

基于 PMF 模型的北京市 PM_{2.5} 来源的时空分布特征

王 琴¹, 张大伟^{1*}, 刘保献¹, 陈 添², 魏 强¹, 李金香¹, 梁云平¹ (1.北京市环境保护监测中心, 北京 100048; 2.北京市环境保护局, 北京 100048)

摘要: 2012 年 8 月至 2013 年 7 月, 对北京市定陵、车公庄、东四、石景山、通州、房山、亦庄和榆堡等 8 个站点的大气细颗粒物 PM_{2.5} 进行了 12 个月次的同步采样观测, 并测定了其中元素碳、有机碳、水溶性离子和无机元素的浓度水平. 利用 PMF 模型对 PM_{2.5} 的来源进行解析. 结果表明, 北京市 PM_{2.5} 的主要来源为二次源、燃煤、地面扬尘、机动车排放、工业源和建筑尘等, 年均贡献率分别为 42%、19%、19%、10%、6% 和 4%. PM_{2.5} 的来源具有显著的季节变化, 春季大风天气频繁、地面扬尘源为主要来源, 而夏、秋、冬季均以二次源为主, 尤其是夏季二次源贡献达 56%, 冬季燃煤源对 PM_{2.5} 的贡献显著提升为 25%. 污染源贡献也存在一定空间差异, 冬春季燃煤源对郊区点的贡献显著高于城区点, 而二次污染源具有区域性污染特征. 在区域性积累型重污染日, 二次源对 PM_{2.5} 的贡献均占主要地位, 对气态前体物 NO_x、SO₂ 和 VOCs 等的控制对 PM_{2.5} 的减少至关重要.

关键词: PM_{2.5}; PMF 模型; 源解析; 时空变化

中图分类号: X131.1

文献标识码: A

文章编号: 1000-6923(2015)10-2917-08

Spatial and temporal variations of ambient PM_{2.5} source contributions using positive matrix factorization. WANG Qin¹, ZHANG Da-wei^{1*}, LIU Bao-xian¹, CHEN Tian², WEI Qiang¹, LI Jin-xiang¹, LIANG Yun-ping¹ (1.Beijing Municipal Environmental Monitoring Center, Beijing 100048, China; 2.Beijing municipal Environmental Protection Bureau, Beijing 100048, China). *China Environmental Science*, 2015,35(10): 2917~2924

Abstract: Ambient PM_{2.5} samples were collected simultaneously at 8 monitoring sites (Dingling, Chegongzhuang, Shijingshan, Dongsì, Tongzhou, Liangxiang, Yizhuang and Yufa) in Beijing, from August 2012 to July 2013. And positive matrix factorization (PMF) was used to identify the sources of PM_{2.5} based on ambient PM_{2.5} compositional data including concentrations of organic carbon (OC), elemental carbon (EC), ions and metal elements. Results from PMF indicated that the six major sources of ambient PM_{2.5} were secondary sources, coal combustion, soil dust, vehicle emission, industrial sources and construction dust, with an annual average contribution of 42%, 19%, 19%, 10%, 6% and 4%, respectively. The contributions of the sources to PM_{2.5} in Beijing showed significant seasonal variations. Soil dust was the primary source in spring because of the highest frequency of windy weather. Secondary sources became the major contributor in summer, autumn and winter, and even covered 56% in summer. Coal combustion exhibited increased contributions in winter with values of 25%. The contributions of the PM_{2.5} sources also showed some spatial differences. Coal combustion showed significantly higher contributions in suburban areas than in urban areas, whereas the secondary sources were regional. And the secondary sources were dominated during the cumulative pollution events, accounting for more than 50% of the PM_{2.5} mass. Strengthening the controls of gaseous precursors (NO_x, SO₂ and VOCs) was of great significance for the reduction of PM_{2.5} in Beijing.

Key words: PM_{2.5}; PMF; source apportionment; spatial and temporal variations

近年来, 在经济的快速发展和一系列大气污染防治措施下, 北京市大气污染由煤烟型转为复合型, 总体空气质量呈逐步改善趋势, 但颗粒物污染形势依然严峻, 尤其是以 PM_{2.5} 为主的细粒子污染问题凸显^[1], 成为影响区域大气能见度降低、危害人体健康的主要原因. 为有效控制 PM_{2.5}

污染, 识别并定量主要污染源, 是制定针对性控制措施的基础.

收稿日期: 2015-03-12

基金项目: 北京市科技计划课题(Z121100000312035), 环保公益性行业科研(201409003)

* 责任作者, zhangdawei@bjmemc.com.cn

目前,我国对大气颗粒物的来源解析仍以受体模型为主^[2-3],常见的方法有 PMF(正矩阵因子分析)、CMB(化学质量平衡)和 PCA(主成分分析).相比其他方法,PMF 方法不需要测量源成分谱,可利用约束条件同时解析出各类源的源谱和贡献率,也能保证分解矩阵中元素非负^[3],因此其在北京、香港、纽约、首尔和北极圈等地区的大气颗粒物来源解析中得到了广泛应用^[4-13].其中,在北京地区不同研究者^[4,6,8-9,14]发现,由于空间位置、采样时间的不同,所解析出的 PM_{2.5} 来源存在一定差异.然而,已有的针对北京地区的 PM_{2.5} 源解析研究中,多点位的长时间尺度的研究还比较匮乏,代表性不足.为了更加全面细致地了解北京市大气 PM_{2.5} 的来源,掌握 PM_{2.5} 来源及其时间、空间分布特征,本研究在北京市定陵、车公庄、东四、石景山、通州、房山、亦庄和榆堡 8 个站点开展了为期一年(2012 年 8 月~2013 年 7 月)的 PM_{2.5} 样品采集,并利用 PMF 模型进行源解析,旨在揭示北京市大气 PM_{2.5} 不同污染源的贡献率以及季节和空间变化特征.

1 材料与方法

1.1 PM_{2.5} 采样及分析

根据北京市空间分布、功能特征以及受主导风向传输的影响,在北京地区设置 8 个有代表性的大气环境 PM_{2.5} 采样点,包括:定陵(城市背景点)、车公庄(城区点)、东四(城区点)、石景山(城区点)、通州(东南郊区)、房山(西南郊区)、亦庄(东南郊区)和榆堡(南部边界传输点).具体采样点分布见图 1.PM_{2.5} 样品采用 TH - 16A 四通道采样器进行采集,各通道流量均为 16.7L/min.根据滤膜性能和待测组分的不同,选择石英膜(Whatman:1851047)和特氟龙膜(Whatman:7592-104)进行采样.采样时间为 2012 年 8 月至 2013 年 7 月,每月连续采样 5~7d,共获得有效样本 482 个.

样品采集后,对滤膜中的化学组分进行提取并作全面分析.利用美国 Sunset 公司生产的 RT-3 型分析仪测定石英膜中的有机碳(OC)、元素碳(EC);分别采用美国 Dionex 公司生产的

ICS-2000、ICS-3000 离子色谱分析仪分析石英膜中的 NH₄⁺、K⁺等阳离子和 SO₄²⁻、NO₃⁻、Cl⁻等阴离子;分别利用电感耦合等离子体发射光谱法(ICP-AES)、氢化物发生-原子荧光光谱法(HG-AFS)测定特氟龙膜样品中的 20 种无机元素,包括 Al、Ba、Ca、Cd、Cr、Cu、Fe、K、Mg、Mn、Na、Ni、Pb、Sc、Ti、V、Zn、Si、As、Se.样品分析过程中严格执行实验室的质量保证与质量控制措施.

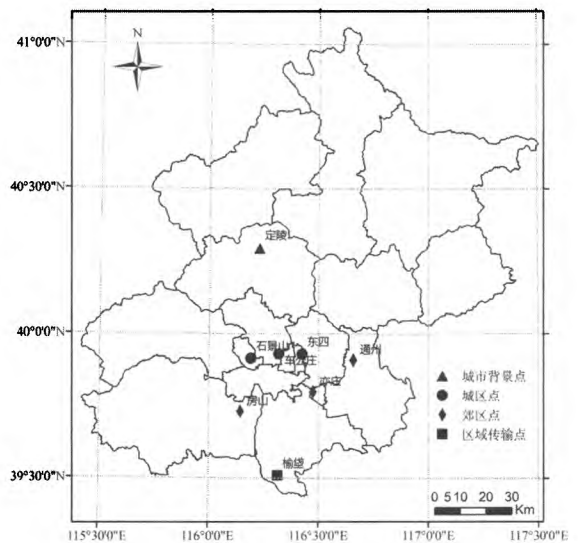


图 1 PM_{2.5} 采样点示意图
Fig.1 Sampling sites of PM_{2.5} in Beijing

1.2 PMF 模型方法

基于 PM_{2.5} 化学组成,采用 PMF 模型对 PM_{2.5} 的主要来源进行解析.PMF 基于受体点的大量观测数据来估算污染源的组成和对环境浓度的贡献^[15].假设 X 为 $n \times m$ 矩阵, n 为样品数, m 为污染物组分,那么 X 可分解为 $X=GF+E$,其中 G 为 $n \times p$ 矩阵, F 为 $p \times m$ 矩阵, p 为主要污染源的数目, E 为残数矩阵,定义为:

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

其中 x_{ij} 表示*i*样品中*j*组分的浓度; g_{ik} 是第*k*个源对第*i*个样品的相对贡献; f_{kj} 是第*k*个排放源中*j*组分的含量; e_{ij} 是残差.PMF 算法以 *G*(污染源载荷)和 *F*(源廓线)中元素非负为约束条件,通过加权最小二乘法使 *Q* 达到最小为最优,进而求解 *G* 和 *F*.

本文利用美国 EPA 的推荐的 EPA PMF3.0 软件对观测期间 PM_{2.5} 的来源进行解析.根据数据质量及元素特性,对参与模拟的样本及化学组分进行筛选,共 482 个环境样本纳入分析,参与分析的化学组分包括 PM_{2.5} 总质量浓度及 OC、EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Cl⁻、Al、Ba、Ca、Cd、Cr、Cu、Fe、K、Mg、Mn、Na、Pb、Ti、Zn、

Si、As 等 22 种组分.其他几种无机元素浓度水平较低,且不具有显著的源示踪性,因此未纳入模型.在 PMF 模型计算中,尝试 3~10 个因子,进行多次优化计算,最终确定 6 个因子能合理解释其污染源类别,且此时解析结果稳定、大部分残差值分布在-3 和+3 间.进一步在-5 至+5 间调整 *Fpeak* 值,寻找因子旋转的空间,发现 *Fpeak* 值的变化对解析结果并无明显影响,故选择 *Fpeak*=0 时 PMF 的解析结果进行分析.

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5} 来源贡献

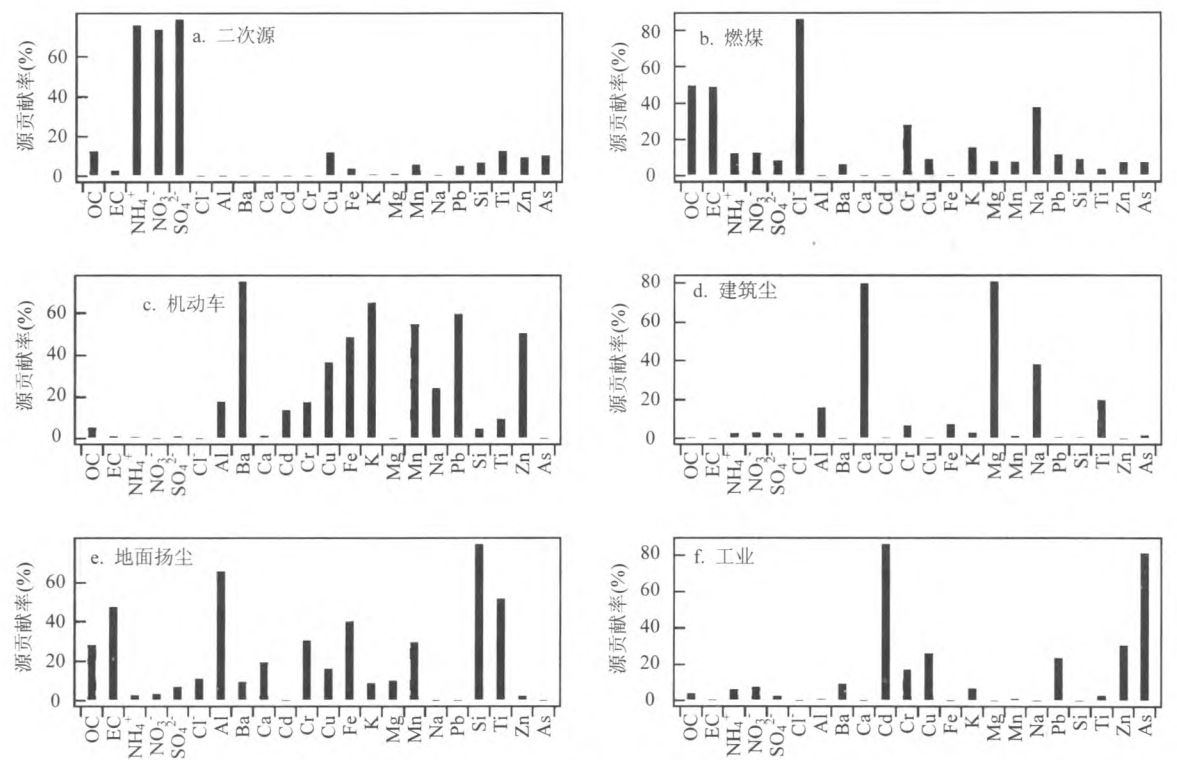


图2 PMF 解析的 6 类源贡献特征
Fig.2 Profiles of the six factors resolved by PMF model

图2表示6类因子对不同化学组分的相对贡献率,根据每个因子的特征组成,对6类因子进行来源识别.因子1以二次无机离子SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺为主,对OC也有一定贡献,代表了光化学反应生成的二次无机离子和二次有机物,为二次源.因子2对OC、EC、Cl⁻有显著贡献,北京地区Cl⁻

一般认为是燃煤的特征组分^[16],加上其对OC、EC的显著贡献,可确认该因子为燃煤源.因子3主要包括Pb、Zn、Ba、Mn、Fe和Cu等无机元素.Zn和Cu为机动车润滑油的主要添加剂,而Zn、Ba和Mn也广泛地用于刹车片和轮胎中^[6],尽管北京已经使用无铅汽油,并不意味着铅的零

排放,机动车的磨损仍可能排放 Pb,因此这些元素都可作为机动车的示踪物,因此因子 3 可认定为机动车源.因子 4 为建筑尘,其贡献率较大的组分为 Ca、Mg、Na、Al、Fe 和 Ti 等,为与水泥、石灰建筑材料相关的地壳元素.因子 5 为地面扬尘,特征元素为 Al、Si、Ti、Ca 和 Fe 等地壳元素,同时对 EC、OC 也有一定的贡献,这可能与扬尘受人类活动的影响大,大量腐烂的植物、垃圾和燃烧源排放出的高浓度 EC、OC 进入扬尘有关.该因子代表了扬尘源具有多源混合的二次源特征.因子 6 对金属元素 Cd、As 的贡献显著,对 Cu、Pb、Zn 的贡献也较大,考虑主要来自于与金属加工相关的工业源排放.

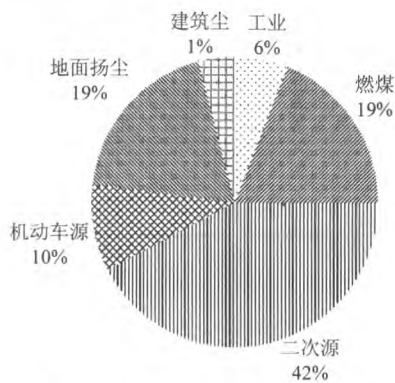


图 3 2012 年 8 月~2013 年 7 月,北京市 PM_{2.5} 主要来源的年均贡献率

Fig.3 The annual relative contributions of PM_{2.5} sources in Beijing from August 2012 to July 2013

根据 PMF 解析结果(图 3),北京市 2012 年 8 月至 2013 年 7 月采样期间,PM_{2.5} 的最大来源为二次源,对 PM_{2.5} 的浓度贡献为 49.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,贡献率为 42%.其次是燃煤和地面扬尘,对 PM_{2.5} 的浓度贡献均为 22.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,贡献率为 19%.机动车直接排放 PM_{2.5} 的贡献相对较小,浓度贡献值为 11.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,贡献率为 10%.但值得注意的是,机动车除直接排放 PM_{2.5} 外,也是气态污染物 VOC、NO_x 等的重要来源,对 PM_{2.5} 组分中的二次有机物、二次硝酸盐具有重要贡献^[17].此外,机动车行驶中产生的道路尘可作为地面扬尘间接对 PM_{2.5} 产生贡献.因此机动车对 PM_{2.5} 的综合贡献远大于

10%.工业源和建筑尘对 PM_{2.5} 的浓度贡献值分别为 7.0、4.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,贡献率分别为 6%、4%.其他对北京地区 PM_{2.5} 的源解析结果中^[6,8-9],二次无机气溶胶占 PM_{2.5} 的 26%~33%,而有研究表明,占 PM_{2.5} 质量 18.5%左右^[18]的有机物中有约 50%为二次转化而来^[19],因此本研究二次源贡献 42%基本与文献相当;而机动车贡献率为 4%~18%,燃煤贡献率 7%~19%,扬尘源贡献率为 9%~20%,本研究也基本与现有研究结果相符.

2.2 PM_{2.5} 来源贡献的时间变化

2.2.1 PM_{2.5} 来源贡献的时间序列及月变化特征 图 4 中,各类源对 PM_{2.5} 的日均贡献值为对应日期所有站点的贡献值的平均值.由图 4、图 5 可见,在大部分采样日期内,二次源对 PM_{2.5} 的质量浓度贡献均较高,贡献范围为 0~335 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,在 2013 年 1 月 11 日达到最高值.从相对贡献率来看,随着温度及光照强度的降低,二次转化效率减弱,二次源的相对贡献率从 2012 年 8 月逐步降低,至 11 月时达到一个谷点;随后在 12 月~3 月有一定的回升,这一方面是因为冬季采暖期气态前体物 SO₂ 排放量增大,另一方面这与采样期间静稳、高湿天气频现^[20],有利于二次污染物的形成积累有关^[21];从 2013 年 4 月至 7 月,二次源的相对贡献率又随着气温的转暖而不断加强.

燃煤源对 PM_{2.5} 的浓度贡献范围为 0~111 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,其在夏季对 PM_{2.5} 的贡献较低,至冬季采暖期则显著上升,其中 1 月对 PM_{2.5} 的浓度贡献达 62 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,其次是 12 月为 44 $\mu\text{g}/\text{m}^3$.总体来说,北京市采暖期燃煤排放量会增加 4 倍^[22],而 2013 年 1 月的峰值也与当时极端气象条件不利于扩散有关^[23].

地面扬尘在全年均对 PM_{2.5} 有一定贡献量,浓度贡献范围 1.1~62.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$.其中最高值出现在 2013 年 5 月 11 日,经气象条件分析,当日北京地区有 3~4 级偏北风,最大瞬时风速达 54km/h,易使地面起尘.从月均相对贡献来看,4 月地面扬尘对 PM_{2.5} 的相对贡献最高,达 48%,其次是 5 月,贡献率为 36%.这与春季干燥多风天气,易使地面尘卷挟到大气中有关;而 1 月地面扬尘对 PM_{2.5} 的相对贡献较低,这是因为 2013 年 1 月受多次重污染过

程影响,其他来源贡献率增加。

机动车源对 PM_{2.5} 的浓度贡献范围为 0~66μg/m³,除 10 月、12 月、1 月、3 月有几日贡献较大外,其他时间没有明显的差异.机动车源 PM_{2.5} 积累。

相对固定源(燃煤)排放强度比较稳定,但其属于低层污染源,当出现逆温等不利于污染物扩散的气象条件时,容易导致局地机动车排放的 PM_{2.5} 积累。

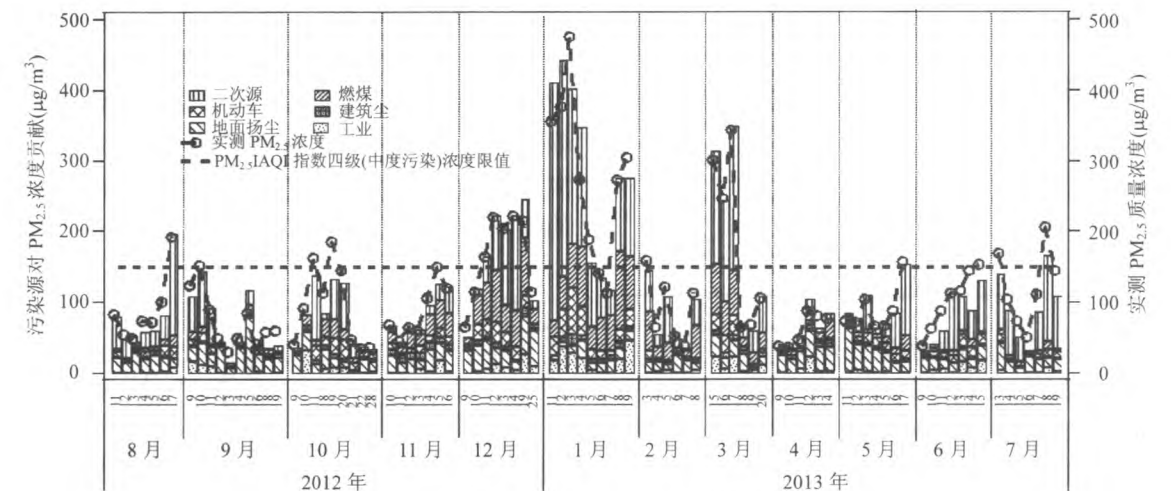


图4 各类污染源对 PM_{2.5} 浓度贡献的时间序列
Fig.4 Time series of PM_{2.5} sources contributions

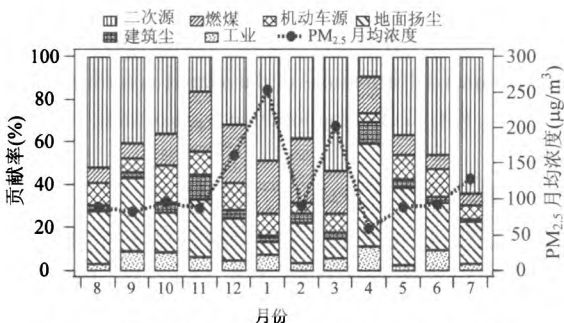


图5 各类污染源对 PM_{2.5} 相对贡献的月变化
Fig.5 Monthly variations of the relative contributions of PM_{2.5} sources

建筑尘对 PM_{2.5} 的贡献相对较小,浓度贡献范围为 0.3~15.2μg/m³.建筑尘属于无组织源,城市化中建筑、地铁等施工扬尘均对 PM_{2.5} 有所贡献,其排放强度与工期阶段、地面风速等相关。

工业源对 PM_{2.5} 的浓度贡献范围为 0~47μg/m³,采样期间呈波动起伏状态,没有明显的变化规律,2013 年 1 月贡献值最大.随着首钢等大型工业企业的搬迁,北京已无明显的与金属过程相关的固定工业污染源,但仍存在一些小型压延

加工工业源.此外,京津冀地区存在大量的钢铁加工、机械制造等工业企业,也会对北京地区大气颗粒物浓度水平造成影响。

2.2.2 PM_{2.5} 来源贡献的季节变化特征 从表 1 可看出,PM_{2.5} 的来源具有显著的季节差异.春季由于大风天气较为频繁,地面扬尘为 PM_{2.5} 的主要来源,贡献率达 37%,显著高于其他季节.其次是二次源,贡献率为 29%,但值得注意的是,春季是一年之中二次源贡献率最低的.相比其他季节,春季建筑尘贡献率则最高,为 6%.夏季,温度高、光照强度大、降水天气多相对湿度大,光化学作用显著,使得二次源跃居为 PM_{2.5} 的主要污染源,贡献率达 56%.地面扬尘占 22%,位居第二.燃煤的贡献率夏季达到最低值,为 6%.秋季,二次源、地面扬尘为 PM_{2.5} 的主要污染源,分别贡献 38%、26%.冬季,由于供暖需求,燃煤量大幅上升,燃煤源对 PM_{2.5} 的贡献也显著提升,贡献率为 25%.由于冬季采样期间,空气湿度大、风速小、逆温强,近地面排放积累的气态污染物易通过非均相反应转化生产二次颗粒物,并吸收长大,使得二次

源对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献仍非常显著,达 42%.

表 1 北京 $\text{PM}_{2.5}$ 来源的季节变化
Table 1 Seasonal variations of the relative contributions of $\text{PM}_{2.5}$ sources

来源	春季		夏季		秋季		冬季	
	浓度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	比例 (%)	浓度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	比例 (%)	浓度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	比例 (%)	浓度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	比例 (%)
二次源	23.1	29	49.4	56	30.0	38	66.5	42
燃煤	10.1	13	5.5	6	9.1	11	40.4	25
机动车	6.9	9	8.1	9	9.6	12	15.7	10
建筑尘	4.8	6	1.9	2	3.0	4	6.8	4
地面扬尘	28.9	37	19.1	22	20.2	26	22.2	13
工业源	4.5	6	4.2	5	7.2	9	9.9	6

2.3 $\text{PM}_{2.5}$ 来源贡献的空间差异

依据各点位在不同季节的来源组成特点,利用 K-均值聚类方法对各点位进行分类,将 8 个站点分成了 3 类:第 1 类包括车公庄、东四和石景山,根据其功能特点,可将这类站点归为城区点;第 2 类站点包括房山、通州、亦庄和榆垓,这 4 个站点分布位于北京西南、东部、东南和南部的郊区,将该类站点归为南部郊区点;第 3 类站点为定陵点,该点位于北部郊区,周围污染源相对较少,一般作为城市背景点.值得注意的是,榆垓点地处北京南部临近河北省,属于南部传输点,但从 $\text{PM}_{2.5}$ 来源组成来看,其与其它 3 个南部郊区点无显著差异,一定程度上说明北京南部地区受到周边城市的传输影响较大.

从图 6 中可知,在各季节, $\text{PM}_{2.5}$ 总质量浓度的大小顺序均为郊区点>城区点>城市背景点.定陵作为背景点,除秋季二次源和建筑尘外,各类源对 $\text{PM}_{2.5}$ 的绝对贡献均为最低值,反映出污染排放强度小.对各类源在空间上的分布进行比较分析,二次源在各类站点中的贡献均占绝对主导地位,城区点、南部郊区点和背景点相对贡献率分别为 44%、40%和 47%,表现出二次污染的区域性特征.燃煤源对郊区点的贡献在冬春季明显高于城区点,这与城区和郊区的能源结构差异有关.城区已基本实现清洁能源改造、燃气供暖,而郊区仍以燃煤供暖为主.地面扬尘在城区点最高,可能与机动车带来的道路扬尘有关,说明城区点的

地面扬尘也不容忽视.机动车源的直排贡献在郊区点稍高于其他两类点,这可能是因为郊区点高速路网发达,来往的重型柴油车辆较多,排放强度较大.值得注意的是,城市背景点的机动车直排贡献也并不显著低于其他两类点,受机动车的影响也较高.建筑尘对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献总体上看,城市背景点略低于城区和郊区,但在各季节没有明显的空间分布规律.工业源的贡献在郊区点要高于其他两类点,可能因为北京南部郊区是北京市工业源相对集中的区域,且容易受到周边城市工业源的影响.

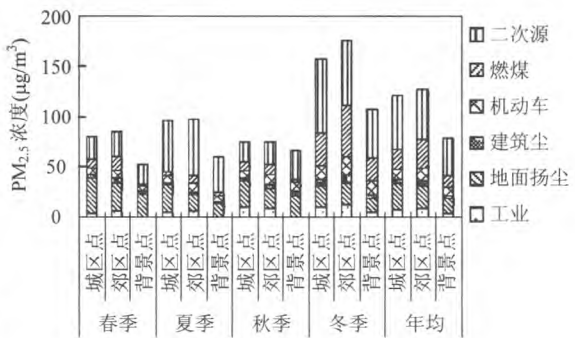


图 6 各类采样点 $\text{PM}_{2.5}$ 的来源比较
Fig.6 Spatial distributions of the relative contributions of $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing for three types of sites

2.4 重污染日下 $\text{PM}_{2.5}$ 的来源特点

从图 4 可看出,采样期间,有不少采样日 $\text{PM}_{2.5}$ 的日均浓度值均超过了 $150\mu\text{g}/\text{m}^3$,即 $\text{PM}_{2.5}$ 的空气质量分指数已属于重度、严重污染级别,重污染频率为 31%.其中春、夏、秋季重污染发生的频率相对较低,冬季重污染发生的频率则较高,尤其是 2013 年 1 月出现了多次持续多天的重污染过程.由表 2 分析知,这些重污染日天气系统较为稳定,主要特点为地面以偏南气流为主,风速小、湿度大、逆温强,有利于污染物的二次生成积累,也存在南部地区高浓度污染物的输送,多属静稳天气下的区域性积累型污染过程^[22].

由图 7 可知,在区域性积累型污染日下,二次源对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献均占主要地位,春、夏、秋和冬季二次源对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献分别为 65%、65%、54%和 51%,远高于当季平均值.Huang^[24]、Guo^[25]等

分别对北京 2013 年冬季、秋季重污染的研究也表明,重污染期间 PM_{2.5} 的二次来源显著增加,包括二次无机气溶胶的生成和二次有机气溶胶的生成.因此,在扩散条件不利的情况下,应着力控制 PM_{2.5} 前体物(NO_x、SO₂ 和 VOCs 等)的排放^[22], 应急控制重点为机动车尾气排放和油气挥发、燃

煤源、溶剂源等,以减轻二次颗粒物的生成积累.分析冬季采暖期的特点,由于燃煤供暖的影响,燃煤源在冬季重污染日对 PM_{2.5} 的贡献也比较高,为 22%,高于其他季节.因此,在冬季重污染日下,应格外加强燃煤源的控制.此外,应积极推进能源结构调整,消减燃煤量,发展清洁能源.

表 2 采样期间,重污染日的气象条件分析
Table 2 Meteorological conditions in heavy air pollution episodes during sampling days

月份	气象条件简介
8	采样期间连续多日持续无风,最高温在 30℃左右,至 17 日时出现阵雨,相对湿度为 78%.
9	10 日,天气系统稳定,风速低、相对湿度大(80%).
10	11 日,风速低、相对湿度大(62%),地面以偏南气流为主在污染物易在山前积累,且存在南部传输;19 日,风速低,相对湿度大(73%),有雾,扩散条件不利.
11	15 日,晴转雨夹雪,微风、相对湿度大(60%),天气系统稳定,风速低、相对湿度大(80%).
12	11~14 日及 19 日,北京均为为阴间小雪天气,相对湿度大(66~94%)、风速小、存在逆温,不利于污染物扩散.
1	11~15 日、18~19 日,连续多日受低压槽合控制,高湿(75~85%)、逆温,近地面有偏南气流带来水汽及污染物,高空以偏西气流为主带来沙尘,污染物积累与传输并存.
2	3 日,为雾有中雪天气、相对湿度 89%,风速低、扩散条件不利
3	15~17 日,相对湿度大(60%左右)、风速低,逆温层厚、大气沉积稳定,扩散条件不利.
5	17 日,风速低、相对湿度大(59%),近地面以偏南气流为主,扩散条件较差.
6	15 日,风速低、相对湿度大(59%)、有雾,扩散条件较差.
7	13 日,最高温 31℃,阴间多云,相对湿度大(74%)、风速低;18 日,阴有阵雨,相对湿度大(81%),风速低.

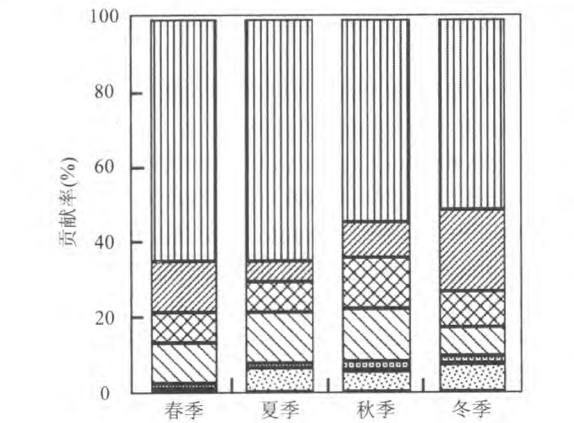


图 7 各季节重污染期间,PM_{2.5} 的来源比较
Fig.7 Seasonal variations of the relative contributions of PM_{2.5} sources in heavy air pollution episodes

3 结论

3.1 根据 PMF 解析结果,北京市 2012 年 8 月至 2013 年 7 月采样期间,PM_{2.5} 的最大来源为二次源,

对 PM_{2.5} 的贡献率约为 42%;其次是燃煤和地面扬尘,对 PM_{2.5} 的贡献率约均为 19%;机动车直接排放 PM_{2.5} 的贡献相对较小,贡献率约为 10%;工业源和建筑尘对 PM_{2.5} 的贡献率分别为约 6%、4%.

3.2 PM_{2.5} 的来源具有显著的季节差异.春季,地面扬尘为 PM_{2.5} 的主要来源,贡献率达 37%,显著高于其他季节;其次是二次源,贡献率为 29%.夏季,二次源为 PM_{2.5} 的主要污染源,贡献率达 56%.秋季,二次源、地面扬尘为 PM_{2.5} 的主要污染源,分别贡献 38%、26%.冬季,燃煤源对 PM_{2.5} 的贡献显著提升,贡献率为 25%;由于冬季采样期间,空气湿度大、风速小、逆温强,二次源对 PM_{2.5} 的贡献仍非常显著,达 42%.

3.3 从 PM_{2.5} 来源的空间分布来看:不同季节,二次源的贡献在不同类型点位的高低顺序有所不同,总体来说,二次污染具有区域性;冬春季燃煤源对郊区点的贡献显著高于城区点;地面扬尘在城区点最高;机动车源的直排贡献在郊区点稍高

于其他两类点;工业源的贡献在郊区点要高于其他两类点。

3.4 采样期间发生的重污染过程,多属区域性积累型污染。二次源对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献均占主要地位,春、夏、秋和冬季二次源对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献分别为 65%、65%、54%和 51%。因此,在扩散条件不利的情况下,应从更大的区域尺度着力控制 $\text{PM}_{2.5}$ 前体物(NO_x 、 SO_2 和 VOCs 等)的排放。

参考文献:

- [1] 北京市环境保护局.2013 年北京市环境状况公报 [R]. 北京:北京市环境保护局,2014.
- [2] 程念亮,李云婷,孟凡,等.我国 $\text{PM}_{2.5}$ 污染现状及来源解析研究 [J]. 安徽农业科学,2014,42(15):4721-4724.
- [3] 郑玫,张延君,闫才青,等.中国 $\text{PM}_{2.5}$ 来源解析方法综述 [J]. 北京大学学报(自然科学版),2014,50(6):1141-1154.
- [4] Zhang R, Jing J, Tao J, et al. Chemical characterization and source apportionment of $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing: seasonal perspective [J]. Atmos. Chem. Phys., 2013,13(14):7053-7074.
- [5] Yuan Z B, Yu J Z, Lau A K H, et al. Application of positive matrix factorization in estimating aerosol secondary organic carbon in Hong Kong and its relationship with secondary sulfate [J]. Atmos. Chem. Phys., 2006,6(1):25-34.
- [6] Yu L D, Wang G F, Zhang R J, et al. Characterization and Source Apportionment of $\text{PM}_{2.5}$ in an Urban Environment in Beijing [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2013,13(2):574-583.
- [7] Xie S D, Liu Z, Chen T, et al. Spatiotemporal variations of ambient PM_{10} source contributions in Beijing in 2004 using positive matrix factorization [J]. Atmos. Chem. Phys., 2008,8: 2701-2716.
- [8] Wang H L, Zhuang Y H, Wang Y, et al. Long-term monitoring and source apportionment of $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ in Beijing, China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2008,20(11):1323-1327.
- [9] Song Y, Zhang Y H, Xie S D, et al. Source apportionment of $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing by positive matrix factorization [J]. Atmospheric Environment, 2006,40(8):1526-1537.
- [10] Nguyen Q T, Skov H, Sorensen L L, et al. Source apportionment of particles at Station Nord, North East Greenland during 2008-2010 using COPREM and PMF analysis [J]. Atmos. Chem. Phys., 2013,13(1):35-49.
- [11] Liu W, Hopke P K, Han Y J, et al. Application of receptor modeling to atmospheric constituents at Potsdam and Stockton, NY [J]. Atmospheric Environment, 2003,37(36):4997-5007.
- [12] Lee E, Chan C K, Paatero P. Application of positive matrix factorization in source apportionment of particulate pollutants in Hong Kong [J]. Atmospheric Environment, 1999,33(19):3201-3212.
- [13] Heo J B, Hopke P K, Yi S M. Source apportionment of $\text{PM}_{2.5}$ in Seoul, Korea [J]. Atmos. Chem. Phys., 2009,9(14):4957-4971.
- [14] Song Y, Xie S D, Zhang Y H, et al. Source apportionment of $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing using principal component analysis/absolute principal component scores and UNMIX [J]. Sci. Total Environ., 2006,372(1):278-86.
- [15] Paatero P, Tapper U. Analysis of different modes of factor analysis as least squares fit problem [J]. Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 1993,18(2):183-194.
- [16] Duan F K, He K B, Ma Y L, et al. Concentration and chemical characteristics of $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing, China: 2001-2002 [J]. Science of the Total Environment, 2006,355(1):264-275.
- [17] 唐孝炎,张远航,邵敏.大气环境化学 [M]. 北京:高等教育出版社,2006.
- [18] 刘保献,张大伟,陈添,等.北京市 $\text{PM}_{2.5}$ 主要化学组分浓度水平研究与特征分析 [J]. 环境科学学报, <http://www.cnki.net/kcms/detail/11.1843.X.20150402.1156.002.html>.
- [19] 郭松,胡敏,尚冬杰,等.基于外场观测的大气二次有机气溶胶研究 [J]. 化学学报, 2014,72(2):145-157.
- [20] 杨懂艳,刘保献,张大伟,等.2012-2013 年间北京市 $\text{PM}_{2.5}$ 中水溶性离子时空分布规律及相关性分析 [J]. 环境科学, 2015,36(3): 768-773.
- [21] Sun Y L, Guo S Z, Tang A H, et al. Chemical Characteristics of $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} in Haze-Fog Episodes in Beijing [J]. Environmental Science and Technology, 2006,40(10):3148-3155.
- [22] 孙峰,张大伟,孙瑞雯,等.北京地区冬季典型 $\text{PM}_{2.5}$ 重污染案例分析 [J]. 中国环境监测, 2014,30(6):1-12.
- [23] 李金香,邱启鸿,辛连忠,等.北京秋冬季空气严重污染的特征及成因分析 [J]. 中国环境监测, 2007,23(2):89-94.
- [24] Huang R J, Zhang Y L, Bozzetti C, et al. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China [J]. Nature, 2014,514(7521):218-222.
- [25] Guo S, Hu M, Zamor M L, et al. Elucidating severe urban haze formation in China [J]. PNAS, 2014,111(49):11373-11378.

作者简介:王琴(1986-),女,湖北荆门人,工程师,硕士,主要从事环境监测工作.发表论文 3 篇。