郑 煌,陈 楠,郑淑睿,等.基于船载走航的长江湖北段 $PM_{2.5}$特征及来源 [J]. 中国环境科学, 2026,46(2):666-675.
Zheng H, Chen N, Zheng S R, et al. Characterization and source apportionment of $PM_{2.5}$ along the Hubei stretch of the Yangtze River using ship-based mobile monitoring [J]. China Environmental Science, 2026,46(2):666-675.

基于船载走航的长江湖北段 $PM_{2.5}$ 特征及来源

郑 煌[1,2],陈 楠[3,4],郑淑睿[5],许 可[3,4],郑明明[5*] (1.武汉科技大学资源与环境工程学院,湖北 武汉 430081；2.湖北省工业安全工程技术研究中心,湖北 武汉 430081；3.湖北省生态环境监测中心站,湖北 武汉 430072；4.湖北省大气复合污染研究中心,湖北 武汉 430078；5.武汉轻工大学化学与环境工程学院,湖北 武汉 430023)

摘要：2024 年 8 月 28 日~9 月 3 日,利用船载测量仪器对长江湖北段大气污染物浓度进行观测,获得了江面上大气污染浓度以及细颗粒物($PM_{2.5}$)化学组分信息.结果表明,走航期间,长江湖北段上 CO、NO_2、O_3 和 SO_2 平均浓度分别为(0.75 ± 0.22)mg/m^3、(19.87 ± 12.77)μg/m^3、(74.23 ± 39.22)μg/m^3 和(21.98 ± 8.81)μg/m^3,均未超过《环境空气质量标准》一级标准.走航期间 $PM_{2.5}$ 质量浓度为(35.84 ± 12.08)μg/m^3,其中有机物占比最高((21.94 ± 7.36)%),其次为 SO_4^{2-}((20.53 ± 10.31)%)、NO_3^-((19.88 ± 12.29)%)和 NH_4^+((12.80 ± 4.70)%).利用受体模型解析得到 $PM_{2.5}$ 来源于二次无机气溶胶、船舶排放、生物质燃烧和工业排放,其贡献率分别为(47.86 ± 6.17)%、(26.61 ± 3.32)%、(18.29 ± 6.57)%和(8.38 ± 4.68)%.对比走航观测和陆地超站观测数据发现,江面上的二次生成作用更强.耦合 FLEXPART 后向模拟和 $PM_{2.5}$ 排放清单,计算得到研究区域内各格点对走航路线上 $PM_{2.5}$ 浓度的相对贡献,长江沿岸的贡献率为 76.90%,其他区域的贡献为 23.10%.FLEXPART 前向模拟结果表明,船舶排放对长江沿线的影响高于其他地区.

关键词：大气污染物；走航；长江；源解析；前向模拟；后向轨迹
中图分类号：X513 **文献标识码**：A **文章编号**：1000–6923(2026)02–0666–10

Characterization and source apportionment of $PM_{2.5}$ along the Hubei stretch of the Yangtze River using ship-based mobile monitoring.

ZHENG Huang[1,2], CHEN Nan[3,4], ZHENG Shu-rui[5], XU Ke[3,4], ZHENG Ming-ming[5*] (1.College of Resource and Environmental Engineering, Wuhan University of Science and Technology, Wuhan 430081, China；2.Industrial Safety Engineering Technology Research Center of Hubei Province, Wuhan University of Science and Technology, Wuhan 430081, China；3.Hubei Ecological Environment Monitoring Center Station, Wuhan 430072, China；4.Research Centre for Complex Air Pollution of Hubei Province, Wuhan 430078, China；5.School of Chemical and Environmental Engineering, Wuhan Polytechnic University, Wuhan 430023, China). *China Environmental Science*, 2026,46(2)：666~675

Abstract：From August 28 to September 3, 2024, the concentrations of atmospheric pollutants and chemical compositions of $PM_{2.5}$ along the Hubei stretch of the Yangtze River were obtained using on aboard instruments. During the mobile survey, the average concentrations of CO, NO_2, O_3, and SO_2 were (0.75 ± 0.22) mg/m^3, (19.87 ± 12.77) μg/m^3, (74.23 ± 39.22) μg/m^3, and (21.98 ± 8.81) μg/m^3 respectively, all below China's Grade I Ambient Air Quality Standards. The mean $PM_{2.5}$ mass concentration was (35.84 ± 12.08) μg/m^3, with organic matters being the dominant component ((21.94 ± 7.36)%), followed by SO_4^{2-}((20.53 ± 10.31)%), NO_3^-((19.88 ± 12.29)%), and NH_4^+((12.80 ± 4.70)%). Using the receptor model, four $PM_{2.5}$ sources including secondary inorganic aerosols, ship emissions, biomass burning, and industrial emissions were apportioned with contributions of (47.86 ± 6.17)%, (26.61 ± 3.32)%, (18.29 ± 6.57)%, and (8.38 ± 4.68)%, respectively. Comparison between mobile ship-based observations and land-based stationary supersite observations revealed stronger secondary formation over the river surface. By coupling the FLEXPART backward simulation with the $PM_{2.5}$ emission inventory, the relative contribution of each grid point in the study area to the $PM_{2.5}$ concentration along the mobile monitoring route was calculated and the contribution rate along the Yangtze River was 76.90%, while other regions accounted for 23.10%. FLEXPART forward simulation indicated that the ship emissions exerting greater impacts on the riverine regions than other areas.

Key words：air pollutants；cruise observation；Yangtze River；source apportionment；forward simulation；backward trajectory

船舶作为全球贸易的主要运输工具,以硫含量较高的残渣油和馏分油为主要燃料,其尾气排放已成为大气污染的重要来源.据估算,全球航运向大气中排放了 9.60~10.9Mt 的硫氧化物(SO_x)、16.7~20.0Mt 的氮氧化物(NO_x)、1.40~1.90Mt 的细颗粒物

收稿日期：2025-07-08
基金项目：国家自然科学基金项目(42307151,42307147)
* 责任作者, 副教授, zhengmm2008@126.com

($PM_{2.5}$)和大约 5.30Mt 的非甲烷挥发性有机物(NMVOCs),约占所有人为源排放 SO_x、NO_x、$PM_{2.5}$ 和 NMVOCs 的 9.20%、16.8%、4.00%和 4.00%[1].中国地区,船舶排放的 NO_x 和 PM 分别为 1539kt 和 61.0kt,占非道路移动源排放总量的 32.5%和 26.3%[2].全球尺度上,船舶排放的污染物导致的辐射强迫为−0.014~−0.038W/m^2[3],其中东亚地区的平均辐射强迫为−0.30W/m^2[4].船舶排放污染物对大气环境的影响包括改变气溶胶组分[5]、增加污染物浓度等[6-8].船舶排放对全球不同地区 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献介于0.20%~21.8%[6],且主要影响航线400km以内的空气污染物浓度.健康效应方面,船舶排放的 $PM_{2.5}$ 可通过肺泡进入血液循环系统,显著增加心肺疾病发病率和死亡率[9-10].

全球尺度上,关于船舶排放的研究已有许多,尤其是波罗的海、地中海和北海地区[9].我国作为航运大国,国内关于船舶排放的研究多集中在沿海和港口地区[6,8,11-12],主要关注污染物排放量[7,14-16],对大气污染物浓度影响[7-9,13]等.作为长度全球第 3 的长江,2024 年长江干线港口货物吞吐量 40.2 亿 t,长江干线上船舶排放对大气污染的影响不可忽视.然而,关于内陆长江流域船舶排放对空气污染物的研究较少[17-19].

湖北省作为长江经济带的核心区域,具有独特的水运优势.全省通航河流达 230 条,总通航里程9060km,其中高等级航道2090km,规模居全国第2位.据报道,2019 年经过长江武汉段的船舶排放的 SO_2、NO_x、CO、PM_{10}、$PM_{2.5}$ 和 VOCs 分别为 183,12004,1727,1505,1442,360t,其中普通货船排放占比为 85.0%~94.7%[19].因此,本研究利用船载设备,对长江湖北段开展大气环境走航监测任务,研究走航期间江面上 $PM_{2.5}$ 质量浓度、化学组分特征、来源以及船舶排放对周边大气环境的潜在影响.

1　材料与方法

1.1　走航路线和监测设备

2024 年 8 月 28 日~2024 年 9 月 3 日,依托“鄂环监清江号”监测船,开展长江湖北段走航观测任务.该监测船长 38.8m,宽 7.00m;船体总吨位 263t,满载排水量 163t,航速 22km/h.该船采用柴油发动机推进系统,船载供电系统续航能力 12h.监测船按照“日间航行,夜间停靠”的方式开展走航观测.白天走航时段为 07:00 到 18:00 左右,夜间停靠时间段为 18:00 至次日 07:00 左右.走航观测期间,依据船舶供电能力和沿线可供船舶夜间停靠补能港口分布,每日航程及停靠港口规划如图 1 所示.

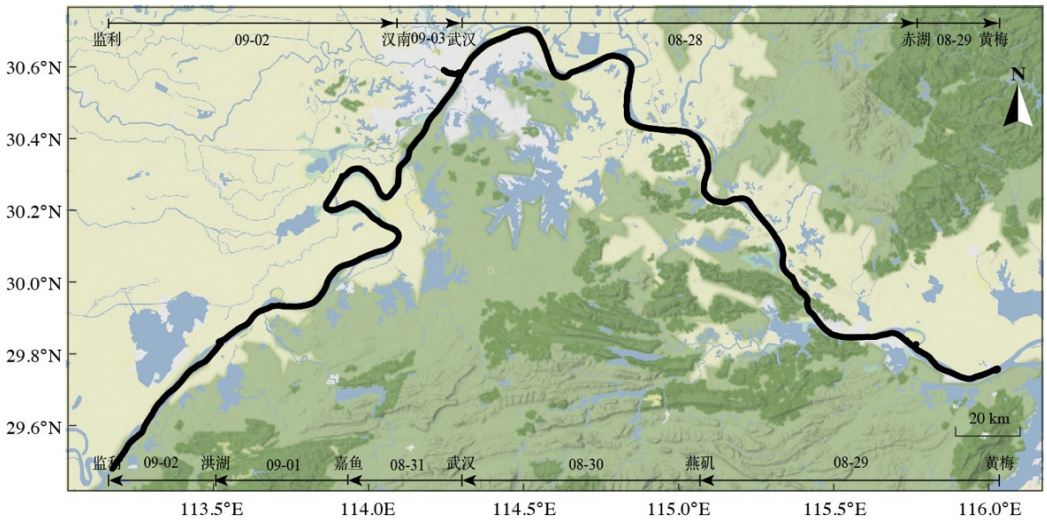


图 1　走航观测期间,每日行程及停靠港口示意

Fig.1　Schematic diagram of daily routes and port calls during navigation observation

8 月 28 日 09:00 左右,船舶从汉江武汉段停靠码头沿江而下,于 18:00 左右到达赤湖码头,停靠至 29 日 07:00.8 月 29 日 07:00 左右,船舶从码头出发继续沿江而下,于 08:30 时左右到达湖北黄梅县.随后,船舶掉头逆流而上,于 9 月 2 日 13:10 左右到达监利县.之后再次掉头顺流而下,最终于 9 月 3 日 10:00 左右

返回武汉码头,走航观测至此结束.

监测设备方面,“鄂环监清江号”搭载了 GPS、环境空气气态污染物分析仪、$PM_{2.5}$ 化学组分监测仪、激光雷达、气象仪等设备.环境空气气态污染物分析仪可监测 SO_2、NO_2、O_3 和 CO 浓度(力合科技,LFAQMS-2012).$PM_{2.5}$ 化学组分中,水溶性离子(Na^+、NH_4^+、Mg^{2+}、K^+、Ca^{2+}、Cl^-、NO_3^-、SO_4^{2-})、无机元素(Al、K、Ca 等)和碳质气溶胶(OC 和 EC)分析仪,均由力合科技有限公司生产,型号分别为 LFAMS-2010、XFXRF-2019 和 LFOEC-2018.监测仪器时间分辨率设置方面,GPS 和环境空气气态污染物分析仪的时间分辨率为 30s;$PM_{2.5}$ 化学组分分析仪的时间分辨率为 1h.走航开始前,对仪器设备进行标定和质控,保证走航期间数据的有效性和可靠性.

1.2 正定因子矩阵

正定因子矩阵基于受体点观测数据,对污染物来源及贡献占比进行估算,广泛应用于大气污染物源解析研究.基于大量受体观测数据,通过输入化学组分数据矩阵 $\boldsymbol{X}$,利用最小二乘法,得到可能污染源的源贡献矩阵 $\boldsymbol{G}$ 和污染源成分谱矩阵 $\boldsymbol{F}$ 以及残差矩阵 $\boldsymbol{E}$.具体计算如公式(1)所示:

$$x_{ij} = \sum_k^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij} \tag{1}$$

式中:x_{ij} 为第 i 个样品中第 j 个物种浓度;g_{ik} 为第 i 个样品中第 k 个因子贡献的浓度;f_{kj} 是第 k 个源中第 j 个物种质量浓度;e_{ij} 是第 i 个样品中第 j 个物种浓度的残差.PMF 模型利用最小二乘法多次运行,以此减小目标函数 Q 并使其最小化,其原理见公式(2):

$$Q = \sum_{i=1}^k \sum_{j=1}^m \left(\frac{e_{ij}}{u_{ij}} \right)^2 \tag{2}$$

式中:u_{ij} 为样本 x_{ij} 的不确定度.本研究根据 PMF 5.0 软件用户指南计算不确定度和信噪比(S/N),并依据信噪比划分等级.其中信噪比为“Strong”(S/N > 1)和“Weak”(0.5 < S/N < 1)的物种带入模型,而信噪比为“Bad”(S/N < 0.5)的物种不纳入模型模拟.基于信噪比和各物种的检出率,共筛选出 16 种组分参与计算.

PMF 计算中,最重要的是因子个数选取.本研究中,因子个数选择从 3 到 8,根据 Q、解析出的因子是否具有实际意义,对不同因子个数的结果进行评估,最终确定 4 个因子.4 个因子结果中,$PM_{2.5}$ 浓度模拟值与观测值之间的皮尔逊相关系数(r)为 0.87(P<0.001),说明模型能较好模拟船舶走航过程中监测到的 $PM_{2.5}$ 浓度.

确定 4 个因子方案后,利用 constrain 对结果进行约束,确保 G 矩阵中的最小值为 0,即贡献率最小为 0.constrain 方案中,DISP 结果有效.100 次 bootstrap (BS)结果表明因子之间共线性影响较小,仅因子 2 中有 4 次 BS 结果与因子 4 的 base 结果之间的 r 大于 0.6.BS-DISP 结果诊断参数(85、−31.9、16、0、0)表明,4 个因子结果无明显的旋转模糊性.因此,本文利用 constrain 结果解释 $PM_{2.5}$ 来源和贡献率.具体而言,利用 BS 结果绘制源谱组成的箱线图,判断因子种类;利用 BS 结果,计算各个源贡献率的平均值和标准偏差.

1.3 FLEXPART 模拟

FLEXPART 模型通过模拟大量粒子从点、线、面或体积源释放后的运动轨迹,来示踪粒子在大气中的传输和扩散过程.该模型还综合考虑了干湿沉降、辐射衰减以及粒子老化等物理过程[20].FLEXPART 模式具有前向和后向两种模拟方法,前向运算通常用于模拟大气污染物扩散过程,以及确定污染源的排放强度和污染源的影响范围;后向运算的主要应用领域为确定对研究区域产生影响的潜在源区空间分布,并定量计算潜在源区对研究区域的贡献率.

本研究使用 FLEXPART v10.4 版本[21],采用美国国家环境预报中心和美国国家大气研究中心提供的全球再分析资料作为初始气象场.该气象数据空间分辨率为 1°×1°,时间分辨率为 6h[22].前向和后向模拟均以船舶航行位置作为粒子释放点,具体设置如下:模拟时段覆盖整个走航观测期,运行时间间隔为 10min;每次释放 5000 个粒子,释放高度在 20m~100m;模拟前向和后向 24h 的轨迹,模型输出的空间分辨率为 0.1°×0.1°.结合一次 $PM_{2.5}$ 排放清单和后向模拟结果,可以定量研究区域内各格点对观测点位 $PM_{2.5}$ 的贡献率[23-24],具体计算方法如下:

$$R_{ij} = 100\% \times \frac{E_{ij} \cdot r_{ij}}{\sum_{1,1}^{N,S} E_{ij} \cdot r_{ij}} \tag{3}$$

式中:R_{ij} 为模拟区域内各格点对受体点 $PM_{2.5}$ 浓度的相对贡献(单位为%);E_{ij} 为格点中一次 $PM_{2.5}$ 的排放量(kg/(m^2·s)),本研究数据来源于清华大学 MEIC (v1.4 版本)[25]中 8 月和 9 月排放量的平均值;r_{ij} 为

FLEXPART 后向模拟中各格点上的滞留时间(s).

2　结果与分析

2.1　污染物浓度水平

如表 1 所示,整体上看,观测期间长江湖北段 CO、NO_2、O_3 和 SO_2 浓度较低,各污染物平均浓度均未超过《环境空气质量标准》一级标准[26].走航期间,$PM_{2.5}$ 平均浓度((35.84±12.08)μg/m^3)超过《环境空气质量标准》一级标准(35μg/m^3),主要归因于黄梅—燕矶、武汉—嘉鱼、嘉鱼—洪湖、洪湖—监利和监利—汉南段 $PM_{2.5}$ 浓度超标.本研究中 CO、NO_2 和 O_3 平均浓度低于江苏段 2019 年 8 月 24 日~31 日观测结果,但 SO_2 和 $PM_{2.5}$ 平均浓度高于江苏段[17].更大空间尺度上,本研究的 CO、NO_2 和 $PM_{2.5}$ 浓度低于冬季上海—武汉[18]往返观测结果(表 1).以 $PM_{2.5}$ 为例,本研究中 $PM_{2.5}$ 质量浓度的平均值为(35.84±12.08)μg/m^3,远低于 Li 等[18]的观测结果((119.29±33.67)μg/m^3).结果差异与观测时段、分析仪器、气象条件、周边排放及江面上船舶密度等因素有关.

空间差异上,本研究中 CO、NO_2 和 O_3 浓度的最高值分别出现在汉南—武汉段((1.42±0.18)mg/m^3)、洪湖—监利段((38.96±15.72)μg/m^3)以及武汉—嘉鱼段((97.20±31.19)μg/m^3).SO_2 和 $PM_{2.5}$ 浓度的最高值都出现在监利—汉南段,平均浓度分别为(28.73±2.02)μg/m^3 和(43.82±13.34)μg/m^3.

表 1　走航期间不同航段污染物平均浓度

Table 1　Mean concentrations of air pollutants for different route during the observational period

航段	CO(mg/m^3)	NO_2(μg/m^3)	O_3(μg/m^3)	SO_2(μg/m^3)	$PM_{2.5}$(μg/m^3)*
武汉—赤湖	0.53 ± 0.07	13.15 ± 7.37	62.99 ± 12.79	3.78 ± 2.76	32.05 ± 3.61
赤湖—黄梅	0.68 ± 0.04	23.12± 11.20	—	19.94 ± 1.00	23.35 ± 5.44
黄梅—燕矶	0.71 ± 0.12	18.08 ± 7.63	77.70 ± 25.45	21.02 ± 3.13	39.72 ± 15.28
燕矶—武汉	0.67 ± 0.09	20.50 ± 11.44	63.81 ± 40.90	8.34 ± 4.96	27.62 ± 11.66
武汉—嘉鱼	0.79 ± 0.16	22.85 ± 13.74	97.20 ± 31.19	28.24 ± 2.46	35.41 ± 11.44
嘉鱼—洪湖	0.69 ± 0.10	12.66 ± 9.82	84.53 ± 42.33	23.50 ± 2.56	38.89 ± 11.39
洪湖—监利	0.96 ± 0.13	38.96 ± 15.72	18.38 ± 23.78	28.55 ± 1.85	36.94 ± 3.38
监利—汉南	0.86 ± 0.07	30.37 ± 13.27	94.47 ± 38.93	28.73 ± 2.02	43.82 ± 13.34
汉南—武汉	1.42 ± 0.18	18.92 ± 6.00	20.65 ± 9.05	23.81 ± 3.30	33.66 ± 17.36
平均值	0.75 ± 0.22	19.87 ± 12.77	74.23 ± 39.22	20.98 ± 8.81	35.84 ± 12.08
GB3095—2012[26]	4	80	100	50	35
长江江苏段[17]	1.0	76	169	19	31
上海-武汉[18]	(0.99 ± 0.39) × 10^{-6}	(63.74±41.08) × 10^{-9}	—	(9.32±4.33) × 10^{-9}	(119.29 ± 33.67)μg/m^3

注:—表示无数据;*$PM_{2.5}$质量浓度为化学重构得到,具体方法见文献[27].

2.2　化学组分特征

2.2.1　各组分占比　如图 2 所示,整个航行过程中,OM 是最主要化学组分,占比为(21.94±7.36)%,其次为 SO_4^{2-}((20.53±10.31)%)、NO_3^-((19.88±12.29)%)和 NH_4^+((12.80±4.70)%).地壳元素和 EC 在 $PM_{2.5}$ 中的比例较低,分别为(1.82±1.54)%和(1.88±2.07)%.整体而言,SO_4^{2-}、NO_3^-和 NH_4^+(SNA)是 $PM_{2.5}$ 的最主要化学组分,与前人开展的船舶走航[18-19]及城市观测结果一致[28-30].但本研究中 SNA 占比(53.21%)略高于长江江苏段(50.0%)[18]、南京城区(47.1%~50.1%)[28]和北京城区(43.5%)[30],与上海城区观测结果接近(56%~59%)[29],低于上海—武汉走航观测结果(73.7%)[19].不同航段,对 $PM_{2.5}$ 质量浓度贡献排名第 1 的组分存在空间差异:武汉—赤湖、赤湖—黄梅、黄梅—燕矶段,NO_3^-占比最高,其贡献率分别为(29.78±5.52)%、(36.04±6.06)%和(24.19±10.70)%;燕矶—武汉、洪湖—监利、监利—汉南和汉南—武汉段,OM 占比最高,其贡献分别为(25.28±7.10)%、(29.53±6.26)%、(20.57±5.30)%和(21.37±10.29)%;武汉—嘉鱼以及嘉鱼—洪湖段,SO_4^{2-}是最主要化学组分,贡献率分别为(23.21±14.)%和(25.4±7.94)%.这种空间差异与不同航段周边工业布局、区域传输以及船舶烟羽影响的不同有关.

2.2.2　二次无机气溶胶　水溶性离子中较高浓度的 SO_4^{2-}和 NO_3^-与其前体物 SO_2 和 NO_2 较高的氧化速率有关.本研究利用同步观测的 SO_2 和 NO_2 浓度,

计算了 SO_2 氧化速率($SOR=SO_4^{2-}/(SO_4^{2-}+SO_2)$)和 NO_2 氧化速率($NOR=NO_3^-/(NO_3^-+NO_2)$),结果如图3(a)所示.SOR 和 NOR 越高,表明大气中越多的 SO_2 和 NO_2 被氧化为二次气溶胶.据报道,一次源排放中 SOR 小于 0.10;通过 SO_2 光化学氧化产生硫酸盐时,SOR 大于 0.10[31-32].走航期间,SOR 和 NOR 分别为 0.66±0.08 和 0.28±0.07,说明 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 具有二次来源.SO_4^{2-} 和 NO_3^- 的二次来源包括气相氧化和非均相反应.OH 自由基将 SO_2 气相氧化为 SO_4^{2-} 时,与温度显著相关[33-34];SO_2 的非均相氧化速率与相对湿度正相关,表现为随着相对湿度的增加而增加[35-37].整个观测期间,SOR 和 NOR 与相对湿度之间的 r 分别为 0.08 和 0.10,呈弱正相关($P>0.05$).SOR 和 NOR 与温度呈弱负相关($P>0.05$),r 分别为−0.09 和−0.13.上述结果表明,走航期间,SO_2 和 NO_2 通过非均相反应生成 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 更为显著.

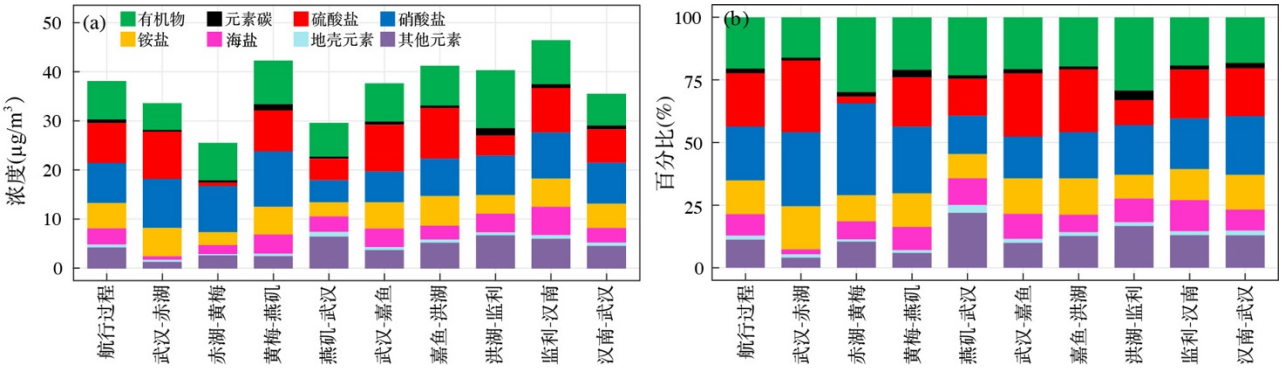


图 2 不同航段 $PM_{2.5}$ 中各组分的浓度及百分比

Fig.2 Concentrations and percentages of different $PM_{2.5}$ chemical components for different navigational sections

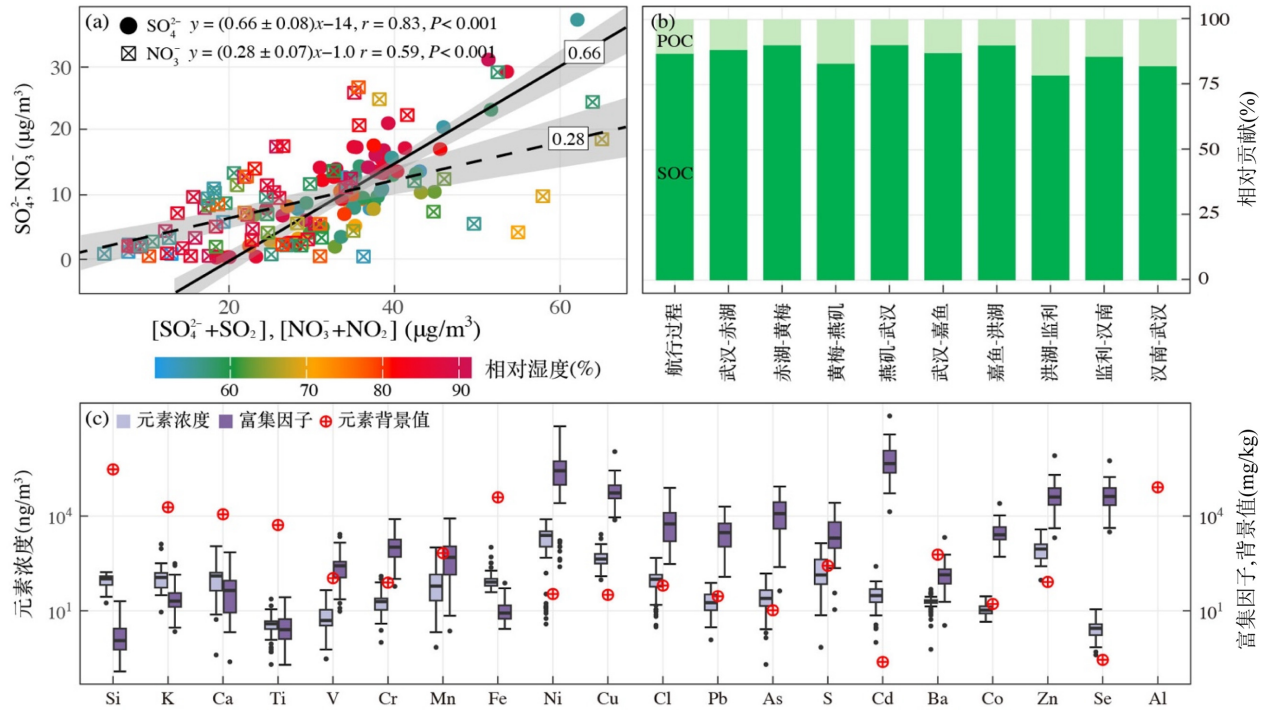


图 3 $PM_{2.5}$ 化学组分中主要离子、碳质气溶胶和微量元素特征

Fig.3 Characteristics of main water−soluble ions, carbonaceous matters and trace elements within $PM_{2.5}$ chemical composition

2.2.3 碳质组分来源 走航期间,测量得到的 OC 和 EC 之间的 r 为 0.62($P<0.001$),说明 OC 与 EC 之间具有较高的相关性,表明两者具有相似来源.OC/EC 可以定性判断其来源:煤炭燃烧、生物质燃烧和机动车尾气中,OC/EC 分别介于 0.37~7.60、4.10~14.50 和 0.70~2.40[38].走航过程中测得的 OC/

EC 平均为 12.64,说明碳质气溶胶受到生物质燃烧影响.此外,OC/EC 标准偏差为 8.02,说明碳质气溶胶除了生物质燃烧来源外,还具有其他来源,且来源具有很高的空间变异性.当 OC/EC>2,说明 OC 除一次来源外,还有部分来源于二次生成[39-40].

为评估 OC 二次来源的贡献,本研究利用最小相关系数法将 OC 区分为一次有机碳(POC)和二次有机碳(SOC)[41-43].利用最小相关系数法得到不同航段 POC 和 SOC 的占比(图 3(b)).整个走航观测过程中,SOC 和 POC 的平均值分别为(4.76±1.11)μg/m^3 和 (0.83±1.16)μg/m^3, 占比分别为 (86.80±9.69)% 和 (13.20±9.69)%,说明 OC 主要来源于二次生成.不同航段中的 OC 也主要来源于二次生成,百分比最高值出现在燕矶—武汉段((90.11±4.99)%),最低贡献出现在洪湖—监利段((78.49±3.75)%).

2.2.4　微量元素浓度及来源　如图 3(c)所示,Ni 的平均浓度最高((2.37±1.70)μg/m^3)、然后依次为 Zn((1.02±0.72)μg/m^3)、Cu((0.54±0.40)μg/m^3).其他元素的平均浓度小于 0.50μg/m^3.本研究中,Zn 和 Cu 的平均浓度高于前人在长江流域开展的船舶走航观测结果[17-18].船舶重油燃烧指示物 V[44-45]浓度((9.56±9.52))ng/m^3 与上海—武汉段((9.71±13.45))ng/m^3 接近[18].

元素的富集因子(EF)计算中,选择 Al 为参比元素,各元素背景值来源于湖北省表层土壤(0~20cm)地球化学参数[46],结果如图 3(c)所示.按照 EF 为 10 作为是否受到人为排放源影响的阈值判断[18],Si 和 Ti 来源于自然过程.EF10~100 的元素包括 K(36.59±52.86)、Ca(83.07±136.09)和 Fe(12.73±12.14),说明这些元素既来源于地壳,也来源于人为源.其他元素 EF 的平均值大于 100,说明人类活动是主要来源.其中 Cd 的 EF 最高,为(9.70±19.19)×10^5.船舶燃油燃烧指示物 Ni[44-45]的 EF 平均值为(4.81±9.14)×10^5,排名第 2.需要说明的是,各个元素富集因子的标准偏差较大,表明元素浓度空间分布具有很高的空间变异性,与长江沿线分布不均的工业有关.

2.3　走航观测与固定点位对比

为了更好了解江面上 $PM_{2.5}$ 主要化学组分的特征,本研究对比了走航观测与同期城市超站观测(鄂州站)之间的差异.利用 CO 归一化 $PM_{2.5}$ 化学组分浓度,去除气象和排放差异对污染物浓度影响.如表 2 所示,船舶夜间停靠港口和走航期间观测到的 $PM_{2.5}$ 主要化学组分浓度显著高于城市超站的观测浓度.SO_4^{2-}、NO_3^-和 NH_4^+ 作为二次反应指示物,其归一化浓度更高,说明江面上的二次生成作用更强.以 SO_4^{2-}为例,其气态前体物 SO_2 在走航期间平均浓度为(20.98±8.81)μg/m^3,高于城市超站观测结果((5.04±1.35)μg/m^3).走航期间,相对湿度为(71.78±14.20)%,同样高于观测期间超站记录到的相对湿度((67.83±13.77)%).更高浓度的前体物和更有利的化学条件,导致走航期间江面上的 SOR(0.66)高于城市超站(0.57).类似的,利用最小相关系数法,计算了城市超站观测到的 POC 和 SOC 比例.超站观测到的 SOC 百分比为(39.03±17.40)%,低于走航观测(86.80%),同样说明江面上 OC 的二次生成作用更强.对于一次污染物,例如 EC 和 V,走航期间观测到的浓度高于超站,说明船舶排放对江面空气质量的影响更大.该结论与前人模拟结果一致,船舶排放对空气污染的影响随着离污染源的距离增加而降低[6,8,16].

表 2　走航期间、夜间港口固定观测及超站观测到的 $PM_{2.5}$ 主要化学物种与 CO 比值的平均值

Table 2　Mean values of ratios of $PM_{2.5}$ main chemical components to CO from cruise, fixed observation at port and superstation

物种	超站	走航	港口
OM	6.94 ± 3.16	10.88 ± 2.95	11.62 ± 4.21
EC	0.56 ± 0.16	0.94 ± 1.35	1.45 ± 1.60
NO_3^-	1.80 ± 1.85	11.50 ± 9.07	12.06 ± 9.39
SO_4^{2-}	7.77 ± 1.81	11.76 ± 7.76	14.33 ± 10.73
NH_4^+	3.13 ± 1.01	7.30 ± 4.11	8.45 ± 5.56
V	1.92 ± 2.13	12.21 ± 13.99	13.70 ± 13.01

注:V的单位为10^{-6},其他物种单位为10^{-3}.

2.4　$PM_{2.5}$ 来源及空间分布特征

PMF 模型 constrain 结果中,100 次 BS 结果得到的源谱组成如图 4 所示.因子 1 中,含量最高的物种为 Ni,其百分比为(97.46±7.06)%.排名第 2 至第 5 的物种分别为 Cl^-(87.78±7.70)%、V(65.01±22.39)%、Cu(54.64±21.11)%和 Pb(46.88±15.38)%.Ni 和 V 通常被认为是船舶重油燃烧的指示物[44-45].因此,判断因子 1 为船舶排放.因子 2 中,载荷最高的物种为 K,其百分为(76.49±14.48)%,而 K 通常作为生物质燃烧的指示物[47-48].该因子中,载荷较高的物种还包括 OC 和 EC,百分比分别为(34.27±8.29)%和(41.18±9.92)%.

生物质燃烧产生的 $PM_{2.5}$ 中,这些物种的百分比较高[28,49-50].因此,判定因子 2 为生物质燃烧.因子 3 中,百分比最高的物种为 Mn,其百分比为(98.08±3.63)%.其他百分比较高的物种还包括 Zn((65.32±10.44)%)、Fe((33.31±5.84)%)和 Cu((32.57±16.33)%).Mn 和 Zn 在工业排放的 $PM_{2.5}$ 源谱中占有较高比例[48,51].因此,因子 3 命名为工业排放源.因子 4 中,百分比最高的物种包括 SO_4^{2-}、NO_3^-、NH_4^+,其百分比分别为(85.87±13.55)%、(94.38±8.76)%和(75.10±9.58)%.因此,判定因子 4 为二次无机气溶胶.

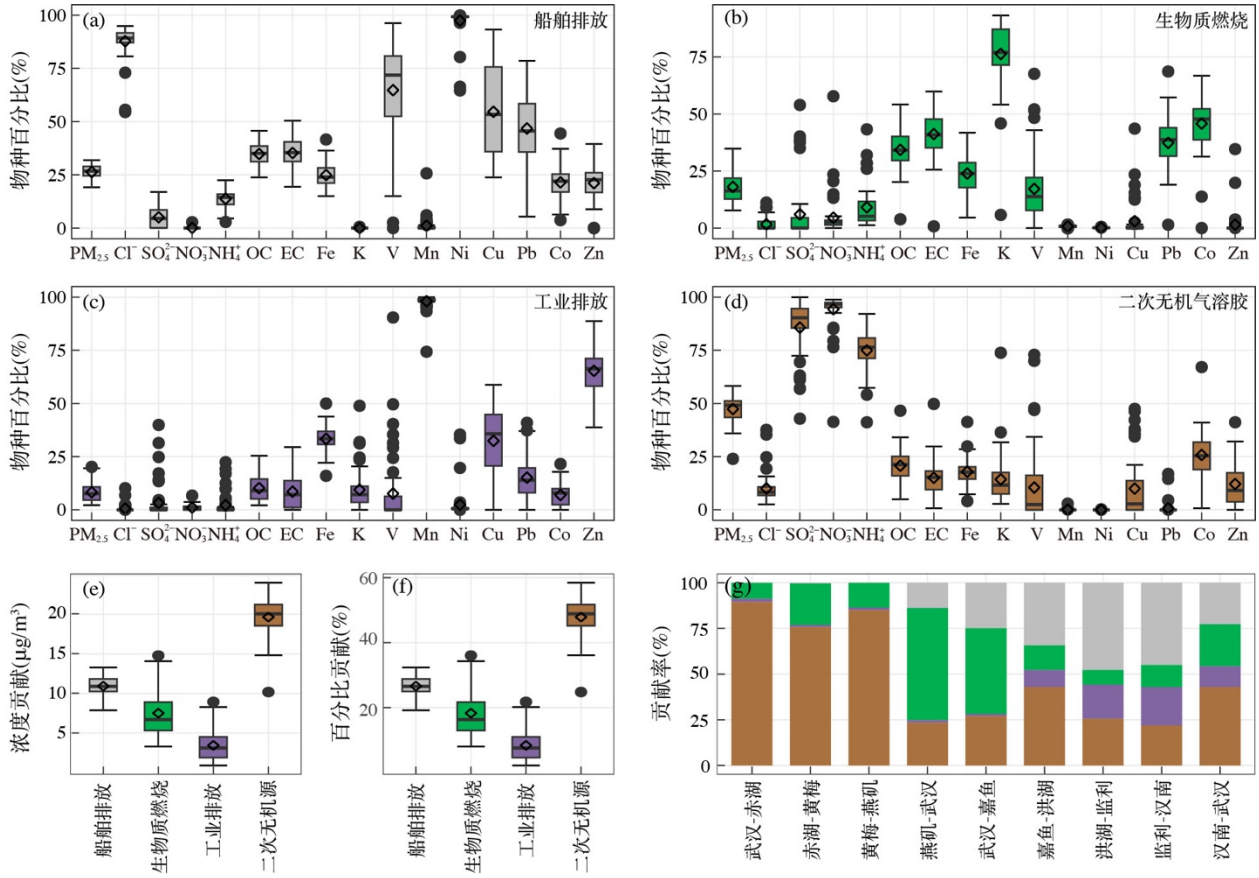


图 4 PMF 解析出的各个源的源谱组成及各个源对 $PM_{2.5}$ 质量浓度的平均贡献率

Fig.4 Source profiles of $PM_{2.5}$ identified by the PMF model and their mean contributions to $PM_{2.5}$ mass concentration

整个走航期间,$PM_{2.5}$ 主要来源于二次无机气溶胶,平均浓度为(19.65±2.53)μg/m^3,百分比贡献为(47.86±6.17)%,与前人源解析结果一致[27-28,30].对 $PM_{2.5}$ 贡献排名第 2 的污染源为船舶排放,其百分比贡献为(26.61±3.32)%.贡献排名第 3 的污染源为生物质燃烧,占比为(18.29±6.75)%.走航沿线各种工业过程排放对江面上 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献为(8.38±4.68)%.本研究中,船舶排放对 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献高于前人开展的长江中游地区化学传输模式模拟结果(10%~20%)[16]以及上海城区(3.2%)[29]和武汉城区(0.8%~1.6%)[44]的源解析结果.

PMF 解析得到各个源的空间分布特征如图 4(g)所示.不同航段 $PM_{2.5}$ 的最主要来源存在空间差异:武汉—赤湖、赤湖—黄梅、黄梅—燕矶、嘉鱼—洪湖和汉南—武汉段,二次无机气溶胶是最主要来源,其贡献分别为(89.44±3.54)%、(75.71±2.44)%、(84.88±7.68)%、(42.80±26.48)%和(42.81±32.12)%;燕矶—武汉和武汉—嘉鱼段,$PM_{2.5}$ 主要来源于生物质燃烧,其贡献分别为(61.33±20.65)%和(46.86±22.35)%.船舶排放和工业排放对江面上 $PM_{2.5}$ 浓度贡献的最高值分别为(47.80±10.56)%和(21.00±16.33)%,分别出现在洪湖—监利段和监利—汉南段.

2.5 潜在地理来源及对周边影响

利用 FLEXPART 后向模拟,得到走航期间对观测到的 $PM_{2.5}$ 浓度有影响的潜在地理区域(图 5(a)).影响区域主要位于长江以北,包括安徽省大部分区

域、河南省东部区域、山东省南部区域、江苏省西北部区域.与此同时,来自海面和湖南省北部以及安徽和浙江交汇处的传输也会对受体点的 $PM_{2.5}$ 浓度产生影响.利用 FLEXPART 模拟结果与排放清单结合,可以半定量估算各个网格点对受体点的影响,结果如图 5(b)所示.对长江江面上空气质量有影响的区域主要位于长江及两岸地区,累积贡献率为 76.90%.其他地区的区域传输贡献较小,为 23.10%.

利用 FLEXPART 前向模拟,得到船舶排放对周边大气污染物浓度有影响的区域(图 5(c)).与后向模拟结果不同,前向模拟结果表明,受长江中游流域北侧大别山、南侧幕阜山阻断影响,长江湖北段上船舶排放的污染物不易扩散,在长江航道和两湖盆地内累积.空间上,船舶排放影响与前人模拟结果一致:离长江沿线地区越近,船舶排放对空气质量的影响越大,距离越远,影响越小[16].

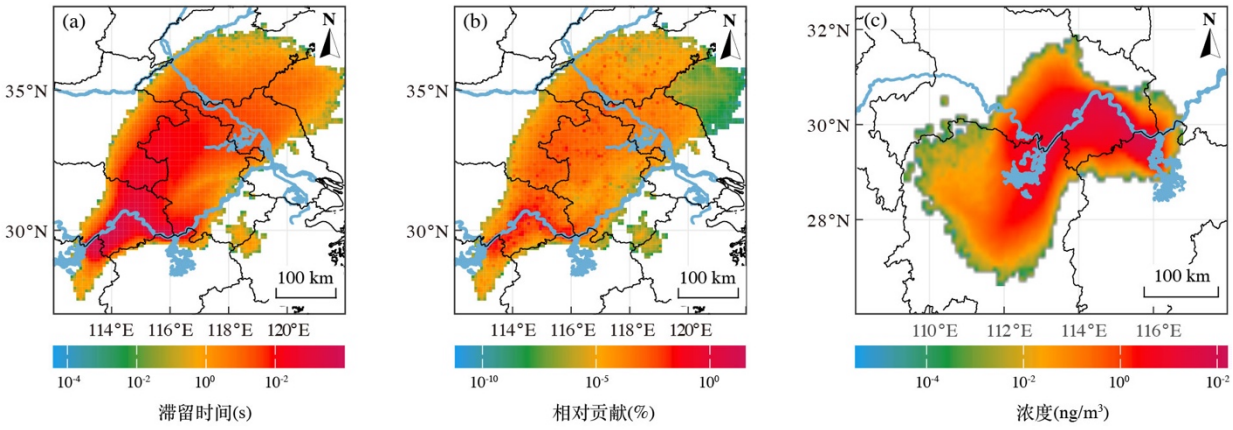


图 5　对走航路线上污染物浓度有影响的潜在地理区域及其相对贡献以及船舶排放对周边污染物浓度的影响

Fig.5　Potential geographical source regions that affect the air pollutants along the cruise route and their relative contribution and the impacts of ship emissions on ambient air pollutant concentrations

3　结论

3.1　船舶走航期间,CO、NO_2、O_3、SO_2 和 $PM_{2.5}$ 的平均浓度分别为(0.75±0.22)mg/m^3、(19.87±12.77)μg/m^3、(74.23±39.22)μg/m^3、(20.98±8.81)μg/m^{3}和(35.84±12.08)μg/m^3,除 $PM_{2.5}$ 外,其他污染物浓度均未超过《环境空气质量标准》一级标准限值.

3.2　走航期间,$PM_{2.5}$ 化学组分中,OM 占比最高((21.94±7.36)%),其次为 SO_4^{2-}((20.53±10.31)%)、NO_3^-((19.88±12.29)%)和 NH_4^+((12.80±4.70)%).进一步分析表明,NO_3^-、SO_4^{2-}、NH_4^+和 OM 主要来源于二次生成,其中(86.80±9.69)%的 OC 来源于二次生成,且二次生成作用比陆地环境大气更强.

3.3　PMF 受体模型源解析结果表明,长江湖北段 $PM_{2.5}$ 主要来源于二次生成,其贡献率为(47.86±6.17)%.其他来源还包括长江沿线的各种工业过程排放((8.38±4.68)%)和生物质燃烧((18.29±6.57)%).船舶排放对长江湖北段上 $PM_{2.5}$ 的贡献为(26.61±3.32)%.

3.4　影响长江湖北段 $PM_{2.5}$ 浓度的主要地理来源为长江及沿岸地区,其贡献率为 76.90%.走航期间,船舶排放的污染物受长江两岸地形影响,不易扩散,容易积累在流域内,对长江两岸的影响更高.

参考文献:

[1] McDuffie E E, Smith S J, O'Rourke P, et al. A global anthropogenic emission inventory of atmospheric pollutants from sector- and fuel-specific sources (1970~2017): an application of the community emissions data system (CEDS) [J]. Earth System Science Data, 2020, 12(4):3413-3442.

[2] 生态环境部.中国移动动源环境管理年报 [R]. 北京.中华人民共和国生态环境部, 2023.
Ministry of Ecology and Environment of China. China mobile source environmental management annual report [R]. Beijing. Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, 2023.

[3] Lauer A, Eyring V, Hendricks J, et al. Global model simulations of the impact of ocean-going ships on aerosols, clouds, and the radiation budget [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2007,7(19):5061-5079.

[4] Liu H, Fu M, Jin X, et al. Health and climate impacts of ocean-going vessels in east Asia [J]. Nature Climate Change, 2016,6(11):1037-1041.

[5] Shi Z, Endres S, Rutgersson A, et al. Perspectives on shipping emissions and their impacts on the surface ocean and lower atmosphere: an environmental−social−economic dimension [J]. Elementa: Science of the Anthropocene, 2023,11(1):00052.

[6] Feng J, Zhang Y, Li S, et al. The influence of spatiality on shipping emissions, air quality and potential human exposure in the Yangtze River Delta/Shanghai, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019,19(9):6167–6183.

[7] Lv Z, Liu H, Ying Q, et al. Impacts of shipping emissions on $PM_{2.5}$ pollution in China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, 18(21):15811−15824.

[8] Mao J, Zhang Y, Yu F, et al. Simulating the impacts of ship emissions on coastal air quality: importance of a high−resolution emission inventory relative to cruise− and land−based observations [J]. Science of the Total Environment, 2020,728:138454.

[9] Mueller N, Westerby M, Nieuwenhuijsen M. Health impact assessments of shipping and port−sourced air pollution on a global scale: a scoping literature review [J]. Environmental Research, 2023, 216:114460.

[10] Zhang Y, Eastham S D, Lau A K, et al. Global air quality and health impacts of domestic and international shipping [J]. Environmental Research Letters, 2021,16(8):84055.

[11] Yuan Q, Teng X, Tu S, et al. Atmospheric fine particles in a typical coastal port of Yangtze River Delta [J]. Journal of Environmental Sciences, 2020,98:62−70.

[12] Wang X, Shen Y, Lin Y, et al. Atmospheric pollution from ships and its impact on local air quality at a port site in Shanghai [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019,19(9):6315−6330.

[13] Chen D, Wang X, Li Y, et al. High−spatiotemporal−resolution ship emission inventory of China based on AIS data in 2014 [J]. Science of the Total Environment, 2017,609:776−787.

[14] Li C, Borken−Kleefeld J, Zheng J, et al. Decadal evolution of ship emissions in China from 2004 to 2013 by using an integrated AIS−based approach and projection to 2040 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018,18(8):6075−6093.

[15] Wan Z, Ji S, Liu Y, et al. Shipping emission inventories in China's Bohai bay, Yangtze River Delta, and Pearl River Delta in 2018 [J]. Marine Pollution Bulletin, 2020,151:110882.

[16] Huang H, Zhou C, Huang L, et al. Inland ship emission inventory and its impact on air quality over the middle Yangtze River, China [J]. Science of the Total Environment, 2022,843:156770.

[17] 赵秋月,陈 凤,李慧鹏,等.长江江苏段大气污染特征研究 [J]. 环境科技, 2021,34(3):50−54.
Zhao Q Y, Chen F, Li H P, et al. Research on air pollution characteristics of the Yangtze River in Jiangsu Section [J]. Environmental Science and Technology, 2021,34(3):50−54

[18] Li Z, Li C, Ye X, et al. Air quality in the middle and lower reaches of the Yangtze River channel: a cruise campaign [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018,18(19):14445−14464.

[19] 周君蕊,邱培培,肖 凯,等.长江武汉段船舶大气污染物排放清单研究 [J]. 武汉大学学报(理学版), 2024,70(5):623−628.
Zhou J R, Qiu P P, Xiao K, et al. Air pollutant emission inventory from ships in Wuhan section of the Yangtze River [J]. Journal of Wuhan University (Natural Science Edition), 2024,70(5):623−628.

[20] Stohl A, Forster C, Frank A, et al. Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2005,5(9):2461−2474.

[21] Pisso I, Sollum E, Grythe H, et al. The lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 10.4 [J]. Geoscientific Model Development, 2019,12(12):4955−4997.

[22] NCEP. NCEP FNL operational model global tropospheric analyses, continuing from July 1999 [DS]. UCAR/NCAR − Research Data Archive, 2000.

[23] Yu C, Zhao T, Bai Y, et al. Heavy air pollution with a unique "non−stagnant" atmospheric boundary layer in the Yangtze River middle basin aggravated by regional transport of $PM_{2.5}$ over China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020,20(12):7217−7230.

[24] 杨丹丹,王体健,李 树,等.基于走航观测的长江三角洲地区大气污染特征及来源追踪 [J]. 中国环境科学, 2019,39(9):3595−3603.
Yang D D, Wang T J, Li S, et al. Air pollution characteristics and source tracking in the Yangtze River Delta based on cruise observation [J]. China Environmental Science, 2019,39(9):3595−3603.

[25] Geng G, Liu Y, Liu Y, et al. Efficacy of China's clean air actions to tackle $PM_{2.5}$ pollution between 2013 and 2020 [J]. Nature Geoscience, 2024,17(10):987−994.

[26] GB3095—2012 环境空气质量标准 [S].
GB3095—2012 Ambient air quality standards [S].

[27] Chow W S, Liao K, Huang X H H, et al. Measurement report: The 10−year trend of $PM_{2.5}$ major components and source tracers from 2008 to 2017 in an urban site of Hong Kong, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2022,22(17):11557−11577.

[28] Zheng H, Kong S, Yan Q, et al. The impacts of pollution control measures on $PM_{2.5}$ reduction: insights of chemical composition, source variation and health risk [J]. Atmospheric Environment, 2019,197: 103−117.

[29] 赵倩彪,胡 鸣,伏晴艳.2016~2020 年上海市 $PM_{2.5}$ 化学组成特征和来源解析 [J]. 中国环境科学, 2022,42(11):5036−5046.
Zhao Q B, Hu M, Fu Y Q. Chemical characterization and source apportionment of fine particulate matter in Shanghai During 2016~2020 [J]. China Environmental Science, 2022,42(11):5036−5046.

[30] 景 宽,王友峰,刘保献,等.北京城区大气 $PM_{2.5}$ 组分特征与典型污染过程分析 [J]. 环境科学, 2025,46(5):2629−2641.
Jing K, Wang Y F, Liu B X, et al. Characteristics of $PM_{2.5}$ components and typical pollution episodes in the urban areas of Beijing [J]. Environmental Science, 2025,46(5):2629−2641.

[31] Pierson W R, Brachaczek W W, McKee D E. Sulfate emissions from catalyst−equipped automobiles on the highway [J]. Journal of the Air Pollution Control Association, 1979,29(3):255−257.

[32] Truex T J, Pierson W R, McKee D E. Sulfate in diesel exhaust [J]. Environmental Science & Technology, 1980,14(9):1118−1121.

[33] Sun Y, Zhuang G, Tang A, et al. Chemical characteristics of $PM_{2.5}$ and PM_{10} in haze−fog episodes in Beijing [J]. Environmental Science & Technology, 2006,40(10):3148−3155.

[34] Sun W, Berasategui M, Pozzer A, et al. Kinetics of $OH+SO_2+M$: temperature−dependent rate coefficients in the fall−off regime and the

influence of water vapour [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2022,22(7):4969−4984.

[35] Wang G, Zhang R, Gomez M E, et al. Persistent sulfate formation from London Fog to Chinese haze [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2016,113(48):13630−13635.

[36] Zhang R, Sun X, Shi A, et al. Secondary inorganic aerosols formation during haze episodes at an urban site in Beijing, China [J]. Atmospheric Environment, 2018,177:275−282.

[37] Xu M, Qiu P, He Y, et al. Sulfur isotope composition during heterogeneous oxidation of SO_2 on mineral dust: the effect of temperature, relative humidity, and light intensity [J]. Atmospheric Research, 2021,254:105513.

[38] Watson J G, Chow J C, Houck J E. $PM_{2.5}$ chemical source profiles for vehicle exhaust, vegetative burning, geological material, and coal burning in Northwestern Colorado during 1995 [J]. Chemosphere, 2001,43(8):1141−1151.

[39] Zhang R, Jing J, Tao J, et al. Chemical characterization and source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing: seasonal perspective [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013,13(14):7053−7074.

[40] Chang Y, Deng C, Cao F, et al. Assessment of carbonaceous aerosols in Shanghai, China – Part 1: long−term evolution, seasonal variations, and meteorological effects [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017,17(16):9945−9964.

[41] Wu C, Yu J Z. Determination of primary combustion source organic carbon−to−elemental carbon (OC/EC) ratio using ambient OC and EC measurements: secondary OC−EC correlation minimization method [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016,16(8):5453−5465.

[42] 毛鑫茹,李　玥,刘　璇,等.成都地区含碳气溶胶浓度及其光学特性 [J]. 中国环境科学, 2025,45(9):4861−4871.
Mao X R, Li Y, Liu X, et al. Carbonaceous aerosols concentration and optical properties in Chengdu [J]. China Environmental Science, 2025,45(9):4861−4871.

[43] 李朝阳,袁　亮,张小玲,等.成都碳质气溶胶变化特征及二次有机碳的估算 [J]. 中国环境科学, 2022,42(6):2504−2513.
Li C Y, Yuan L, Zhang X L, et al. Characteristics of carbonaceous aerosols and estimation of secondary organic carbon in Chengdu [J]. China Environmental Science, 2022,42(6):2504−2513.

[44] 刘世豪,孔少飞,郑　煌,等.武汉军运会前后大气 $PM_{2.5}$ 化学组分和来源 [J]. 环境科学, 2023,44(12):6452−6462.
Liu S H, Kong S F, Zheng H, et al. Chemical constituents and sources of $PM_{2.5}$around the Wuhan Military Games period [J]. Environmental Science, 2023,44(12):6452−6462.

[45] 张　炜,吕　童,刘建伟,等.北京市 $PM_{2.5}$ 载带重金属污染特征、来源及健康风险变化与政策效果评估 [J]. 环境科学, 2024,45(11):6229−6237.
Zhang W, Lu T, Liu J W, et al. Characteristics, sources, and health risk changes of heavy metal pollution carried by $PM_{2.5}$ in Beijing and evaluation of policy effectiveness [J]. Environmental Science, 2024, 45(11):6229−6237.

[46] 侯青叶,杨忠芳,余　涛,等.中国土壤地球化学参数 [M]. 北京:地质出版社, 2020.
Hou Q Y, Yang Z F, Yu T, et al. Soil geochemical parameters in China [M]. Beijing: Geological Publishing House, 2020.

[47] Amil N, Latif M T, Khan M F, et al. Seasonal variability of $PM_{2.5}$ composition and sources in the Klang Valley urban−industrial environment [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016,16(8): 5357−5381.

[48] Zong Z, Wang X, Tian C, 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.

[49] Bressi M, Sciare J, Ghersi V, et al. Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris (France) [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014,14(16):8813−8839.

[50] 张弘宇,翟诗婷,袁明浩,等.郑州市冬季重污染过程中 PM_1 和 $PM_{2.5}$ 的污染特征及来源 [J]. 中国环境科学, 2024,44(12):6617−6627.
Zhang H Y, Zhai S T, Yuan M H, et al. The pollution characteristics and sources of PM_1 and $PM_{2.5}$ during heavy pollution events in winter in Zhengzhou, China [J]. China Environmental Science, 2024,44(12): 6617−6627.

[51] An J, Duan Q, Wang H, et al. Fine particulate pollution in the Nanjing northern suburb during summer: composition and sources [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2015,187:561.

作者简介：郑　煌(1991−),男,湖北武汉人,副教授,博士,主要从区域大气污染研究.发表论文 70 余篇.zhengh@wust.edu.cn.