

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2021122004

胡偲豪, 吴春苗, 高娜娜, 等. 邯郸市微米细气溶胶粒子来源解析及其对重污染的贡献[J]. 环境化学, 2023, 42(6): 1876-1885.

HU Sihao, WU Chunmiao, GAO Nana, et al. Source analysis of micron fine aerosol particles and their contribution to heavy pollution in Handan City[J]. Environmental Chemistry, 2023, 42(6): 1876-1885.

邯郸市微米细气溶胶粒子来源解析及其对重污染的贡献*

胡偲豪¹ 吴春苗¹ 高娜娜¹ 张崇崇¹ 胡伟² 王金喜¹
樊景森¹ 岳亮³ 牛红亚^{1**}

(1. 河北工程大学地球科学与工程学院, 邯郸, 056038; 2. 天津大学地球系统科学学院, 天津, 300072;
3. 河北省邯郸生态环境监测中心, 邯郸, 056001)

摘要 灰霾污染在我国具有规模大、持续时间长、发生频率高的特点, 其负面影响主要与不同粒径颗粒物的含量、组成和分布有关, 因此受到越来越多的关注. 微米气溶胶粒子 (PM_1) 因为具有更大的比表面积, 所以在化学成分、大气寿命、生态气候和健康影响方面表现出与其他颗粒物相异的特征, 因此受到了广大学者的关注. 邯郸作为典型的大气气溶胶重污染城市, 研究其微米气溶胶粒子的来源、形成和贡献对加深认识理解大气污染及城市空气质量治理方针政策的制定都能提供科学依据. 本文基于2019年1月邯郸市 $PM_{2.5}$ 和 PM_1 离子浓度数据, 通过正定矩阵因子模型 (PMF) 源解析方法对其进行来源分析, 并结合后向轨迹聚类分析法和潜在来源贡献函数法 (PSCF) 研究邯郸市大气颗粒物的输送路径及潜在源. 结果表明, 研究期间 PM_1 和 $PM_{2.5}$ 的平均质量浓度分别达到 $94.94 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $164.50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 其中 $PM_1/PM_{2.5}$ 的比值范围为 45.20%—79.81%. 相较于 $PM_{2.5}$, 二次无机气溶胶 (SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+) 在 PM_1 中的占比 (43.88%) 更高; PM_1 中占比更高的二次无机气溶胶和典型无机元素表明人为因素所排放的污染物在较小粒径的颗粒物中更易积累. PMF 分析确定了 PM_1 和 $PM_{2.5}$ 的 6 个来源. 它们分别是二次污染物、交通源、工业源、生物质燃烧、扬尘源和燃煤源; 其在 PM_1 中的贡献率分别为 36.1%、7.9%、20.8%、6.8%、4.7% 和 23.8%; 其在 $PM_{2.5}$ 中的贡献率分别为 32.7%、11.8%、16.0%、13.7%、5.0% 和 20.8%. 后向轨迹和化学组分分析结果表明冬季生物质燃烧和施肥对 PM_1 的潜在贡献. 潜在源分析表明邯郸市冬季重污染过程的产生是由西北部长—短气流传输共同作用的结果.

关键词 细颗粒物, 化学组分, PMF, PSCF, 邯郸市.

Source analysis of micron fine aerosol particles and their contribution to heavy pollution in Handan City

HU Sihao¹ WU Chunmiao¹ GAO Nana¹ ZHANG Chongchong¹ HU Wei²
WANG Jinxi¹ FAN Jingsen¹ YUE Liang³ NIU Hongya^{1**}

(1. School of Earth Science and Engineering, Hebei University of Engineering, Handan, 056038, China; 2. School of Earth System Science, Tianjin University, Tianjin, 300072, China; 3. Ecological Environment Monitoring Center of Handan City,

2021年12月20日收稿(Received: December 20, 2021).

* 国家自然科学基金(41807305), 河北省自然科学基金(D2021402004), 河北省杰出青年科学基金(D2018402149), 大气重污染成因与治理攻关项目(DQGG202110)和河北省化工行业挥发性有机物检测与治理技术创新中心开放课题(ZXJJ20210402)资助.

Supported by National Natural Science Foundation of China (41807305), Natural Science Foundation of Hebei Province (D2021402004), Science Foundation for Distinguished Young Scholars of Hebei Province (D2018402149), the Causes and Treatment of Heavy Air Pollution Project (DQGG202110) and the Open Project of Hebei Chemical Industry Volatile Organic Compounds Detection and Treatment Technology Innovation Center (ZXJJ20210402).

** 通信联系人 **Corresponding author**, Tel: 13663100796, E-mail: niuhongya@126.com

Handan, 056001, China)

Abstract Haze pollution in China has the characteristics of large scale, long duration and high frequency, and its negative effects are mainly related to the content, composition and distribution of particles with different particle sizes, so it has attracted more and more attention. Micron aerosol particles (PM_{10}) have attracted the attention of many scholars because they are different from other particles in terms of chemical composition, atmospheric life, ecological climate and health effects due to their larger specific surface area. Handan is a typical city with heavy atmospheric aerosol pollution. The study on the source, formation and contribution of micron aerosol particles can provide scientific basis for the further understanding of air pollution and the formulation of urban air quality control policies. Based on the ion concentration data of $PM_{2.5}$ and PM_{10} in Handan city in January 2019, positive matrix factorization (PMF), backward trajectories and a potential source contribution function (PSCF) model were used to identify the source categories and source areas of PM_{10} and $PM_{2.5}$. The results showed that the average mass concentration of PM_{10} and $PM_{2.5}$ reached $94.94 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ and $164.50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, respectively, and the ratio of $PM_{10}/PM_{2.5}$ ranged from 45.20% to 79.81%. Compared with $PM_{2.5}$, secondary inorganic aerosols (SO_4^{2-} , NO_3^- and NH_4^+) accounted for a higher proportion (43.88%) in PM_{10} . The higher proportion of secondary inorganic aerosols and typical inorganic elements in PM_{10} indicated that the pollutants emitted by human factors are easier to accumulate in the particles with smaller particle size. PMF analysis identified six sources of PM_{10} and $PM_{2.5}$. They were secondary pollutants, vehicle, industrial, biomass burning, dust and coal combustion, accounting for 36.1%, 7.9%, 20.8%, 6.8%, 4.7% and 23.8% of PM_{10} , respectively, and for 32.7%, 11.8%, 16.0%, 13.7%, 5.0% and 20.8% of $PM_{2.5}$, respectively. The backward trajectory and chemical composition analysis indicated the potential contribution of biomass combustion and fertilization to PM_{10} in winter. The potential source analysis showed that the heavy pollution process in Handan city in winter was the result of the long and short air transport in northwest China.

Keywords micron particulate matter, chemical composition, PMF, PSCF, Handan.

细颗粒物是一种重要的大气污染物, 它对于空气质量, 人体健康, 大气能见度和气候变化有着极其重要的影响^[1-4]. 中国正在遭受着严重的 $PM_{2.5}$ (空气动力学中当量直径 $< 2.5 \mu\text{m}$) 污染的影响, 特别是我国北方一些典型的重工业城市. 因此, $PM_{2.5}$ 在最近的研究中受到了学者们广泛的关注. PM_{10} (空气动力学中当量直径 $< 10 \mu\text{m}$) 作为一种比 $PM_{2.5}$ 还小的颗粒物, 它在影响气候变化, 能见度下降以及人类身体健康方面产生了更为显著的作用. 然而, 与 $PM_{2.5}$ 相比, PM_{10} 受到的关注却少之又少. 因此, 研究 PM_{10} 的化学组分和来源, 对于进一步总结其对环境、健康和气候的影响, 有效缓解 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 污染是十分必要的. 目前, 部分学者基于在线监测的手段, 对北京市 PM_{10} 的污染特征进行了研究. 例如, Sun 等^[5] 通过测量北京市的 NR- PM_{10} (非难熔微米气溶胶), 总结出 NR- PM_{10} 的日变化规律. Wang 等^[6] 通过采集北京市 10—12 月的 NR- PM_{10} 样品, 利用气溶胶化学组分监测进行实时监测, 说明了铵盐对颗粒物消减做出极大的贡献. 但是国内外的学者们目前主要关注点仍然集中在 $PM_{2.5}$ 的相应的研究上, 且该类研究多集中在各国首都, 省会城市, 对于中小型城市, 尤其是在我国饱受大气污染的华北平原的重工业城市的关注力度不足.

目前, 绝大多数学者都选择受体模型判别细颗粒物的来源与贡献, 主要包括 PMF 源解析法, 主成分分析法 (PCA) 和化学质量平衡模型 (CMB). 如赵清等^[7] 通过 PMF 源解析法, 解析出运城市灰霾暴发主要是受到二次相关源、燃煤源、交通源与生物质燃烧及二次有机物共同作用的影响; 任秀龙等^[8] 根据 PCA 模型源解析结果说明了邯郸市 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 主要的来源是二次源、工业源、机动车源和生物质燃烧源; Skiles 等^[9] 利用 CMB 模型解析出美国加利福尼亚州圣华金河谷的 $PM_{2.5}$ 的有机碳主要来自移动源、生物质燃烧、二次有机碳、植物碎屑和油烟.

邯郸市作为我国华北平原的典型重工业城市之一,位于京津冀“2+26”大气污染传输通道之中,复杂的地理条件和人为活动的影响使得该地区成为全国大气污染严重城市之一^[10]。目前,对于邯郸市大气颗粒物污染的研究主要集中在 PM_{2.5} 上,例如,薛凡利等^[11]研究了 2017 年邯郸市 PM_{2.5} 中碳组分的污染特征并对其来源进行了分析。关攀博等^[12]分析了邯郸市 PM_{2.5} 中组分浓度的变化特征。刘召策等^[13]对邯郸市 PM_{2.5} 中主要的化学组分及其光学特性进行了分析。但是对于邯郸市 PM₁ 相关方面的研究少之又少。为了得到邯郸市微米细气溶胶粒子的来源、形成和贡献,为邯郸市大气污染治理方针政策的制定提供科学依据,本文在对邯郸市 2018 年冬季 PM_{2.5} 和 PM₁ 同时观察的基础上,研究邯郸市重污染期间 PM_{2.5} 和 PM₁ 的化学组分特征及其驱动因素。

本文以华北平原典型重工业城市邯郸市为研究对象,利用后向轨迹聚类分析法、PMF 以及 PSCF 法,分析邯郸市细颗粒物质量浓度的变化规律,化学组分特征及来源,探究影响邯郸市细颗粒物的主要输送路径和潜在源区,为有效控制邯郸市大气污染和开展区域联防治理提供科学的理论指导。

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 采样点概况

邯郸市采样点设置在(36.57°N, 114.50°E)位于河北工程大学老校区,距地面高约 16 m,该采样点接近城市中心地带,周围被居民区包围,附近无工业厂房与高大建筑物,是国家控制采样点,可代表邯郸市城市大气环境。

1.2 样品的采集及分析

本研究采用多通道大气颗粒物采样器(Unray ZR-3930D 型)采集大气 PM_{2.5} 样品,PM₁ 样品使用 PM₁ 颗粒物采样器(TE-Wilbur 型, TISCH, USA)采集。PM_{2.5} 和 PM₁ 样品都使用 47 mm 的 Teflon 膜进行样品采集,采样时间为 2019 年 1 月 5 日—1 月 16 日,每日早晚采集两次样品,分别为 8:00—19:30, 20:00—次日 7:30。采样后 Teflon 膜在冰箱中(-18 °C)冷冻保存。使用精度 0.01 mg 的电子天平(XS205dualrange)进行称重,称重前需将采样膜在恒温箱(温度(25±0.5)°C,湿度(30±5)%)中平衡 24 h 以上。为保证采集样品数据的可靠性,分别在采样开始和结束时分别采集空白样。

分析水溶性离子时,剪下 Teflon 膜的一半放入离心管中,取 20 mL 去离子水,超声振荡 1 h,静置后过滤。随后使用离子色谱分析仪(ICS-600, Dionex, Thermo)分析 PM_{2.5} 和 PM₁ 样品中的 8 种水溶性离子: Cl⁻、SO₄²⁻、NO₃⁻、Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺和 Ca²⁺。无机元素分析:使用 ICP-MS(Agilent7500a)测定 PM_{2.5} 和 PM₁ 中的金属元素。为保证实验精度,每进行 5 组样品测量后,进行一次平行样检验。具体实验方法见参考文献 [14]。

1.3 PMF 分析

PMF 是一种有效的源分配受体模型,将样本数据矩阵分解为 2 个矩阵:源贡献矩阵 G 和源廓线矩阵 F,本研究采用 EPA-PMF5.0 版确定了 PM₁ 和 PM_{2.5} 的来源类型^[15]。用矩阵形式表示如公式(1)^[16]:

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

式中, X_{ij} 是第 i 个样品中第 j 个物种的浓度, g_{ik} 是第 i 个样品中第 k 个因子的贡献, f_{kj} 是第 j 个物种在第 k 个因子中的因子分布, e_{ij} 是第 i 个样品中测得的第 j 个物种的残差矩阵。

1.4 后向轨迹聚类分析

聚类分析是根据指标样本的相似性、亲疏程度,用数学方法将它们进行分型划类,最后得到一个能反映群体之间亲疏程度的分类系统。后向轨迹聚类则是根据气团轨迹的传输速度和方向等特征,对所有到达模式受点的气团轨迹进行分型聚类,以判断受点不同时间段主导气流方向和污染物潜在来源^[17]。本文利用 MeteoInfo 软件以及 NCEP 系统提供的全球同化数据模拟邯郸市 2018 年 1 月 5 日到 2018 年 1 月 16 日气团后向轨迹,轨迹计算起始高度为 500 m。将研究区域按 0.5° × 0.5° 划分网格,每日从 00:00 开始,计算逐小时到达邯郸市的气团后向轨迹,轨迹向后推延的时间为 48 h。

1.5 PSCF 分析

潜在源贡献(PSCF)分析法是一种基于气流轨迹分析来识别污染源区的方法^[18], 本文利用此方法来确定影响邯郸大气颗粒物的潜在污染源区. PSCF 值为所选研究区域内经过网格 ij 的污染轨迹数 M_{ij} 与经过该网格的所有轨迹数 N_{ij} 的比值^[19-20], PSCF _{ij} 的计算公式如式(2):

$$\text{PSCF}_{ij} = M_{ij}/N_{ij} \quad (2)$$

式中, N_{ij} 为落入 ij 单元内的端点数量, M_{ij} 为同一单元内源贡献值高于任意设置的阈值的端点数量.

本文取 PM_{2.5} 的日平均值二级标准值作为判断污染轨迹的标准, 即经过某网格的气团轨迹到达邯郸时对应的颗粒物浓度超过日平均二级标准值时则认为该轨迹为污染轨迹, 反之则为清洁轨迹. 由于 PSCF 是一个概率, 那么分母越小, PSCF _{ij} 就越具有不确定性, 从而引入了权重函数 W_{ij} , 对 PSCF _{ij} 进行加权计算^[21-22], 加权 PSCF _{ij} 记作 WPSCF, 计算见式(3), W_{ij} 的计算见式(4):

$$\text{WPSCF}_{ij} = \text{PSCF}_{ij} \times W_{ij} \quad (3)$$

其中本文参考文献^[23-24], 使用以下权重函数:

$$W_{ij} = \begin{cases} 1.00, & 80 < N_{ij} \\ 0.70, & 20 < N_{ij} \leq 80 \\ 0.42, & 10 < N_{ij} \leq 20 \\ 0.05, & N_{ij} \leq 10 \end{cases} \quad (4)$$

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 PM_{2.5} 和 PM₁ 的化学组分及其质量浓度

本研究共分析邯郸市 PM₁ 和 PM_{2.5} 的 24 份样品, 如表 1 所示, PM₁ 的质量浓度范围为 16.95 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 至 157.73 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均(94.94±38.30) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, PM_{2.5} 质量浓度范围为 43.91 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 至 309.43 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均(164.50±79.39) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. PM_{2.5} 浓度远大于《环境空气质量标准》(GB 3095—2012)二级标准(75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), 说明邯郸市冬季大气颗粒物污染严重. 邯郸市城区冬季大气颗粒物质量浓度远高于中国其他城市, 在 PM₁ 质量浓度方面, 如: 青岛(41.50 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[25]、兰州(54.90 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[26]、重庆(64.40 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[27]、广州(48.70 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[28]. PM_{2.5} 质量浓度方面, 如: 天津(62.85 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[29]、沈阳(71.9 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[30]、成都(100.20 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[31]、武汉(137.60 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[32]. PM₁/PM_{2.5} 的比值范围为 45.20%—79.81%, 表明邯郸市冬季大气颗粒物污染主要受到微米气溶胶粒子的影响.

表 1 研究期间 PM₁ 和 PM_{2.5} 化学组分平均质量浓度及占比

Table 1 The mean mass concentration and proportion of chemical components of PM₁ and PM_{2.5} during the study period

	PM ₁	PM _{2.5}	PM ₁ 中占比/% PM ₁ in proportion	PM _{2.5} 中占比/% PM _{2.5} in proportion
PM/($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	94.94	164.50	100.00	100.00
NO ₃ ⁻ /($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	19.90	29.92	20.96	18.19
SO ₄ ²⁻ /($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	10.36	20.48	10.91	12.45
NH ₄ ⁺ /($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	11.40	19.61	12.01	11.92
Na ⁺ /($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	0.14	0.50	0.15	0.30
K ⁺ /($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	1.48	1.86	1.56	1.13
Cl ⁻ /($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	5.70	6.11	6.00	3.71
Zn/($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	0.26	0.43	0.27	0.26
Mg/($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	0.18	0.22	0.19	0.13
Fe/($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	0.30	0.89	0.32	0.54
Pb/($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	0.03	0.12	0.03	0.07

续表 1

	PM ₁	PM _{2.5}	PM ₁ 中占比/% PM ₁ in proportion	PM _{2.5} 中占比/% PM _{2.5} in proportion
Ba/($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	0.04	0.06	0.04	0.04
K/($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	1.25	1.62	1.32	0.98
Mn/($\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$)	74.58	74.78	0.08	0.05
Cr/($\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$)	27.57	29.13	0.03	0.02
Cu/($\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$)	16.09	24.96	0.02	0.02
Ni/($\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$)	12.96	32.61	0.01	0.02

从表 1 可以看出,二次无机气溶胶(NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+)在 PM₁ 和 PM_{2.5} 中占主导地位,并且在 PM₁ 中所占的平均百分率(43.88%)高于 PM_{2.5} 中所占的平均百分率(42.56%)。其他水溶性离子,如: Na^+ 、 K^+ 和 Cl^- 主要来源地壳和海盐^[33],其在 PM_{2.5} 中的所占比例高于 PM₁ 中。元素中 Mn 和 Fe 对于 PM₁ 的贡献更大;其他元素则对于 PM_{2.5} 的贡献更大。Fe 主要来源于工业、金属加工、生物质燃烧以及燃煤排放^[34]。综上所述,人为排放和二次生成的组分在粒径较小的颗粒物中积累较多,而自然源对粒径较大的颗粒物的贡献较大。

2.2 重污染期间邯郸市 PM₁ 的化学组分特征

采样期间,共发现两个重污染期 1 月 7—8 日(S1)和 1 月 10—14 日(S2),分析重污染期间样品 14 个。两个重污染期的质量浓度分别为如表 2 所示,其中污染最严重的时期为 S2,PM₁ 平均质量浓度为(124.77 ± 25.56) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。从表 2 可以看出,S1 阶段表现出质量浓度较高的元素主要来源于土壤,如:元素 Mn、Mg 和 Ba。而在 S2 阶段中, NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 富集程度高于 S1,这可能与华北地区冬季农业活动(施肥和生物质燃烧)排放有关系。

表 2 两次重污染期间 PM₁ 化学组分质量浓度($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)

Table 2 PM₁ and species concentrations during 2 heavy pollution events($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)

	PM ₁	NO_3^-	SO_4^{2-}	NH_4^+	K^+	Mn	Zn	Cu	Mg	Ba
S1	103.11	25.87	9.69	13.44	1.82	0.12	0.11	0.02	0.90	0.05
S2	124.77	28.30	17.92	16.40	1.75	0.07	0.35	0.02	0.18	0.06

从图 1 中可以看出,采样期间 PM₁/PM_{2.5} 的比值除少数几天外都大于 0.5,说明邯郸市大气颗粒物污染主要受到 PM₁ 的影响作用;两个重污染期间,PM₁/PM_{2.5} 的比值较其他时期有所下降,邯郸市可能在重污染期间受到河南、山东等地农业的大规模活动和工业排放的影响,造成颗粒物的大量排放,从而导致 PM₁ 在 PM_{2.5} 中所占比例降低,与表 2 S2 阶段 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 和 K^+ 的大量富集结论一致。

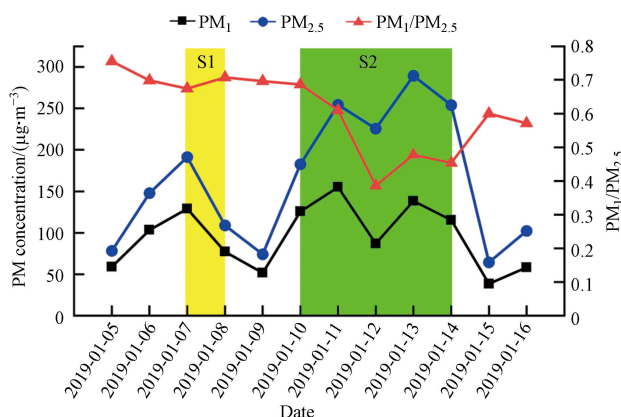


图 1 重污染过程中颗粒物浓度及二者比值

Fig.1 Concentration and ratio of particulate matter in heavy pollution process

2.3 颗粒物化学组分来源分析

以邯郸市 PM₁ 和 PM_{2.5} 的化学组分数据为基础,进行了 PM₁ 和 PM_{2.5} 的 PMF 分析,从 1 月 5 日到

1月16日,共24份样品.5到7个因素试验结果表明,6因素实验结果是最佳的,产生最合理的资源分配结果.PMF分析结果如图2所示.因子1解释了 PM_{10} (36.1%)和 $PM_{2.5}$ 的最大部分(32.7%),判定为二次污染物,因为它在 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 存在更高的载荷,其中二次污染物对于 PM_{10} 的质量浓度贡献明显高于 $PM_{2.5}$ (图2).因子2其特点是 PM_{10} (7.9%)中的Zn、Ni含量高, $PM_{2.5}$ (11.8%)中的Pb和Cu含量较高.Zn、Ni、Pb和Cu与地面交通有关,汽车尾气排放和金属制动器磨损都会向大气中排入四类元素^[35].大量的车辆和邯郸市冬季干燥的空气都导致了一个大的交通移动源的产生.因子3中 PM_{10} (20.8%)和 $PM_{2.5}$ (16.0%)被发现高载荷Na、Fe、Cu和Zn,表明污染源为工业排放.Na主要来自工业排放^[36].工业废渣、钢铁制造以及有色金属冶炼中含有丰富的Fe、Cu和Zn等排放物^[37].邯郸市属典型的重工业城市,其自身又被京津冀钢铁产业链包围,因此受到工业园的影响较大.工业排放明显增多颗粒物的数量,并且在粒径较小的气溶胶中富集.因子4可被认为生物质燃烧,这类来源中包含了很大一部分作为生物质燃烧示踪剂的 K^+ ^[38],占 PM_{10} 的6.8%和 $PM_{2.5}$ 的13.7%.因子5以Mg、Ca、Ba和Fe为特征.Mg和Ca是明显的地壳示踪元素^[39],Ba和Fe主要是土壤或岩石风化的尘被刮入大气中造成的^[40],该因子的特征是扬尘源,占 PM_{10} 的4.7%, $PM_{2.5}$ 的5.0%.因子6被定性为燃煤源,其中载荷较高的是 Cl^- 、 K^+ 、 Na^+ 和Pb,此外 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 也有一定的占比. Cl^- 一般被认为是化石燃料燃烧的标识性元素^[41],占 PM_{10} 的23.7%和 $PM_{2.5}$ 的20.8%.

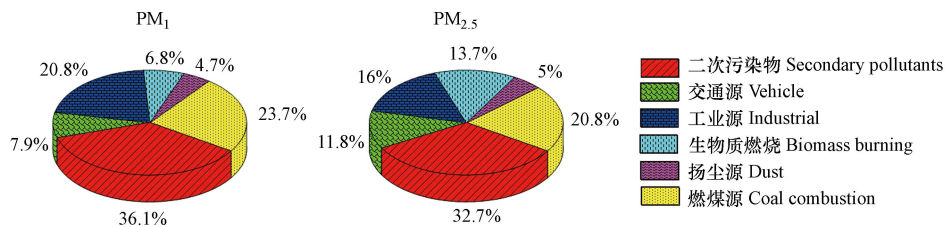


图2 各类来源对于 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 质量浓度的贡献

Fig.2 Contribution of various sources to PM_{10} and $PM_{2.5}$ mass concentrations

2.4 颗粒物后向轨迹聚类分析

利用MeteoInfo软件,结合2019年1月逐小时 $PM_{2.5}$ 质量浓度数据,对到达邯郸市两次重污染过程的后向气流轨迹进行聚类分析(表3),得到邯郸市气团输送路径特征.轨迹的输送路径和方向表示气流到达邯郸市之前所经过的地区,通过轨迹长短可以判断气流的移动速度,长的轨迹对应快速移动的气流,短的轨迹对应移动缓慢的气流^[42].

表3 重污染过程 $PM_{2.5}$ 后向轨迹聚类分析

Table 3 Clustering analysis of $PM_{2.5}$ backward trajectory in heavy pollution process

	S1中占比/% S1 in proportion	S2中占比/% S2 in proportion	S1路径 S1 path	S2路径 S2 path
聚类1	37.50	55.00	河南北部—邯郸	山西中部—邯郸
聚类2	12.50	15.83	蒙古中部—内蒙古北部—河北北部—北京中部—天津中部—山东西部—邯郸	内蒙古西南部—陕西北部—山西中部—邯郸
聚类3	22.92	5.00	蒙古中部—内蒙古中部—河北北部—北京中部—天津西部—邯郸	俄罗斯西南部—蒙古中部—内蒙古中部—山西北部—邯郸
聚类4	14.58	13.33	石家庄—衡水—邯郸	内蒙古西北部—陕西北部—山西中部—邯郸
聚类5	12.50	10.83	蒙古中部—内蒙古北部—河北北部—北京东部—天津中部—山东西部—邯郸	蒙古中部—内蒙古中部—山西北部—邯郸

注:1月7—8日(S1),1月10—14日(S2).

对邯郸市2019年1月不同的重污染过程进行的后向轨迹聚类分析可以得出,S1阶段主要受到来自河南北部、内蒙古中部的气流影响(聚类1和聚类3),分别为37.50%和22.92%.其次输送距离较远的气流(聚类2和聚类5)主要源自蒙古中部,途径内蒙古北部、河北北部、北京、天津、最后自山东西部抵达邯郸市、气流轨迹占比分别为12.50%和12.50%.再次气流(轨迹4)从河北省内石家庄市传输至衡水市,最后抵达邯郸市,流轨迹占比为14.58%.

S2 阶段主要以我国西北部短距离输送为主,其中来自山西的气流轨迹(聚类 1)占比 55.00%,超过整体气流传输的一半.源自内蒙古西北部和蒙古中部的气流轨迹(聚类 4 和聚类 5)分别占比 13.33% 和 10.83%.其次最长的气流轨迹来自俄罗斯西南部(聚类 3),占比 5.00%.同时相较于 S1 阶段,S2 阶段多了来自内蒙古西南部的气流轨迹(聚类 2),途径陕西北部,山西中部,最后抵达邯郸市,气流轨迹占比 15.83%.

总体来看,邯郸市冬季主要以西北气流为主;冬季重污染过程主要受到短距离气流传输影响较大;在持续时间较长的重污染过程如 S2 阶段,受到来自山西和邯郸市周边地区的气流传输影响超过 50%,这可能与重污染期间邯郸市低温高湿的气候条件形成了一个相对稳定的大气环境有关,从而突出了短距离传输的影响力度,这与 Zhang 等^[43]的研究结果一致.

2.5 PSCF 结果分析

针对邯郸市 $PM_{2.5}$ 浓度污染情况,有必要进一步解析其潜在的污染来源区域,PSCF 计算结果表明(表 4),S1 阶段,WSPCF 高值区域($WSPCF > 0.6$)主要分为 3 个部分,分别来自河南北部,河北东南部及邯郸市周边.这些地区是华北主要的粮食产区,研究阶段正处于冬小麦的施肥期,化肥的使用导致了氨气的大规模排放,促进二次无机气溶胶的大量转化^[43].河北东南部作为 WSPCF 高值区域之一,邯郸市的空气质量受到了其自身及其周边省市的极大影响,在很大程度上是由于重工业排放污染物^[44].其他 WSPCF 较高值区域($0.3 < WSPCF < 0.6$)如:北京、天津、河北东部以及山东西北部,不可忽视这些地区对于邯郸市 $PM_{2.5}$ 浓度的潜在贡献.

表 4 重污染过程 $PM_{2.5}$ 的加权潜在源贡献函数

Table 4 Weighted potential source contribution function of $PM_{2.5}$ in heavy pollution process

	($WSPCF > 0.6$)	($0.3 < WSPCF < 0.6$)
S1	河南北部,河北东南部,邯郸市	北京,天津,河北东部,山东西北部
S2	河北中部,山西北部,邯郸市	蒙古中部,内蒙古中部,山西北部,河南北部,山东西部

注:1月7—8日(S1),1月10—14日(S2).

S2 阶段,WSPCF 高值区域($WSPCF > 0.6$)主要集中在河北中部,山西北部和邯郸市周边,说明此次重污染过程主要受到邯郸市周边地区气流短距离传输的影响,这是由于此阶段是邯郸市西北方向的本地排放和远距离输送.冬季寒冷,华北地区大部分城市都以燃煤方式实现集中供暖,可能导致西北地区冬季大气颗粒物中煤烟尘含量较高.此外,不同于 S1 阶段,从图中可以明显看出 S2 阶段有一个明显的远距离大气传输过程,从蒙古入境,经内蒙古中部,途径山西北部,最后进入邯郸市.此气流轨迹($0.3 < WSPCF < 0.6$)说明了邯郸市此次重污染过程受到了较大的西北部远距离的气流输送影响.这也说明了 S2 阶段是邯郸市周边地区的局部气流短距离传输和来自西北远距离的冷空气气流传输共同影响下形成的一次较长时间的 $PM_{2.5}$ 重污染过程.

3 结论(Conclusion)

(1) 研究期间邯郸市 PM_1 和 $PM_{2.5}$ 平均质量浓度分别为 $(94.94 \pm 38.30) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(164.50 \pm 79.39) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,其中 $PM_1/PM_{2.5}$ 的比值范围为 45.20%—79.81%.二次无机组分(NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+)在 PM_1 (43.88%)和 $PM_{2.5}$ (42.56%)中占主导地位,且 PM_1 中二次无机组分和典型无机元素占比较高,表明人为排放和次生形成的组分在粒径较小的颗粒物中更易积累.

(2) PMF 分析显示主要受二次污染物、交通源、工业源、生物质燃烧、扬尘和燃煤源的影响;其在 PM_1 中的贡献率分别为 36.1%、7.9%、20.8%、6.8%、4.7% 和 23.8%;其在 $PM_{2.5}$ 中的贡献率分别为 32.7%、11.8%、16.0%、13.7%、5.0% 和 20.8%.

(3) 后向轨迹和化学组分分析结果表明,冬季生物质燃烧和化肥氨排放对邯郸市 PM_1 具有潜在影响,且化肥氨排放主要来自冬季典型的农业活动.

(4) 后向轨迹和潜在源分析结果表明,重污染过程中邯郸市 $PM_{2.5}$ 主要为西北短距离输送气流,其

中河南北部, 河北东北部, 山东西部以及京津地区对于邯郸市 $PM_{2.5}$ 浓度贡献较大. 同时, 不可忽视来自西北部的长距离输送气流其对于邯郸市 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献. 从两个重污染过程可以得出邯郸市冬季重污染过程的产生主要是受到西北部长—短气流传输共同作用的结果.

参考文献 (References)

- [1] LANG J L, ZHANG Y Y, ZHOU Y, et al. Trends of $PM_{2.5}$ and chemical composition in Beijing, 2000–2015 [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2017, 17(2): 412-425.
- [2] HUANG H T, GAO L R, XIA D, et al. Characterization of short- and medium-chain chlorinated paraffins in outdoor/indoor $PM_{10}/PM_{2.5}/PM_{1.0}$ in Beijing, China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 225: 674-680.
- [3] ZHOU Y, CHENG S Y, CHEN D S, et al. Temporal and spatial characteristics of ambient air quality in Beijing, China [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2015, 15(5): 1868-1880.
- [4] 邵龙义, 王文华, 幸娇萍, 等. 大气颗粒物理化特征和影响效应的研究进展及展望 [J]. *地球科学*, 2018, 43(5): 1691-1708.
SHAO L Y, WANG W H, XING J P, et al. Physicochemical characteristics and effects of airborne particles: Research progress and prospects [J]. *Earth Science*, 2018, 43(5): 1691-1708(in Chinese).
- [5] SUN Y L, WANG Z F, DU W, et al. Long-term real-time measurements of aerosol particle composition in Beijing, China: Seasonal variations, meteorological effects, and source analysis [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(17): 10149-10165.
- [6] WANG Q Q, SUN Y L, JIANG Q, et al. Chemical composition of aerosol particles and light extinction apportionment before and during the heating season in Beijing, China [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2015, 120(24): 12708-12722.
- [7] 赵清, 李杏茹, 王国选, 等. 运城秋冬季大气细粒子化学组成特征及来源解析 [J]. *环境科学*, 2021, 42(4): 1626-1635.
ZHAO Q, LI X R, WANG G X, et al. Chemical composition and source analysis of $PM_{2.5}$ in Yuncheng, Shanxi Province in autumn and winter [J]. *Environmental Science*, 2021, 42(4): 1626-1635(in Chinese).
- [8] 任秀龙, 胡伟, 吴春苗, 等. 华北南部重污染城市周边区域二次气溶胶的化学特征及来源解析 [J]. *环境科学*, 2022, 43(3): 1159-1169.
REN X L, HU W, WU C M, et al. Chemical characteristics and source analysis of secondary aerosols around heavily polluted cities in southern North China [J]. *Environmental Science*, 2022, 43(3): 1159-1169(in Chinese).
- [9] SKILES M J, LAI A M, OLSON M R, et al. Source apportionment of $PM_{2.5}$ organic carbon in the San Joaquin Valley using monthly and daily observations and meteorological clustering [J]. *Environmental Pollution*, 2018, 237: 366-376.
- [10] 武振晓. 民用燃煤排放颗粒物的单颗粒演变特征及金属元素组成 [D]. 邯郸: 河北工程大学, 2021.
WU Z X. Single particle evolution characteristics and metal element composition of particulate matter emitted from civil coal combustion [D]. Handan: Hebei University of Engineering, 2021(in Chinese).
- [11] 薛凡利, 牛红亚, 武振晓, 等. 邯郸市 $PM_{2.5}$ 中碳组分的污染特征及来源分析 [J]. *中国环境科学*, 2020, 40(5): 1885-1894.
XUE F L, NIU H Y, WU Z X, et al. Pollution characteristics and sources of carbon components in $PM_{2.5}$ in Handan City [J]. *China Environmental Science*, 2020, 40(5): 1885-1894(in Chinese).
- [12] 关攀博, 周颖, 程水源, 等. 典型重工业城市空气重污染过程特征与来源解析 [J]. *中国环境科学*, 2020, 40(1): 31-40.
GUAN P B, ZHOU Y, CHENG S Y, et al. Characteristics of heavy pollution process and source appointment in typical heavy industry cities [J]. *China Environmental Science*, 2020, 40(1): 31-40(in Chinese).
- [13] 刘召策, 袁琦, 胡伟, 等. 邯郸市冬季一次霾过程中细颗粒物化学组分的污染特征及消光贡献 [J]. *地球化学*, 2020, 49(3): 298-305.
LIU Z C, YUAN Q, HU W, et al. Pollution characteristics and extinction contribution of chemical composition in fine particulate matter during a winter haze episode in Handan [J]. *Geochimica*, 2020, 49(3): 298-305(in Chinese).
- [14] 邓靓, 韩新宇, 施择, 等. 云南低纬度高原城市大气 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子特征及来源分析 [J]. *环境化学*, 2020, 39(12): 3306-3317.
DENG L, HAN X Y, SHI Z, et al. Characteristics and source analysis of water soluble ions in atmospheric $PM_{2.5}$ in low latitude plateau cities of Yunnan Province [J]. *Environmental Chemistry*, 2020, 39(12): 3306-3317(in Chinese).
- [15] 周变红, 王锦, 曹夏, 等. 宝鸡市冬季碳质气溶胶污染特征及来源解析 [J]. *环境化学*, 2020, 39(12): 3336-3345.
ZHOU B H, WANG J, CAO X, et al. Characteristics and sources of carbon fractions during winter in Baoji City [J]. *Environmental Chemistry*, 2020, 39(12): 3336-3345(in Chinese).
- [16] 黄华斌, 林承奇, 胡恭任, 等. 基于PMF模型的九龙江流域农田土壤重金属来源解析 [J]. *环境科学*, 2020, 41(1): 430-437.
HUANG H B, LIN C Q, HU G R, et al. Source appointment of heavy metals in agricultural soils of the Jiulong River Basin based on positive matrix factorization [J]. *Environmental Science*, 2020, 41(1): 430-437(in Chinese).
- [17] 王芳龙, 李忠勤, 杨宏, 等. 天水市大气颗粒物输送通道及污染源区研究 [J]. *环境化学*, 2020, 39(9): 2371-2383.
WANG F L, LI Z Q, YANG H, et al. Study on atmospheric particulate matter transport channel and pollution source area in Tianshui

- City [J]. *Environmental Chemistry*, 2020, 39(9): 2371-2383(in Chinese).
- [18] 赵倩彪, 胡鸣, 张德华. 利用后向轨迹模式研究上海市PM_{2.5}来源分布及传输特征 [J]. *环境监测管理与技术*, 2014, 26(4): 22-26.
ZHAO Q B, HU M, ZHANG Y H. Study of source distribution and transportation characteristics of PM_{2.5} in Shanghai using backward trajectory model [J]. *The Administration and Technique of Environmental Monitoring*, 2014, 26(4): 22-26(in Chinese).
- [19] 符传博, 丹利, 佟金鹤. 2017年秋季海口市一次持续空气污染过程特征及成因分析 [J]. *环境化学*, 2021, 40(4): 1048-1058.
FU C B, DAN L, TONG J H. Characteristics and source analysis of a multi-day air pollution episode in Haikou City in autumn 2017 [J]. *Environmental Chemistry*, 2021, 40(4): 1048-1058(in Chinese).
- [20] 杜艳伟, 程建光, 吴一钢, 等. 青岛市外源PM_{2.5}传输路径及潜在污染源区 [J]. *城市环境与城市生态*, 2015, 28(4): 11-14.
DU Y W, CHENG J G, WU Y G, et al. Transportation pathways and potential sources of external PM_{2.5} in Qingdao City [J]. *Urban Environment & Urban Ecology*, 2015, 28(4): 11-14(in Chinese).
- [21] 张晗宇, 程水源, 姚森, 等. 2016年10~11月期间北京市大气颗粒物污染特征与传输规律 [J]. *环境科学*, 2019, 40(5): 1999-2009.
ZHANG H Y, CHENG S Y, YAO S, et al. Pollution characteristics and regional transport of atmospheric particulate matter in Beijing from October to November, 2016 [J]. *Environmental Science*, 2019, 40(5): 1999-2009(in Chinese).
- [22] 符传博, 丹利, 唐家翔, 等. 基于轨迹模式分析海口市大气污染的输送及潜在源区 [J]. *环境科学学报*, 2020, 40(1): 36-42.
FU C B, DAN L, TANG J X, et al. Analysis of air polluted transportation and potential source in Haikou City based on trajectory model [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2020, 40(1): 36-42(in Chinese).
- [23] ZONG Z, WANG X P, TIAN C G, et al. Source apportionment of PM_{2.5} at a regional background site in North China using PMF linked with radiocarbon analysis: Insight into the contribution of biomass burning [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16(17): 11249-11265.
- [24] REN B, XIE P H, XU J, et al. Use of the PSCF method to analyze the variations of potential sources and transports of NO₂, SO₂, and HCHO observed by MAX-DOAS in Nanjing, China during 2019 [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 782: 146865.
- [25] 刘子杨, 彭倩倩, 王新雨, 等. 青岛市秋冬季PM₁中含碳组分污染特征与来源分析//中国环境科学学会. 2020中国环境科学学会科学技术年会议论文集(第一卷)[C]. 中国环境科学学会, 中国环境科学学会, 2020: 7.
LIU Z Y, PENG Q Q, WANG X Y, et al. Pollution characteristics and source analysis of carbon components in PM₁ in autumn and winter in Qingdao//Chinese society of Environmental Sciences. Proceedings of 2020 annual meeting of science and technology of Chinese society of Environmental Sciences (Volume I)[C]. Chinese society of Environmental Sciences, Chinese society of Environmental Sciences, 2020: 7(in Chinese).
- [26] 常毅, 刘得守, 刘文君. 兰州城市大气中PM_{1.0}污染特征研究 [J]. *中国环境监测*, 2020, 36(4): 45-52.
CHANG Y, LIU D S, LIU W J. Study on the pollution characteristics of PM_{1.0} in Lanzhou City [J]. *Environmental Monitoring in China*, 2020, 36(4): 45-52(in Chinese).
- [27] 黄伟, 熊桂洪, 王军, 等. 重庆地区环境空气中PM₁监测对比分析 [J]. *环境科学与技术*, 2020, 43(8): 90-94.
HUANG W, XIONG G H, WANG J, et al. Comparative analysis of PM₁ monitoring in the ambient air of Chongqing [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, 43(8): 90-94(in Chinese).
- [28] 洪达驰, 张金谱, 裴成磊, 等. 广州市环境空气PM₁冬季比对研究 [J]. *环境科学导刊*, 2019, 38(6): 51-57.
HONG D C, ZHANG J P, PEI C L, et al. Comparative research on ambient air PM₁ in winter in Guangzhou [J]. *Environmental Science Survey*, 2019, 38(6): 51-57(in Chinese).
- [29] 丁净, 唐颖潇, 郝天依, 等. 天津市冬季空气湿度对PM_{2.5}和能见度的影响 [J]. *环境科学*, 2021, 42(11): 5143-5151.
DING J, TANG Y X, HAO T Y, et al. Impact of air humidity on PM_{2.5} mass concentration and visibility during winter in Tianjin [J]. *Environmental Science*, 2021, 42(11): 5143-5151(in Chinese).
- [30] 张毓秀, 任万辉, 王嘉禾, 等. 沈阳市冬季不同污染程度PM_{2.5}中OC和EC污染特征 [J]. *中国环境科学*, 2021, 41(7): 3066-3075.
ZHANG Y X, REN W H, WANG J H, et al. Characteristics of organic carbon(OC) and elemental carbon(EC) under different pollution levels of PM_{2.5} during winter in Shenyang [J]. *China Environmental Science*, 2021, 41(7): 3066-3075(in Chinese).
- [31] 冯炎鹏, 张军科, 黄小娟, 等. 成都夏冬季PM_{2.5}中水溶性无机离子污染特征 [J]. *环境科学*, 2020, 41(7): 3012-3020.
FENG Y P, ZHANG J K, HUANG X J, et al. Pollution characteristics of water-soluble inorganic ions in Chengdu in summer and winter [J]. *Environmental Science*, 2020, 41(7): 3012-3020(in Chinese).
- [32] 蒋惠梦, 肖寒, 宋河, 等. 武汉市冬季灰霾期PM_{2.5}中水溶性无机离子的特征 [J]. *南京信息工程大学学报(自然科学版)*, 2018, 10(5): 590-598.
JIANG H M, XIAO H, SONG H, et al. Characteristics of water-soluble inorganic ions in PM_{2.5} during a winter haze episode in Wuhan City [J]. *Journal of Nanjing University of Information Science & Technology (Natural Science Edition)*, 2018, 10(5): 590-598(in Chinese).

- [33] WANG J, ZHANG J S, LIU Z J, et al. Characterization of chemical compositions in size-segregated atmospheric particles during severe haze episodes in three mega-cities of China [J]. *Atmospheric Research*, 2017, 187: 138-146.
- [34] ZHAO Q B, HUO J T, YANG X, et al. Chemical characterization and source identification of submicron aerosols from a year-long real-time observation at a rural site of Shanghai using an Aerosol Chemical Speciation Monitor [J]. *Atmospheric Research*, 2020, 246: 105154.
- [35] 李越洋, 姬亚芹, 张军, 等. 盘锦市冬季大气PM_{2.5}元素污染特征及来源解析 [J]. *环境化学*, 2019, 38(8): 1891-1898.
LI Y Y, JI Y Q, ZHANG J, et al. Pollution characteristics and source apportionment of elements in PM_{2.5} during winter in Panjin City [J]. *Environmental Chemistry*, 2019, 38(8): 1891-1898(in Chinese).
- [36] ZÍKOVÁ N, WANG Y G, YANG F M, et al. On the source contribution to Beijing PM_{2.5} concentrations [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, 134: 84-95.
- [37] YOU S M, YAO Z Y, DAI Y J, et al. A comparison of PM exposure related to emission hotspots in a hot and humid urban environment: Concentrations, compositions, respiratory deposition, and potential health risks [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 599/600: 464-473.
- [38] HU W, HU M, HU W W, et al. Seasonal variations in high time-resolved chemical compositions, sources, and evolution of atmospheric submicron aerosols in the megacity Beijing [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, 17(16): 9979-10000.
- [39] LI Y Y, CHANG M, DING S S, et al. Monitoring and source apportionment of trace elements in PM_{2.5}: Implications for local air quality management [J]. *Journal of Environmental Management*, 2017, 196: 16-25.
- [40] TOBLER A, BHATTU D, CANONACO F, et al. Chemical characterization of PM_{2.5} and source apportionment of organic aerosol in New Delhi, India [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 745: 140924.
- [41] 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(in Chinese).
- [42] 刘慧, 夏敦胜, 陈红, 等. 2017年兰州市大气污染物输送来源及传输特征模拟分析 [J]. *环境科学研究*, 2019, 32(6): 993-1000.
LIU H, XIA D S, CHEN H, et al. Simulation analysis of sources and transmission characteristics of air pollutants in Lanzhou City in 2017 [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2019, 32(6): 993-1000(in Chinese).
- [43] ZHANG Y Y, LANG J L, CHENG S Y, et al. Chemical composition and sources of PM₁ and PM_{2.5} in Beijing in autumn [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 630: 72-82.
- [44] ZONG Z, WANG X P, TIAN C G, et al. PMF and PSCF based source apportionment of PM_{2.5} at a regional background site in North China [J]. *Atmospheric Research*, 2018, 203: 207-215.