diurnal variations and estimates of secondary organic carbon [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 414: 535-545.
- [5] 吕连宏, 韩霄, 罗宏, 等. 煤炭消费与大气污染影响下的燃煤火电分区发展策略 [J]. 环境科学研究, 2016, 29(1): 1-11.
LV L H, HAN X, LUO H, et al. Coal consumption and air pollution under the influence of coal power zoning development strategy [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2016, 29(1): 1-11 (in Chinese).
- [6] ZHANG J, TONG L, HUANG Z, et al. Seasonal variation and size distributions of water-soluble inorganic ions and carbonaceous aerosols at a coastal site in Ningbo, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 639: 793-803.
- [7] 安欣欣, 张大伟, 冯鹏, 等. 北京城区夏季 $\text{PM}_{2.5}$ 中碳组分和二次水溶性无机离子浓度特征 [J]. *环境化学*, 2016, 35(4): 713-

720.

AN X X, ZHANG D W, FENG P, et al. Characteristics of carbonaceous species and secondary water-soluble inorganic ion concentration of PM_{2.5} in Beijing urban area in summer [J]. *Environmental Chemistry*, 2016, 35(4): 713-720 (in Chinese).

- [8] 黄众思, 修光利, 朱梦雅, 等. 上海市夏冬两季PM_{2.5}中碳组分污染特征及来源解析 [J]. *环境科学与技术*, 2014, 37(4): 124-129.

HUANG Z S, XIU G L, ZHU M Y, et al. Pollution characteristics and source apportionment of carbonaceous species in PM_{2.5} in summer and winter in Shanghai [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 37(4): 124-129 (in Chinese).

- [9] 韩道汶, 王思晴, 安伟. 济南市环境空气中PM_{2.5}的碳组成与特征分析 [J]. *中国环境管理干部学院学报*, 2012, 22(4): 42-44.
HAN D W, WANG S Q, AN W. Analysis of carbon composition and characteristics of PM_{2.5} in ambient air of Jinan City [J]. *Journal of Environmental Management College of China*, 2012, 22(4): 42-44 (in Chinese).

- [10] 成海容, 王祖武, 冯家良, 等. 武汉市城区大气PM_{2.5}的碳组分与源解析 [J]. *生态环境学报*, 2012, 9: 1574-1579.
CHENG H R, WANG Z W, FENG J L, et al. Carbon composition and source apportionment of PM_{2.5} in urban air of Wuhan City [J]. *Ecology and Environment*, 2012, 9: 1574-1579 (in Chinese).

- [11] 陈魁, 银燕, 魏玉香, 等. 南京大气PM_{2.5}中碳组分观测分析 [J]. *中国环境科学*, 2010, 30(8): 1015-1020.
CHEN K, YIN Y, WEI Y X, et al. Observation and analysis of carbon components in PM_{2.5} in Nanjing atmosphere [J]. *China Environmental Science*, 2010, 30(8): 1015-1020 (in Chinese).

- [12] 朱李华, 陶俊, 张仁健, 等. 冬夏季广州城区碳气溶胶特征及其与O₃和气象条件的关联 [J]. *环境科学学报*, 2010, 30(10): 1942-1949.

ZHU L H, TAO J, ZHANG R J, et al. Characteristics of carbonaceous aerosols and their correlation with O₃ and meteorological conditions in Guangzhou urban areas in winter and summer [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2010, 30(10): 1942-1949 (in Chinese).

- [13] 张灿, 周志恩, 翟崇治, 等. 重庆城区不同粒径大气颗粒物中碳组分特征 [C]. *中国环境科学学会学术年会论文集*, 2015, 3663-3670.

ZHANG C, ZHOU Z E, ZHAI C Z, et al. Characteristics of carbon components in atmospheric particulates with different particle sizes in Chongqing urban area [C]. *Chinese Society for Environmental Sciences*, 2015, 3663-3670 (in Chinese).

- [14] 程渊, 刘保双, 毕晓辉, 等. 天津市区夏冬季环境空气PM_{2.5}中碳组分污染特征及来源研究 [J]. *环境科学学报*, 2018, 38(9): 3394-3405.

CHENG Y, LIU B S, BI X H, et al. Study on pollution characteristics and sources of carbonaceous species in PM_{2.5} ambient air in Tianjin urban area in summer and winter [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, 38(9): 3394-3405 (in Chinese).

- [15] TURPIN B J, LIM H-J. Species contributions to PM_{2.5} mass concentrations: revisiting common assumptions for estimating organic mass [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2001, 35: 602-610.

- [16] CHOW J C, WATSON J G, LU Z, et al. Descriptive analysis of PM_{2.5} and PM₁₀ at regionally representative locations during SJVAQS/AUSPEX [J]. *Atmospheric Environment*, 1996, 30(12): 2079-2112.

- [17] CUI H, MAO P, ZHAO Y, et al. Patterns in atmospheric carbonaceous aerosols in China: Emission estimates and observed concentrations [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(15): 8657-8678.

- [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] ZHOU Y, XUE L, WANG T, et al. Characterization of aerosol acidity at a high mountain site in central eastern China [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 51(5): 11-20.

- [20] 吴瑞林, 王建中, 袁克海. 多分格相关与皮尔逊相关的蒙特卡罗仿真 [J]. *北京航空航天大学学报*, 2009, 35(12): 1507-1510.
WU R L, WANG J Z, YUAN K H. Monte carlo simulation of multi-lattice correlation and Pearson correlation [J]. *Journal of Beijing University of Aeronautics and Astronautics*, 2009, 35(12): 1507-1510 (in Chinese).

- [21] LI P H, WANG Y, LI T, et al. Characterization of carbonaceous aerosols at Mount Lu in South China: Implication for secondary organic carbon formation and long-range transport [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, 22(18): 14189-14199.

- [22] PELTIER R E, SULLIVAN A P, WEBER R J, et al. No evidence for acid-catalyzed secondary organic aerosol formation in power-plant plumes over metropolitan Atlanta, Georgia [J]. *Geophysical Research Letters*, 2015, 34(6): L06801.

- [23] RENGARAJAN R, SUDHEER A K, SARIN M M. Aerosol acidity and secondary organic aerosol formation during wintertime over urban environment in western India [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, 45(11): 1940-1945.

- [24] 黄炯丽, 陈志明, 莫招育, 等. 广西玉林市大气PM₁₀和PM_{2.5}中有机碳和元素碳污染特征分析 [J]. *环境科学*, 2018, 39(1): 27-37.

HUANG J L, CHEN Z M, MO Z Y, et al. Pollution characteristics analysis of organic and elemental carbon in atmospheric PM₁₀ and PM_{2.5} in Yulin City, Guangxi Province [J]. *Environmental Science*, 2018, 39(1): 27-37 (in Chinese).

- [25] ZHAO P S, DONG F, YANG Y D, et al. Characteristics of carbonaceous aerosol in the region of Beijing, Tianjin, and Hebei, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 71: 389-398.

- [26] FENG J L, YU H, SU X F, et al. Chemical composition and source apportionment of PM_{2.5} during Chinese Spring Festival at Xinxiang, a heavily polluted city in North China: Fireworks and health risks [J]. *Atmospheric Research*, 2016, 182: 176-188.

- [27] CAO J J, WU F, CHOW J C, et al. Characterization and source apportionment of atmospheric organic and elemental carbon during fall and winter of 2003 in Xi'an, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2005, 5: 3127-3137.

- [28] LIU B S, ZHANG J Y, WANG L, et al. Characteristics and sources of the fine carbonaceous aerosols in Haikou, China [J]. *Atmospheric Research*, 2018, 199: 103-112.