

合肥中心街道峡谷颗粒物粒径分布及组分特征分析

雷小琦^{1,2}, 周纪彤², 林 骏^{2,3}, 王 奇^{2,4}, 王秀娟⁵,
虞发军^{2,6}, 王焕钦^{2,6,*}, 桂华侨^{2,6}

(1. 吉首大学生命科学学院, 湖南 吉首 416000; 2. 中国科学院合肥物质科学研究院 安徽光学精密机械研究所, 安徽 合肥 230031; 3. 安徽农业大学 信息与人工智能学院, 安徽 合肥 230036; 4. 安徽建筑大学 电子与信息工程学院, 安徽 合肥 230000; 5. 合肥工业大学 微电子学院, 安徽 合肥 230009; 6. 合肥综合性科学中心环境研究院, 安徽 合肥 230088)

摘要: 城市中心街道峡谷纳米-亚微米颗粒物的高分辨率“粒径分布-化学组分-来源”信息, 是制定机动车与餐饮源协同减排策略、实现空气质量精细化管理的前提, 但目前相关研究较为匮乏。本研究以合肥市长江西路三里庵路段为典型城市街道峡谷, 利用扫描电迁移粒径谱仪(SMPS)与气溶胶化学组分质谱仪(ACSM), 开展了连续 16 天的高时间分辨率观测, 系统解析了该环境下颗粒物的粒径分布、化学特征及来源机制。结果表明: (1) 颗粒物数浓度呈显著“三峰型”日变化特征, 峰值分别出现在早高峰(07:00–09:00)、日间餐饮时段(11:00–13:00)和晚高峰(18:00–21:00), 凸显了机动车尾气与餐饮油烟的叠加贡献; (2) 非难熔亚微米气溶胶(NR-PM₁)以有机物(Org)为主(占比 55%–75%), 硝酸盐次之(15%–25%), 其浓度呈现“早晚高、午后低”的变化规律, 主要受光化学氧化和边界层演变的共同驱动; (3) 正交矩阵因子分解(PMF)源解析识别出 5 类数浓度来源(燃烧源、新粒子生成(NPF)、交通排放、区域传输和混合老化)和 3 类化学组分来源(二次硝酸盐、二次有机气溶胶(SOA)、机动车一次有机气溶胶(POA)); (4) 气象污染耦合效应显著: 低温低湿($T < 10\text{ }^{\circ}\text{C}$, 相对湿度(RH) $< 40\%$)及清洁背景气流有利于 7–20 nm 的 NPF; 高温高湿($T > 30\text{ }^{\circ}\text{C}$, RH $> 70\%$)促进颗粒吸湿增长与二次组分积聚; 低风速($< 1.5\text{ m/s}$)叠加西南风则导致峡谷内污染累积, 并使粒径谱向积聚模态偏移。本研究揭示了城市街道峡谷内纳米-亚微米颗粒物的“排放-成核-老化”全过程, 为城市空气质量精细化管理、机动车尾气与餐饮源协同控制提供了定量科学依据。

关键词: 大气颗粒物; 道路环境; 粒径分布; 化学组成; 源解析; 气象影响

中图分类号: X83

文献标识码: A

Analysis of Particle Size Distributions and Compositional Characteristics in a Central Street Canyon of Hefei

LEI Xiaoqi^{1,2}, ZHOU Jitong², LIN Jun^{2,3}, WANG Qi^{2,4}, WANG Xiujuan⁵,
YU Fajun^{2,6}, WANG Huanqin^{2,6,*}, GUI Huaqiao^{2,6}

(1. School of Life Sciences, Jishou University, Jishou 416000, China; 2. Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China; 3. School of Information and Artificial Intelligence, Anhui Agricultural University, Hefei 230036, China; 4. School of

收稿日期: 2025-12-01

修回日期: 2026-02-02

接受日期: 2026-02-04

DOI: 10.20078/j.eep.20260204

基金项目: 安徽省生态环境科技资助项目(2025hb004); 京津冀环境综合治理国家科技重大专项(2025ZD1201202); 新发突发与重大传染病防控国家科技重大专项(2025ZD01902301); 国家重点研发计划资助项目(2023YFC3705400); 国家自然科学基金面上资助项目(42375124)

第一作者: 雷小琦(2001—), 女, 湖南永州人, 硕士研究生, 主要研究方向为环境颗粒物监测。E-mail: 3337680357@qq.com

*通讯作者: 王焕钦(1982—), 男, 湖南永州人, 研究员, 主要研究方向为环境颗粒物监测等。E-mail: hqwang@im.ac.cn

Electronic and Information Engineering, Anhui Jianzhu University, Hefei 230000, China; 5. School of Microelectronics, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China; 6. Institute of Environmental Hefei Comprehensive National Science Center, Hefei 230088, China)

Abstract: With the rapid increase in motor vehicle numbers, nano- to sub-micron particle pollution in urban street canyons has become an important air-quality concern because of its high spatial heterogeneity and proximity to emission sources. In China, however, high-resolution investigations that simultaneously integrate particle number size distributions, chemical composition, and the source-related formation processes within street-canyon environments remain limited. To address this gap, a 16-day high-time-resolution field campaign was conducted at the Sanlian section of Changjiang West Road in Hefei, a typical urban street canyon influenced by traffic and commercial activities. Particle number size distributions were measured using a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS), while the non-refractory submicron aerosol chemical composition (NR-PM₁) was characterized using an Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM). These measurements were combined with meteorological observations and source apportionment analysis to investigate the emission characteristics, atmospheric processing, and controlling mechanisms of nano- to sub-micron particles in this microenvironment. The results show a pronounced tri-modal diurnal pattern in particle number concentrations. Three distinct peaks were observed during the morning traffic rush (07:00–09:00), lunchtime cooking activities (11:00–13:00), and the evening traffic rush (18:00–21:00), indicating the combined influence of vehicular exhaust and cooking-related emissions. Number concentrations were dominated by particles in the nucleation and Aitken modes during traffic and cooking periods, while accumulation-mode particles increased under stagnant meteorological conditions. Organic aerosol was the dominant component of NR-PM₁, accounting for 55%–75% of the total mass concentration, followed by nitrate (15%–25%). Both organic aerosol and nitrate exhibited higher concentrations during the morning and evening, and lower levels around noon, reflecting the combined effects of emission intensity, photochemical oxidation, and boundary-layer evolution. A positive matrix factorization (PMF) analysis resolved five contributing factors for particle number concentrations: combustion-related emissions, new particle formation, traffic emissions, regional transport, and aged mixed aerosols. For chemical species, three major factors were identified: secondary nitrate, secondary organic aerosol (SOA), and primary organic aerosol (POA). Meteorological conditions played a critical role in regulating particle formation and evolution. Low temperature (<10 °C) and low relative humidity (<40%) under relatively clean background conditions favored new particle formation in the 7–20 nm size range. In contrast, high temperature (>30 °C) and high relative humidity (>70%) promoted particle growth and secondary aerosol accumulation. Additionally, low wind speeds (<1.5 m/s), particularly under southwesterly wind conditions, enhanced pollutant accumulation within the street canyon and shifted the particle size distributions toward the accumulation mode. Overall, the results systematically elucidate the emission characteristics, nucleation processes, and aging behavior of nano- to sub-micron particles in an urban street-canyon environment. The findings provide quantitative evidence for refined urban air-quality management and the coordinated control of vehicular exhaust and cooking-related emissions.

Keywords: Atmospheric particulate matter; Road environment; Particle size distributions; Chemical composition; Source apportionment; Meteorological influence

0 引 言

近年来,城市空气污染治理呈现由质量浓度

控制向颗粒物数浓度控制转变的趋势,尤其在交通密集的中心城区道路环境中,小粒径颗粒物占比显著升高。统计研究表明,直径小于 300 nm 的

纳米-亚微米颗粒物(N-SPM)对总颗粒物数浓度的贡献超过99%^[1],是道路暴露环境中最需要关注的。本研究所关注的7.37~289.00 nm颗粒物覆盖核模态(7~25 nm)、爱根核模态(25~100 nm)以及早期积聚模态(100~289 nm)^[2-4],这些颗粒物不仅能够呼吸系统深部沉积,甚至可以进入血液循环,引发高风险健康效应^[5],同时作为云凝结核前体,显著影响大气辐射平衡与城市能见度^[6]。因此,针对中心城区道路环境开展纳米-亚微米颗粒物的高时间分辨率观测,是当前城市空气质量管理的重要科学需求。

交通排放是城市道路环境中7~300 nm粒径段颗粒物的最主要来源,其过程同时涉及一次排放与快速二次生成。机动车尾气能直接释放大量10~30 nm的核模态颗粒物,并排放NO_x、SO₂与VOCs等前体物,在道路附近区域(10~100 m)经历凝结、氧化与成核过程,颗粒物迅速增长至30~80 nm的爱根核模态区间^[7-8]。研究表明,超细颗粒物(UFP)(粒径<100 nm)以及小粒径PM₁组分浓度通常与交通强度呈显著同步波动^[9],但对于7.37~289.00 nm连续粒径段的粒径谱结构、组成差异,仍缺乏系统研究。

除了粒径分布特征,0.04~1.00 μm颗粒物中非难溶性组分(NR-PM₁)的化学组成是研究道路环境细颗粒物形成机制的重要维度。该粒径段中,有机物(Org)、硝酸盐(NO₃⁻)、硫酸盐(SO₄²⁻)和铵盐(NH₄⁺)是最主要的化学组分,分别反映交通一次排放、夜间NO_x二次转化、区域性SO₂氧化及无机盐中和过程^[10-11]。

在空间结构方面,中心城区道路受街道峡谷效应影响显著。建筑物两侧围挡,局地湍流受限,尾气颗粒物在近地层滞留时间更长,导致N-SPM呈现明显的累积特征^[12-13]。国际研究广泛关注<100 nm超细颗粒物在街道峡谷的行为,但对100~300 nm的积聚前期颗粒物在道路环境中的增长机制与区域输送贡献仍缺乏证据。此外,餐饮排放与配送车辆活动使得中午时段的有机组分和小粒径数浓度易出现额外峰值^[14-16],这是中心城区典型的局地排放特征。

尽管欧美等国家道路微环境研究已较为成熟,包括高时间分辨率粒径谱、化学组分、车辆工况与街道峡谷建模^[12, 17-18],但国内在中心城区道路环境开展“粒径谱(7~300 nm)+NR-PM₁化学组成”同步观测的工作仍十分有限。在长三角快速

城市化背景下,机动车保有量持续上升,使道路环境颗粒物数浓度呈现高位运行特征^[19]。合肥作为区域中心城市,对其中心城区道路环境N-SPM的动态分布、化学组成与来源贡献仍缺乏实测证据。

基于上述背景,本研究在合肥典型交通干道开展外场实验,利用扫描电迁移粒径谱仪(SMPS, 7.37~289.00 nm, 113 s分辨率)与气溶胶化学组分质谱(ACSM, PM₁非难熔组分, 1 min分辨率)同步观测,辅以车流量与气象数据,旨在(1)解析春季街道峡谷N-SPM的粒径谱结构与日演化规律;(2)阐明NR-PM₁中Org、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺的动态变化;(3)量化交通排放、新粒子生成、区域传输与餐饮源对粒径谱及化学组分的贡献;(4)探究道路暴露环境中交通源主导的纳米-亚微米颗粒物污染机制。研究结果可为长三角城市精细化空气质量管理与人群健康暴露评估提供科学依据。

1 材料和方法

1.1 观测区域与时间

本次观测时间为2025年3月10日至3月26日,观测路段为合肥市长江西路三里庵附近路段。长江西路主干道位于安徽省合肥市蜀山区和肥西县境内,东西走向,是合肥市最繁忙的街道。路段下方为合肥轨道交通2号线,且长江西路主干道沿途附近商业密布,主要有之心城购物中心、安徽国际购物广场(国购广场)等。该街道由8条机动车车道和2条非机动车车道组成,交通流量大,机动车颗粒物的排放量大。该街道具有车流量大、人口密集,而且街道两侧具有许多建筑物等特征,是典型的城市道路小区域场景。观测点设在合肥市长江西路喆啡酒店二楼平台,经纬度为(117°17'32.71" E, 31°52'49.77" N)(图1)。气象数据包括温度、风速、风向、相对湿度(RH)和降雨量,时间分辨率为1 h。

1.2 数据采集与参数设置

本研究颗粒物粒径谱数据观测仪器为3938型SMPS,是一种广泛用于颗粒物粒径谱分布实时在线监测的仪器,主要包括差分电迁移率分析仪(Differential Mobility Analyzer, DMA)、超细凝结核计数器(Ultrafine Condensation Particle Counter, UCPC)、限流孔和气泵等结构。其中DMA为Model 3081 Long DMA, CPC为Model 3776 UCPC。本研究颗粒物粒径测量范围为7.37~289.00 nm,样气流速为1.0 L/min,鞘气流量为10.0 L/min,时间



图1 观测点位及附近环境示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the observation site and its surrounding environment

分辨率为 113 s。

NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 Org 等化学组分浓度由气溶胶化学组分质谱(Aerosol Chemical Speciation Monitor, ACSM)测得,实时并直接地定量检测和显示 0.04~1.00 μm 颗粒物中 NR- PM_{10} 的质量浓度和化学组成。

气象数据引自镜像地球开放平台(<https://open.mirror-earth.com/>),底层源为 ECMWF ERA5 与 NOAA-GFS 全球同化系统,时间分辨率 1 h,经平台统一插值与序列化处理,数据精度与源模式一致。

1.3 PMF 源解析方法

PAATERO 等^[20]于 1993 年提出的正交矩阵因子分解模型(PMF),是一种广泛用于源解析的受约束多元统计模型,尤其在大气颗粒物、污染源识别等领域应用较多。PMF 模型通过对输入观测矩阵进行分解,估算各污染源的贡献和特征谱,从而识别不同来源。模型假设观测数据矩阵 X 可表示为

$$X = C \times F + E \quad (1)$$

式中: C 为源矩阵, F 为贡献矩阵, E 为残差矩阵。本研究采用美国环境保护署(EPA)开发的 PMF 5.0 软件进行源解析计算,输入数据包括不同粒径段数浓度及其对应的不确定度。

不确定度计算如下所示:

$$\delta_{ij} = \alpha \cdot (x_{ij} + \bar{x}_i) \quad (2)$$

$$s_{ij} = \delta_{ij} + C \times \bar{x}_i \quad (3)$$

式中: δ_{ij} 为测量误差; α 为常数; x_{ij} 为第 i 类中第 j 个样品的观测值; \bar{x}_i 为第 i 类样品的算数平均值; s_{ij} 为不确定度; C 为常数项。参数 α 与 C 的选取需确保模型计算结果的比例残差控制在 ± 2 (或 ± 3) 范围内。多数研究通过对比不同参数下的 Q 值与

残差分布确定最优组合。参考前人研究与模型稳定性测试^[21],本研究取 $\alpha = 0.01$ 、 $C = 0.20$ 作为不确定度计算的参数。

对于颗粒物组分数据,已知方法检出限及相应的检出数据,使用 EPA 推荐的不确定度计算方法^[20,22]。

不确定度计算如下所示:

$$U_{nc} = \begin{cases} \frac{5}{6} MDL & (x_{ij} \leq MDL) \\ \sqrt{(EF \times x_{ij})^2 + (0.5 \times MDL)^2} & (x_{ij} > MDL) \end{cases} \quad (4)$$

$$EF = \frac{x_{ij} - \bar{x}_i}{\bar{x}_i} \quad (5)$$

式中: MDL 为方法检出限; EF 为误差计算。方法检出限为有机物: 0.30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 硫酸盐: 0.04 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 硝酸盐: 0.02 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 铵盐: 0.50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。

2 实验结果与讨论

尽管实现了同步观测,但考虑到 SMPS 与 ACSM 在时间分辨率、粒径定义、采样条件以及数据质量控制方面存在差异,为避免额外假设引入不确定性,本研究分别分析粒径分布与化学组分,以确保结论的稳健性和可解释性。

2.1 颗粒物粒径分布

基于 SMPS 对合肥市春季(2025 年 3 月 10 日至 3 月 26 日)的连续观测数据,分析不同时间尺度下粒径谱数浓度的变化特征。通过统计日变化规律、比较工作日与非工作日差异,并结合典型气象条件(如温度、湿度、风速、及风向等)探讨气象因素对粒径分布的影响,为理解春季城市颗粒物来源及演化机制提供支撑。

2.1.1 合肥市颗粒物粒径谱数浓度日变化特征分析

图 2~4 展示了 2025 年春季(3 月 10 日至 3 月 18 日)合肥市大气颗粒物在 7.37~289.00 nm 范围内的粒径谱数浓度及其日变化特征。整体来看,颗粒物数浓度在时间上呈现明显的三峰型日变化规律,即早晨(约 7:00~9:00)和傍晚(约 18:00~21:00)出现显著峰值,而中午时段(约 11:00~13:00)浓度也相对较高,浓度范围介于 $2.00 \times 10^4 \sim 5.00 \times 10^4 \text{ \#}/\text{cm}^3$ 之间,平均值为 $3.09 \times 10^4 \text{ \#}/\text{cm}^3$,在国内城市处于较高水平^[14]。

早晚两个峰值主要受交通排放与边界层动态变化的共同影响。早高峰期间机动车尾气排放集中释放大量细颗粒物(粒径 < 50 nm),在近地层累

积形成明显的核模态峰。随着日出后地面受热、边界层高度上升,颗粒物被稀释,浓度下降。傍晚时段则因太阳辐射减弱、边界层高度降低,空气扩散能力减弱,加之通勤交通再度密集,颗粒物浓度重新升高,形成第二个峰值。

然而,值得注意的是,中午时段并未完全形成低谷,仍可观察到轻微的次峰或平台型上升。该现象与观测点位于合肥市中心商业地带的特征密切相关。该区域餐饮业密集,午餐时段人流与车流量显著上升。餐饮油烟排放中含有大量超细颗粒物,尤其是直径 10~60 nm 的有机凝结核,能够显著提升颗粒物的局地浓度^[15]。此外,外卖配送与短途机动车活动在中午达到高峰,也会增强局地尾气排放,进一步加剧颗粒物累积效应。因此,中午时段的粒径谱次峰更多反映局地人为源排放(餐饮与短时交通)叠加效应,而非典型气象驱动结果。

多项城市观测研究亦证实,在商业区或大学城等餐饮密集区域,中午时段烹饪排放是超细颗粒物的重要来源^[23-24]。这说明在城市中心观测点,中午粒径谱的轻微上升是局地排放特征的直接表现,与典型郊区或背景站点观测结果存在差异。

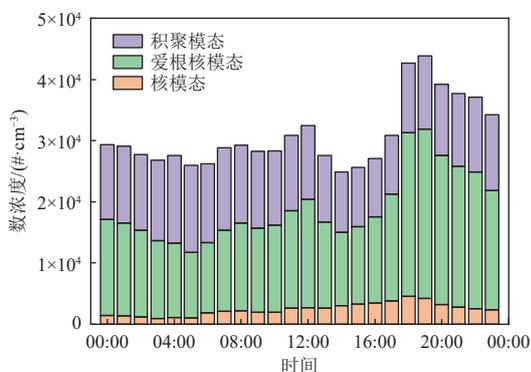


图 2 不同模态颗粒物数浓度堆积图

Fig. 2 Stacked bar chart of particle number concentrations in different modes

由图 2 可知,合肥市春季大气颗粒物以爱根核模态(25~100 nm)为主,占总数浓度的 50%~60%,是数浓度的主要贡献者。核模态和爱根核模态颗粒物主要出现在交通活动强烈或光化学反应旺盛的时段,而积聚模态颗粒物(>100 nm)则在夜间浓度较高,可能有颗粒物老化或区域传输情况发生。

图 3 进一步揭示了不同模态颗粒物在日变化中的主导贡献。

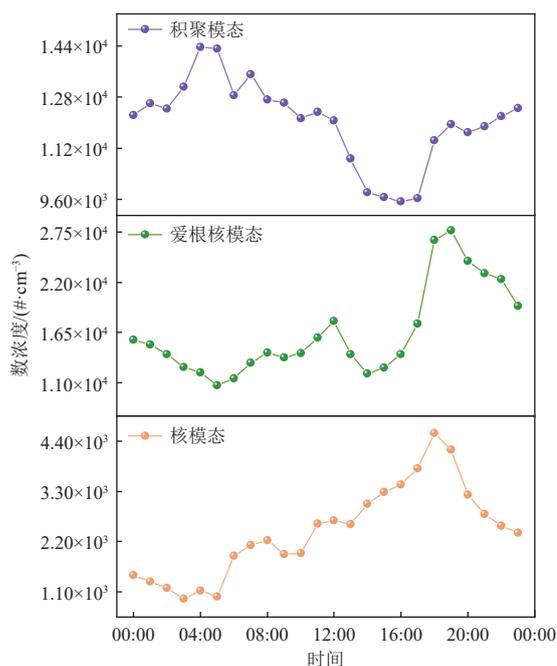


图 3 不同模态颗粒物数浓度日变化曲线

Fig. 3 Diurnal variations of particle number concentrations in different modes

核模态(7.37~25.00 nm): 呈明显昼间高、夜间低的变化趋势。数浓度在 3 种模态中最低,平均占比为 7.79%,其浓度范围大致为 $1.0 \times 10^3 \sim 5.0 \times 10^3 \text{ #/cm}^3$ 。主要来源于大气中的新粒子生成过程以及机动车尾气等一次排放,其浓度波动可能与太阳辐射强度及交通活动频率密切相关^[25]。

爱根核模态(25~100 nm): 全天占比最高,平均占比为 52.32%,其浓度变化范围集中在 $1.0 \times 10^4 \sim 3.0 \times 10^4 \text{ #/cm}^3$ 之间。早晚高峰最显著,是机动车排放的主要响应区间。

积聚模态(100~289 nm): 数浓度平均占比为 39.90%,其浓度范围多集中在 $0.9 \times 10^4 \sim 1.5 \times 10^4 \text{ #/cm}^3$ 之间。积聚模态寿命一般较长,平均可达 7~10 天,且观测区域为市中心路段,道路两边高楼林立,不利于快速扩散,在早晚高峰时段有所小幅上升,并且夜间逆温建立后持续累积增长,于清晨(04:00~05:00)达到巅峰。

图 4 对日均粒径谱进一步说明,上午至中午时段粒径分布主峰逐渐向爱根核模态粒径方向偏移,表明在该时段机动车移动源持续排放,50~100 nm 粒径颗粒物逐渐积累。与此同时,夜间低温高湿的条件有利于气溶胶吸湿增长与凝聚,从而增强积聚模态颗粒物的数量^[26]。

综合图 2~4,合肥市春季颗粒物粒径分布呈现明显的人为排放主导与气象过程耦合特征。白天

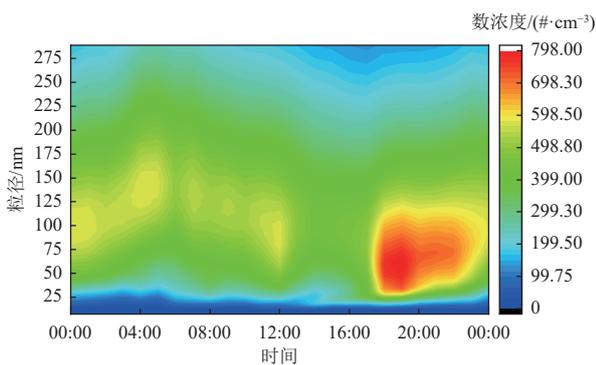


图 4 日均粒径谱图

Fig. 4 Daily average particle size distributions

光化学活性强、新粒子生成活跃;夜间静稳条件下老化颗粒物富集。爱根核模态的高占比反映出机动车排放对城市气溶胶数浓度的主导作用,且中午粒径谱的左移也揭示了机动车排放过程在城市小区域颗粒物演化中的重要性。

2.1.2 工作日与非工作日颗粒物粒径谱分布差异

为了探讨城市背景下颗粒物在工作日和非工作日下的粒径分布差异,将工作日与非工作日的粒径数浓度分布进行了对比分析,结果如图 5 所示。

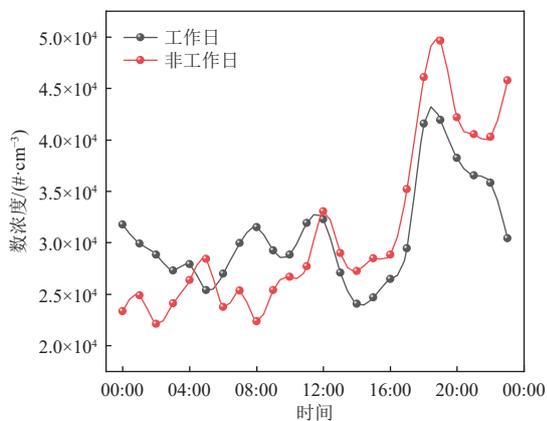


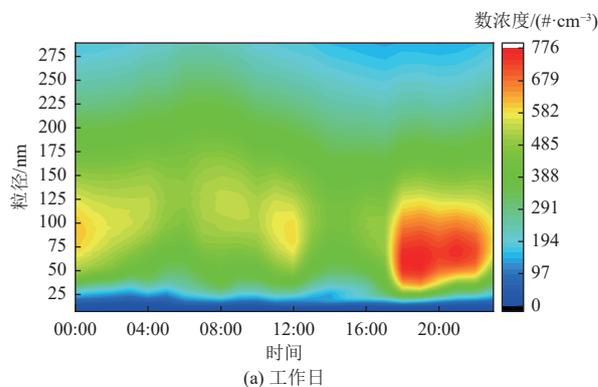
图 5 工作日与非工作日总数浓度变化曲线图

Fig. 5 Diurnal variations of total particle number concentrations on weekdays and weekends

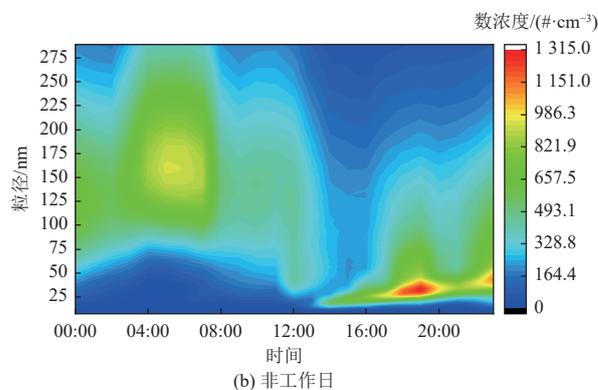
由图 5 可见,工作日与非工作日的颗粒物数浓度随时间呈现明显差异。工作日和非工作日均出现双峰结构,对应典型的早晚交通高峰时段。

图 5 和图 6 表明,工作日颗粒物数浓度早高峰峰值出现在 07:00-09:00,主要集中于核模态与爱根核模态粒径区间(10~80 nm);晚高峰峰值出现在 18:00-20:00,以爱根核模态颗粒物为主,部分向积聚模态扩展。非工作日期间,这 2 个峰值明显减弱或延迟,早高峰推迟约 1 h(约 08:00-10:00)。由于观测地点商场林立,周末有明显人流

车流增加迹象,使得非工作日晚高峰幅度相较工作日明显较高,表明交通流量与人类活动节奏对粒径分布具有直接驱动作用。



(a) 工作日



(b) 非工作日

图 6 工作日与非工作日粒径谱图

Fig. 6 Particle number size distributions on weekdays and weekends

由图 7 可知,不同模态和不同时段的颗粒物数浓度在工作日与非工作日差异明显。核模态在工作日早高峰时段出现显著上升,峰值较非工作日高出约 30%~50%。此粒径段主要由新粒子组成,其生成机制与机动车尾气中 SO_2 、 NO_x 和 VOCs 的光化学转化及局地凝结核形成密切相关^[22]。当交通活动增强、排放源活跃且混合层较低时,气态前体物易在近地层发生快速成核,导致核模态颗粒物浓度骤增^[27]。非工作日傍晚核模态颗粒物浓度升高可能与机动车尾气排放变化有关;工作日早晨爱根核模态颗粒物浓度升高,可能与核模态颗粒物的生成机制类似或者由核模态颗粒物凝结增长而来。积聚模态的变化幅度相对较小,主要受颗粒物老化与区域传输影响。晚高峰后约 2~3 h 内(20:00-23:00)积聚模态颗粒物略升,反映部分小粒径颗粒物通过凝并和二次生成过程向大粒径转化。此外,积聚模态颗粒物寿命较长,对气象扩散条件敏感。夜间若稳定层增强或风速较低,

积聚模态颗粒物浓度将进一步积累。

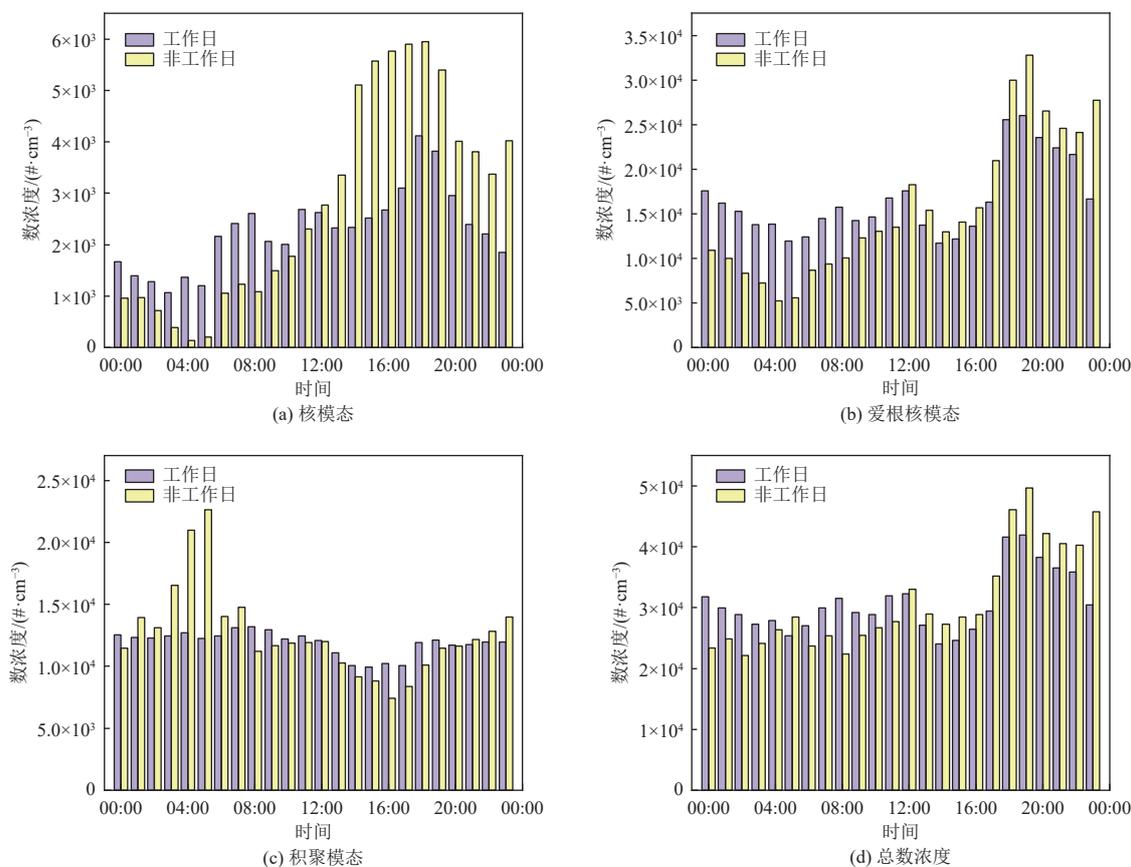


图7 工作日-非工作日颗粒物数浓度柱状图

Fig. 7 Bar chart of particle number concentrations on weekdays and weekends

综合来看,工作日核模态与爱根核模态颗粒物在早高峰时段显著增加,峰值提前且幅度较大;非工作日核模态与爱根核模态颗粒物在晚高峰时段显著增加,峰值提前且幅度较大。非工作日晚高峰核模态与爱根核模态颗粒物显著高于工作日,导致非工作日夜晚积聚模态显著积累,明显高于工作日。上述特征均揭示了交通与排放源节律对超细颗粒物生成、长大与积聚过程的主导作用

2.1.3 天气条件对颗粒物粒径分布的影响

气象条件是调控大气颗粒物生成、转化及扩散的重要外部因素。为分析不同气象要素对粒径分布的影响,本研究选取相对湿度、温度、风速和风向4个典型变量进行对比分析。结果表明,这些要素在不同粒径模态(核模态、爱根核模态、积聚模态)上的作用机制存在明显差异。

温度与相对湿度在颗粒物成核与凝结增长过程中存在显著耦合效应。图8显示,当温度较低($5 \sim 15^\circ\text{C}$)且相对湿度较低($< 50\%$)时,核模态颗粒物浓度显著升高,表明干冷条件更有利于新粒子

生成。低温降低了气态前体物的饱和蒸气压,使成核所需的过饱和度更易达到,从而触发新粒子生成。当温度升高($> 20^\circ\text{C}$)且相对湿度较高($70\% \sim 90\%$)时,核模态和爱根核模态颗粒物显著减少,而积聚模态颗粒物浓度明显增加。高温加快气态有机物的氧化反应,生成低挥发性有机物;同时,高温高湿环境促进颗粒物表面的吸湿增长,使小粒径颗粒物迅速凝结长大。由此,温湿度的共同作用决定了粒径分布的主导过程:低温低湿环境以成核主导,粒径较小;高温高湿环境以凝结与吸湿增长主导,粒径较大。

风场条件主要通过改变大气稀释能力与污染源输入方向,间接影响各粒径段颗粒物的空间分布特征。如图9所示,不同风速与风向条件下的颗粒物数浓度呈现明显的空间分布差异。当风速较低($< 1.5 \text{ m/s}$)时,颗粒物数浓度普遍升高,尤其是积聚模态颗粒物在静稳天气中显著累积;风速增大($> 3.0 \text{ m/s}$)后,湍流扩散增强,各模态颗粒物浓度整体下降,核模态和爱根核模态削减最为明

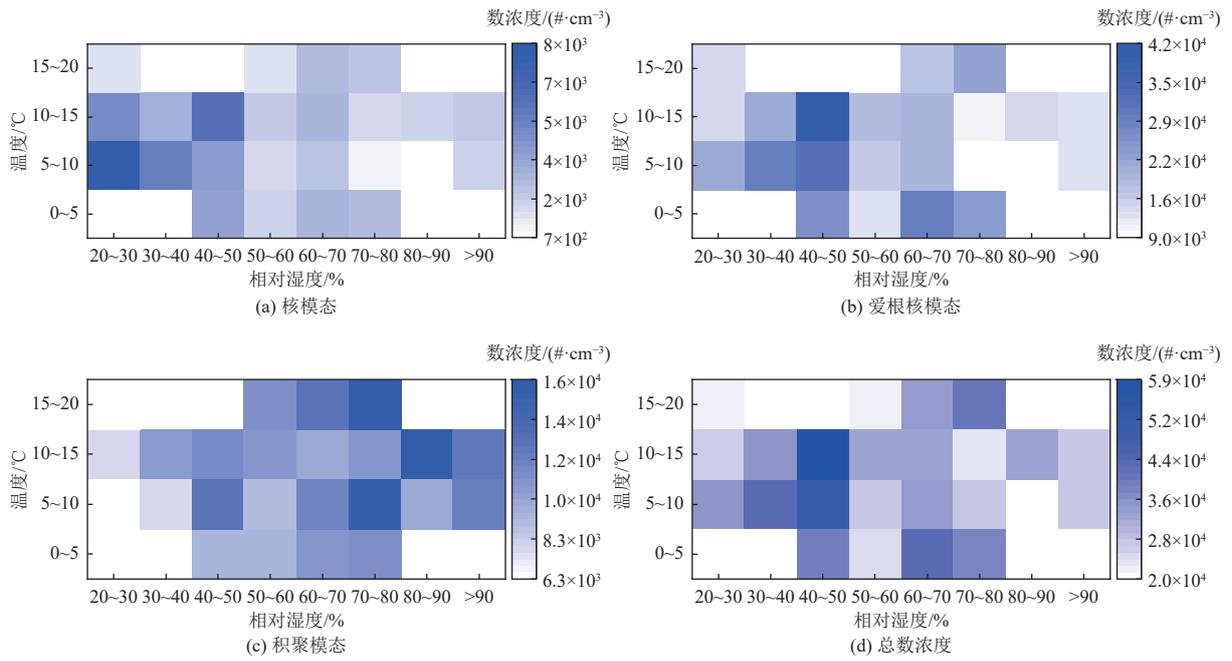


图 8 温度、湿度对颗粒物数浓度的共同影响

Fig. 8 Combined effects of temperature and relative humidity on particle number concentrations

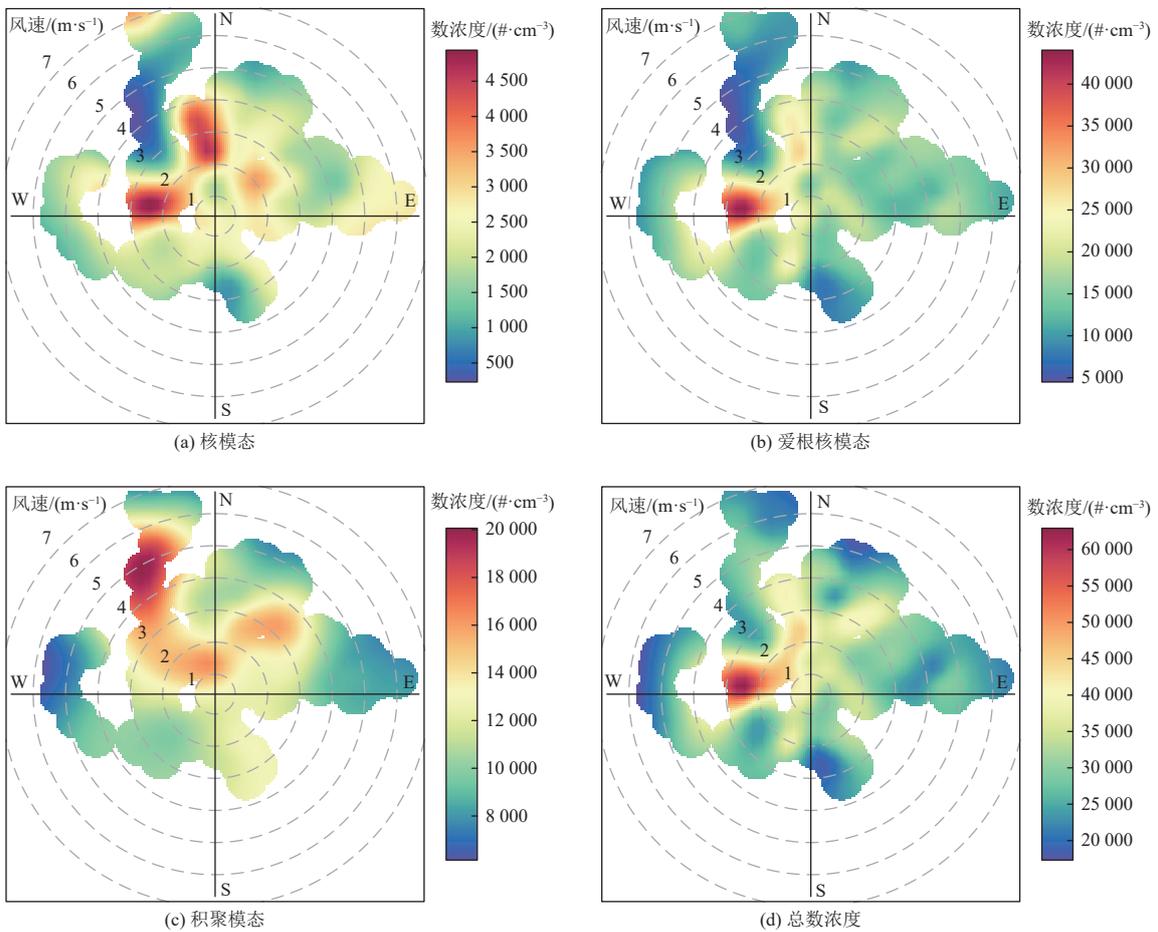


图 9 颗粒物数浓度随风向风速变化图

Fig. 9 Variations in particle number concentrations with wind speed and wind direction

显。从风向分布来看,图 9 显示颗粒物数浓度在西南-西风向下普遍较高,而在北风与东北风条件下显著偏低。这表明研究区上风向的商业排放区与交通排放是细颗粒物的重要外来源。当风向由西南转为北向时,背景空气较为清洁,颗粒物数浓度水平迅速下降,反映出区域输送对城市超细颗粒物污染具有显著调制作用。进一步分析发现,西南风条件下的高浓度区域主要集中在爱根核模态颗粒物(25~100 nm)范围,说明交通尾气排放和二次有机气溶胶生成共同贡献了较高的超细颗粒物浓度。积聚模态颗粒物(>100 nm)在低风速条件下的空间分布相对均匀,显示这些颗粒物更易在静稳天气中积累,而不完全依赖于瞬时传输。综上可见,风速决定了颗粒物的稀释与扩散效率,而风向决定了污染物输入与清除的主导路径。高浓度对应低风速与污染源上风向的组合,而清洁条件通常伴随较高风速与北向气流。因此,风场变化既能改变颗粒物总量,也能重塑粒径分布结构:低风速有利于积聚模态颗粒物累积,高风速及清洁风向则促进小粒径颗粒物扩散与稀释。

因此,低温低湿且低风速的环境最易触发核模态颗粒物爆发式增长;高温高湿且静稳条件下则促进颗粒物长大并积聚为积聚模态;而高风速与清洁风向有利于污染物的快速稀释与迁移。

2.2 NR-PM₁ 化学组分变化

为探究城市细颗粒物的化学组成特征及其形成机制,监测了合肥市 NR-PM₁ 主要化学组分,包括 Org、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺。通过对不同时间尺度(昼夜、工作日、非工作日)及气象条件的分析,揭示细颗粒物化学成分的日变化特征及其影响因素。

2.2.1 合肥市颗粒物化学组分质量浓度日变化特征分析

合肥市 NR-PM₁ 质量浓度在观测期内呈显著的日变化规律(图 10、图 11)。总体上, NR-PM₁ 物种平均质量浓度呈现出 Org>NO₃⁻>NH₄⁺~SO₄²⁻的特征,其中 Org 占比最高,为 55%~75%,其次为 NO₃⁻(15%~25%), SO₄²⁻ 约占 5%~10%, NH₄⁺ 约占 5%~10%,这与京津冀中心城市北京观测结果一致^[28]。

日变化特征显示,总体浓度范围为 6.1~12.9 μg/m³,平均约为 9.7 μg/m³,表现出典型的“早晚高、午后低”特征。凌晨至早晨(00:00~07:00):浓度逐渐升高,至 7:00 出现首个峰值(11.5 μg/m³),主要由 NO₃⁻ 与 Org 贡献;午后(12:00~16:00):总浓

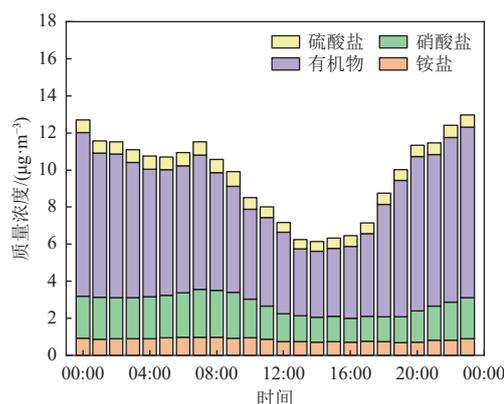


图 10 化学组分日变化柱状堆积图

Fig. 10 Stacked variations of the diurnal variations of chemical components

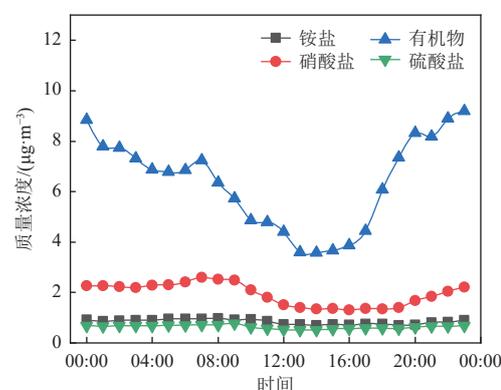


图 11 不同化学组分日均变化图

Fig. 11 Average diurnal variations of different chemical components

度降至日最低(约 6.3 μg/m³),为光化学扩散与边界层抬升的共同结果;夜间(18:00~23:00):再度升高,形成第二峰(约 12.9 μg/m³),主要受夜间气象静稳及排放累积影响。

图 11 显示, Org 浓度波动于 3.5~9.2 μg/m³ 之间,呈双峰分布,在清晨 07:00 和夜间 20:00 时均出现一个小峰值,这可能与早晚高峰时段的交通排放有关。在夜间积累至 23:00 达到顶峰,可能与每日晚高峰的交通排放以及晚餐造成的烹饪排放有关^[29],而在中午时段(10:00~12:00)的一段平缓期,这可能是由于附近区域居民的中午烹饪排放有关,均与用餐时段相吻合。NO₃⁻ 昼低夜高,峰值出现在 07:00,可能是由于晚上低温高湿的环境导致 NH₄NO₃ 生成与稳定性增强^[27]。SO₄²⁻ 变化相对平稳,在午后略升,反映 SO₂ 的光化学氧化过程。NH₄⁺ 与 NO₃⁻ 高度协同,呈现良好线性关系(相关系数为 0.94),说明 ACSM 检测的 NH₄⁺ 主要以 NH₄NO₃ 的形式存在。

整体而言,合肥市 NR-PM₁ 的组分变化表现出典型的白天生成与夜间积累的特征,昼间交通直接排放和光化学反应驱动二次生成,夜间扩散条件不利促使污染积聚。

2.2.2 工作日与非工作日化学组分质量浓度变化差异

如图 12 所示,合肥市 NR-PM₁ 主要化学组分在一周内呈现明显的周期性变化特征。总体上,以 Org 和 NO₃⁻ 的波动为主。Org 在一周内均占主导地位,基本占总质量的一半以上,周末较于工作日平均质量浓度提升约 35%。与观测地点所处环境为拥有大量商场和小吃街的市中心并且周末有明显人流增加迹象的情况一致。这种变化表示,Org 受人为活动强度影响明显,尤其与生活源(餐饮、燃烧排放等)密切相关。NO₃⁻ 则在周中浓度显著提升,较非工作日平均质量浓度提升约 85%。这表明 NO₃⁻ 主要来源于通勤期间机动车尾气排放的 NO_x 在静稳气象条件下的二次转化。夜间温湿条件有利于 NH₄NO₃ 的生成,进一步增强了工作日夜间的累积效应。SO₄²⁻ 与 NH₄⁺ 浓度变化较平稳,在周中略有升高,周末略降。其变化幅度较小,说明硫酸盐的生成主要受区域输送与光化学氧化控制,而非局地排放源所驱动。NH₄⁺ 与 SO₄²⁻、NO₃⁻ 呈良好协同变化关系,反映其主要用于中和酸性组分形成 (NH₄)₂SO₄ 与 NH₄NO₃。

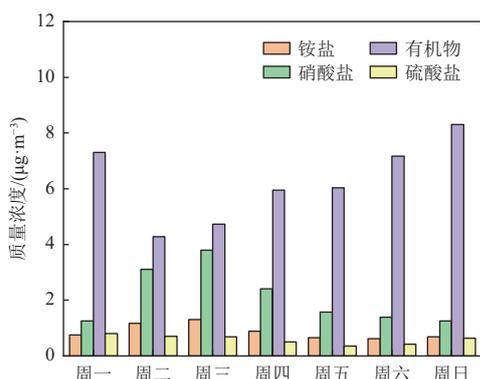


图 12 不同化学组分质量浓度周变化图

Fig. 12 Weekly variations of mass concentrations for different chemical components

综上,合肥市中心区域的 NR-PM₁ 呈现“周末以生活源为主、周中以交通源为主”的混合污染特征。

2.2.3 天气条件与化学组分质量浓度变化差异

由图 13 可知,合肥市 NR-PM₁ 各组分对温湿条件的响应表现出“低温高湿促进无机二次盐积

累,高温高湿促进有机与硫酸盐生成”的差异化机理。NO₃⁻ 与 NH₄⁺ 在夜间低温高湿条件下质量浓度显著升高,这极有可能是低温高湿的环境促进了 N₂O₅ 的水解作用和硝酸盐(NH₄NO₃)从气相到颗粒相的分配增加导致^[30],这与前文夜高昼低的日变化情况也相一致。Org 在高温高湿且扩散较弱时更易吸湿增长与二次生成,与午后-傍晚及静稳夜间的升高相一致。SO₄²⁻ 在高温与较强光照时段,SO₂ 气相氧化途径更活跃,午后-傍晚出现单峰型升高,而在高 RH 夜间也可经水相氧化增强。

温度和相对湿度的联合作用决定了无机二次盐与有机组分的生成强弱和粒相稳定性。在低温高湿环境下,NO₃⁻ 与 NH₄⁺ 更易积累,而高温且相对湿度适中时 SO₂ 气相氧化和二次有机气溶胶生成增强。

从图 14 可见,Org 和 SO₄²⁻ 浓度在西南风(SW)与东南风(SE)方向均呈显著升高,而北风(N)与东北风(NE)方向浓度最低。这表明合肥市 NR-PM₁ 的高浓度事件与来自西南-东南方向的气团输入密切相关。此外,风速较低(<2 m/s)时,污染物浓度显著升高,显示静稳条件下污染物易积聚,而高风速(>4 m/s)则对应较低浓度区,表明强扩散有助于污染物稀释。Org 浓度在西南(SW)部的低风速区(1~2 m/s)较为集中。这与观测点周边商业区、餐饮集中区的生活源排放相吻合,说明有机组分主要受本地排放与静稳扩散受限影响。NO₃⁻ 与 NH₄⁺ 的分布特征相似,在东北风(NE)条件下浓度较高,尤其在风速低于 4 m/s 时,说明该类组分的形成与交通 NO_x 排放、二次转化及局地积聚密切相关。SO₄²⁻ 在东南风向(SE)的浓度最高,呈相对分散分布。该方向对应合肥主城区工业区及其区域传输路径,显示 SO₄²⁻ 的来源除本地排放外,还存在明显的区域性传输贡献。

2.3 溯源分析

本研究利用 EPA PMF 5.0 对合肥城市道路环境 7.37~289.00 nm 颗粒物数浓度和 NH₄⁺、SO₄²⁻、NO₃⁻ 和 Org 等化学组分浓度分别进行来源解析。

2.3.1 不同粒径颗粒物来源解析

当因子数为 5 时, Q_{Robust} 与 Q_{True} 值接近,模型表现出良好的拟合稳定性;其数浓度拟合值与观测值之间具有显著相关性(R²>0.95),表明此时模型能够较好地反映颗粒物数浓度的源贡献特征。

结合图 15,对颗粒物数浓度的 5 个来源因子进行识别分析。因子 1 主峰在 50~100 nm,次峰

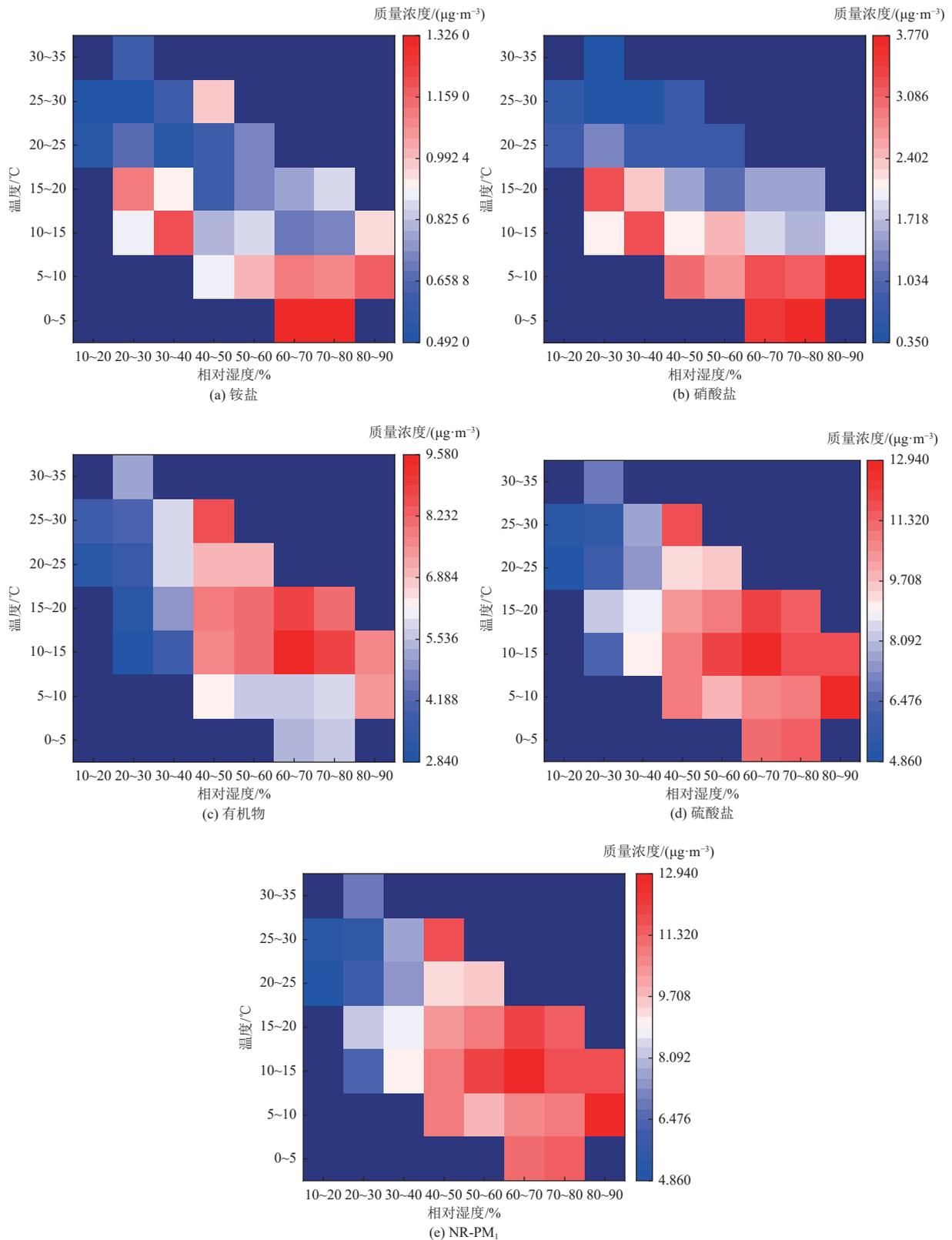


图 13 温度、湿度对不同化学组分浓度的共同影响

Fig. 13 Combined effects of temperature and relative humidity on the concentrations of different chemical components

在 100~200 nm, 7~25 nm 和 25~50 nm 较小, 属于典型的燃烧排放老化后的粒径分布, 故因子 1 识别为燃烧源。因子 2 在 10~25 nm 出现非常尖锐

的高度峰值, 对 7.37~25 nm 贡献最大, 主要在核模态颗粒物范围, 可能来源新粒子生成事件(NPF)。因子 3 主峰在 25~50 nm, 在核模态与爱根核模态

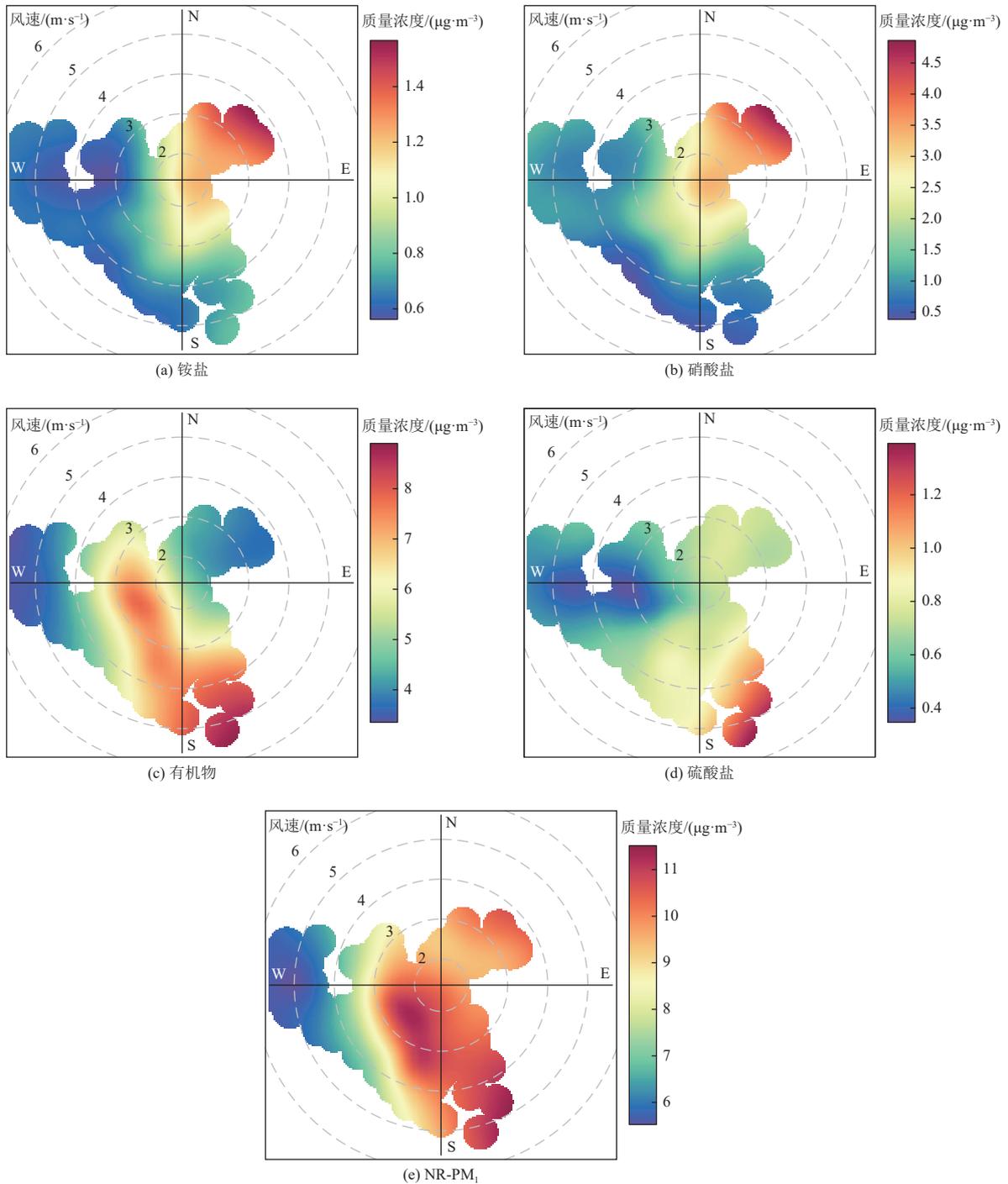


图 14 不同化学组分浓度随风向风速变化图

Fig. 14 Variations of different chemical component concentrations on wind speed and wind direction

交界处呈现较宽的分布,可能来源于新鲜交通排放。因子 4 在 100~200 nm 粒径段压倒性强峰,其他粒径贡献极低,是典型的积聚模态范围,通常由二次生成过程与长距离传输主导,来源极有可能为区域传输的二次气溶胶。因子 5 在 25~289 nm 呈广谱分布,其中 50~200 nm 最强,随粒径增大贡献度变大,可能为多种来源混合并且经过长时间老化形成,故将该因子定义为混合老化源。

2.3.2 NR-PM₁ 不同组分来源解析

当因子数为 3 时, Q_{Robust} 与 Q_{True} 较为接近,不同化学组分拟合值与实际值拟合效果较好 ($R^2 > 0.90$),解析结果较为合理。

结合图 16,对 NR-PM₁ 不同组分的 3 个来源因子进行识别分析。因子 1 以 NO_3^- 为主,且 NH_4^+ 有明显贡献,Org 有一定贡献但不占主导,呈典型二次无机硝酸盐谱。其质量浓度在夜间及高

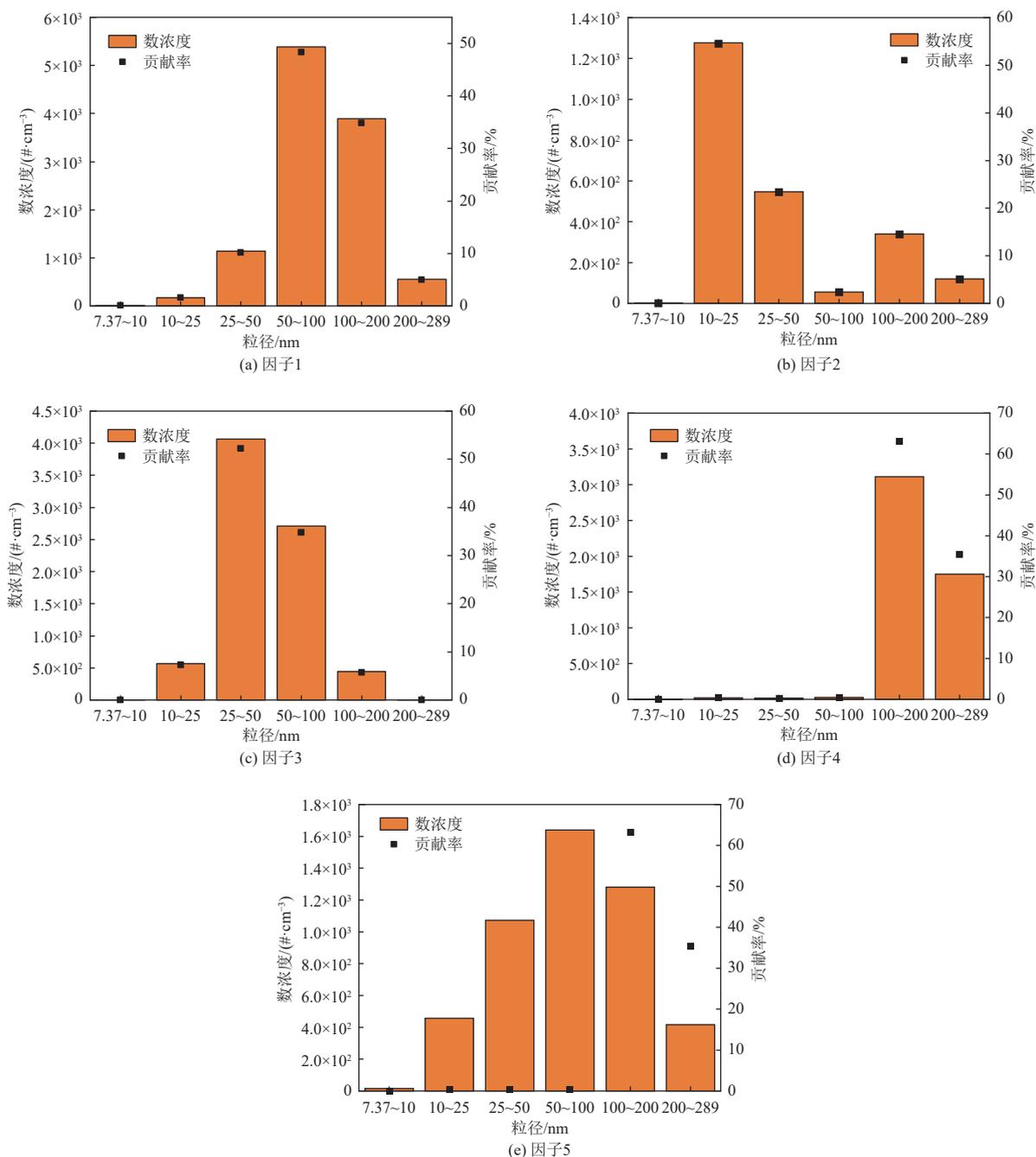


图 15 不同来源下颗粒物粒径分布变化图

Fig. 15 Variations in particle number size distributions for different sources

湿低温条件下显著升高,表明主要由区域 NO_x 经夜间 N₂O₅ 水解或日间 OH 氧化生成,为区域二次硝酸盐。因子 2 由 Org 主导,有机物占总量 60% 以上,并且存在少量 NH₄⁺、SO₄²⁻,为二次有机气溶胶(SOA)背景源。因子 3 有机物较高,有机物贡献率在 85% 以上,远高于因子 2,而无机组分几乎没有,该因子则代表未经二次化学转化的新鲜机动车排放的初级有机气溶胶(POA),包括润滑油挥发及尾气未完全燃烧组分,为局地交通源直接贡献。

3 结 论

本研究通过同步获取合肥市春季道路环境颗粒物的粒径谱与化学组分数据,深入分析了城市纳米-亚微米颗粒物的分布特征、演化机制及主要来源,主要结论如下。

(1) 粒径分布特征显著受交通与局地活动驱动:颗粒物数浓度呈典型“三峰型”日变化,早、晚高峰与午间餐饮时段浓度升高,爱根核模态(25~100 nm)为最主要贡献者,占比超过 50%,反

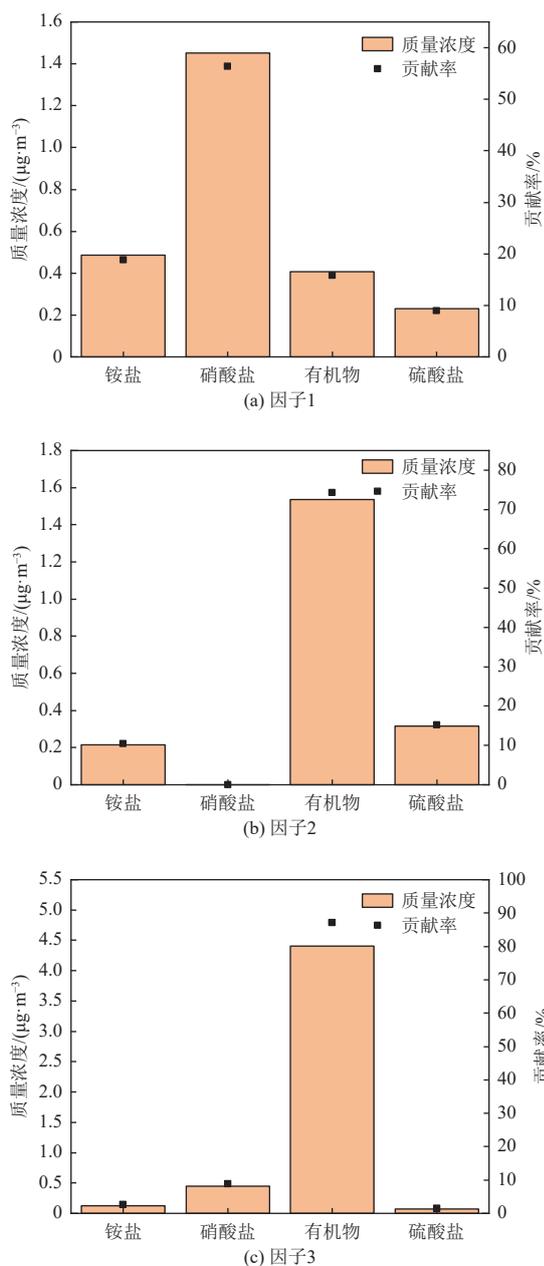


图 16 不同来源下化学组分浓度变化图

Fig. 16 Variations of chemical component concentrations for different sources

映机动车排放的主导作用。

(2) 化学组成以有机物为主, 呈现明显日变化与周变化规律: NR-PM₁ 中 Org 占比最高, NO₃⁻ 次之, 二者在夜间与早晚高峰浓度升高, 表现出与餐饮等人为源的显著影响。工作日与非工作日差异明显, 非工作日 Org 浓度升高, NO₃⁻ 在工作日更为突出, 呈现“非工作日以生活源为主、工作日以交通源为主”的混合污染特征。

(3) 气象条件对颗粒物行为具有显著调控作用: 低温低湿有利于新粒子生成, 高温高湿促进颗

颗粒物吸湿增长与二次转化, 低风速和西南风条件下污染物易积聚, 风向与风速共同决定了污染物的输入与清除路径。

(4) 源解析揭示多源共存与二次转化过程: PMF 模型识别出交通排放、燃烧源、新粒子生成事件、区域传输及混合老化源等多个来源, 化学组分则以二次硝酸盐、二次有机气溶胶和一次机动车有机气溶胶为主, 表明合肥市道路环境颗粒物污染为一次排放与二次生成并重的复合污染类型。

参考文献 (References):

- [1] KUMAR P, MORAWSKA L, BIRMILI W, et al. Ultra-fine particles in cities[J]. *Environment International*, 2014, 66: 1–10.
- [2] KOMPALLI S K, NAIR V S, JAYACHANDRAN V, et al. Particle number size distributions and new particle formation events over the northern Indian Ocean during continental outflow[J]. *Atmospheric Environment*, 2020, 238: 117719.
- [3] SHEN X J, SUN J Y, ZHANG Y M, et al. First long-term study of particle number size distributions and new particle formation events of regional aerosol in the North China Plain[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, 11(4): 1565–1580.
- [4] YADAV S K, KOMPALLI S K, GURJAR B R, et al. Aerosol number concentrations and new particle formation events over a polluted megacity during the COVID-19 lockdown[J]. *Atmospheric Environment*, 2021, 259: 118526.
- [5] CHEN Longfei, YOUSAF M, XU Jingsha, et al. Ultra-fine particles: Sources, toxicity, and deposition dynamics in the human respiratory tract—Experimental and computational approaches[J]. *Journal of Environmental Management*, 2025, 376: 124458.
- [6] 石广玉, 王标, 张华, 等. 大气气溶胶的辐射与气候效应[J]. *大气科学*, 2008, 32(4): 826–840.
SHI Guangyu, WANG Biao, ZHANG Hua, et al. The radiative and climatic effects of atmospheric aerosols[J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 2008, 32(4): 826–840.
- [7] CANAGARATNA M R, JAYNE J T, JIMENEZ J L, et al. Chemical and microphysical characterization of ambient aerosols with the aerodyne aerosol mass spectrometer[J]. *Mass Spectrometry Reviews*, 2007, 26(2): 185–222.
- [8] MORAWSKA L, RISTOVSKI Z, JAYARATNE E R, et al. Ambient nano and ultrafine particles from motor vehicle emissions: Characteristics, ambient processing and implications on human exposure[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(35): 8113–8138.
- [9] 郝团, 蔡子颖, 刘敬乐, 等. 天津城区 2019 年 2–3 月气溶胶粒径分布特征观测分析[J]. *环境科学*, 2022,

- 43(8): 3903–3912.
- HAO Jian, CAI Ziyang, LIU Jingle, et al. Observation analyses of aerosol size distribution properties from February to March, 2019 in Tianjin urban area[J]. *Environmental Science*, 2022, 43(8): 3903–3912.
- [10] ZHANG Qi, JIMENEZ J L, CANAGARATNA M R, et al. Understanding atmospheric organic aerosols via factor analysis of aerosol mass spectrometry: A review[J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2011, 401(10): 3045–3067.
- [11] ZHANG Renyi, WANG Gehui, GUO Song, et al. Formation of urban fine particulate matter[J]. *Chemical Reviews*, 2015, 115(10): 3803–3855.
- [12] KUMAR P, KETZEL M, VARDOULAKIS S, et al. Dynamics and dispersion modelling of nanoparticles from road traffic in the urban atmospheric environment—A review[J]. *Journal of Aerosol Science*, 2011, 42(9): 580–603.
- [13] ZHONG Jian, NIKOLOVA I, CAI Xiaoming, et al. Modelling traffic-induced multicomponent ultrafine particles in urban street canyon compartments: Factors that inhibit mixing[J]. *Environmental Pollution*, 2018, 238: 186–195.
- [14] ZHU Yanhong, SULAYMON I D, XIE Xiaodong, et al. Airborne particle number concentrations in China: A critical review[J]. *Environmental Pollution*, 2022, 307: 119470.
- [15] ZHANG Qunfang, GANGUPOMU R H, RAMIREZ D, et al. Measurement of ultrafine particles and other air pollutants emitted by cooking activities[J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2010, 7(4): 1744–1759.
- [16] XU Ruixin, ALAM M S, STARK C, et al. Behaviour of traffic emitted semi-volatile and intermediate volatility organic compounds within the urban atmosphere[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 720: 137470.
- [17] KUMAR P, GARMORY A, KETZEL M, et al. Comparative study of measured and modelled number concentrations of nanoparticles in an urban street canyon[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(4): 949–958.
- [18] NIKOLOVA I, JANSSEN S, VOS P, et al. Dispersion modelling of traffic induced ultrafine particles in a street canyon in Antwerp, Belgium and comparison with observations[J]. *Science of the Total Environment*, 2011, 412: 336–343.
- [19] HUANG C, CHEN C H, LI L, et al. Emission inventory of anthropogenic air pollutants and VOC species in the Yangtze River Delta region, China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, 11(9): 4105–4120.
- [20] BROWN S G, EBERLY S, PAATERO P, et al. Methods for estimating uncertainty in PMF solutions: Examples with ambient air and water quality data and guidance on reporting PMF results[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, 518–519: 626–635.
- [21] 张国涛, 殷宝辉, 白雯宇, 等. 天津市冬季道路颗粒物粒径分布及来源解析 [J]. *环境科学*, 2022, 43(9): 4467–4474.
- ZHANG Guotao, YIN Baohui, BAI Wenyu, et al. Size distribution and source appointment of road particles during winter in Tianjin[J]. *Environmental Science*, 2022, 43(9): 4467–4474.
- [22] U. S. EPA. Positive matrix factorization (PMF) 5.0 fundamentals and user guide: Section 2.1–2.3[R]. Cincinnati: U. S. Environmental Protection Agency, 2014.
- [23] KIM S, MACHESKY J, GENTNER D R, et al. Real-world observations of reduced nitrogen and ultrafine particles in commercial cooking organic aerosol emissions[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2024, 24(2): 1281–1298.
- [24] ABDULLAHI K L, DELGADO SABORIT J M, HARRISON R M. Emissions and indoor concentrations of particulate matter and its specific chemical components from cooking: A review[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 71: 260–294.
- [25] GUO Song, HU Min, PENG Jianfei, et al. Remarkable nucleation and growth of ultrafine particles from vehicular exhaust[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2020, 117(7): 3427–3432.
- [26] LIU P F, ZHAO C S, GÖBEL T, et al. Hygroscopic properties of aerosol particles at high relative humidity and their diurnal variations in the North China Plain[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, 11(7): 3479–3494.
- [27] LI Qinqin, GUO Yiting, YANG Jingyi, et al. Review on main sources and impacts of urban ultrafine particles: Traffic emissions, nucleation, and climate modulation[J]. *Atmospheric Environment: X*, 2023, 19: 100221.
- [28] 田健, 韩力慧, 兰童, 等. 大气 NR-PM₁ 特性的多尺度演变及其影响机制 [J]. *中国环境科学*, 2024, 44(9): 4737–4753.
- TIAN Jian, HAN Lihui, LAN Tong, et al. Multi-scale evolutions of atmospheric NR-PM₁ characteristics and its influencing mechanisms[J]. *China Environmental Science*, 2024, 44(9): 4737–4753.
- [29] HAN Lihui, XIANG Xin, ZHANG Hailiang, et al. Insights into submicron particulate evolution, sources and influences on haze pollution in Beijing, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2019, 201: 360–368.
- [30] CHEN Xiaorui, WANG Haichao, LU Keding, et al. Field determination of nitrate formation pathway in winter Beijing[J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, 54(15): 9243–9253.