

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第5期

Vol.35 No.5

2014

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

长三角地区秸秆燃烧排放因子与颗粒物成分谱研究	唐喜斌, 黄成, 楼晟荣, 乔利平, 王红丽, 周敏, 陈明华, 陈长虹, 王倩, 李贵玲, 李莉, 黄海英, 张钢锋 (1623)
南京市大气颗粒物中水溶性离子的粒径分布和来源解析	薛国强, 朱彬, 王红磊 (1633)
2011年春季沙尘天气影响下上海大气颗粒物及其化学组分的变化特征	李贵玲, 周敏, 陈长虹, 王红丽, 王倩, 楼晟荣, 乔利平, 唐喜斌, 李莉, 黄海英, 陈明华, 黄成, 张钢锋 (1644)
结合外场观测分析珠三角二次有机气溶胶的数值模拟	郭晓霜, 司徒淑婷, 王雪梅, 丁翔, 王新明, 闫才青, 李小滢, 郑玫 (1654)
2013年夏季嘉兴市一次光化学事件的观测分析	沈利娟, 李莉, 吕升, 张孝寒, 吴博, 章国骏, 王翥 (1662)
移动监测法测量厦门春秋季节近地面 CO ₂ 的时空分布	李燕丽, 邢振雨, 穆超, 杜可 (1671)
秸秆烟尘和灰烬中元素碳的稳定同位素组成	刘刚, 李久海, 徐慧, 吴丹, 刘艳 (1680)
连续测量大气·OH的化学电离飞行时间质谱仪的研制	窦健, 花磊, 侯可勇, 蒋蕾, 谢园园, 赵无垠, 陈平, 王卫国, 田地, 李海洋 (1688)
我国重点城市水源及水厂出水中乙草胺的残留水平	于志勇, 金芬, 李红岩, 安伟, 杨敏 (1694)
巢湖水体组分垂向分布特征及其对水下光场的影响	马孟泉, 张玉超, 钱新, 马荣华, 段洪涛 (1698)
京杭大运河(杭州段)典型断面水生植物多样性调查及其与水环境相关性研究	陆胤, 许晓路, 张德勇, 王莉, 朱旭妮, 冯凤, 周巧君, 谢鹏 (1708)
合肥市区典型景观水体氮磷污染特征及富营养化评价	李如忠, 刘科峰, 钱靖, 杨继伟, 张翩翩 (1718)
重庆园博园龙景湖新建初期内源氮磷分布特征及扩散通量估算	潘延安, 雷沛, 张洪, 单保庆, 李杰 (1727)
千岛湖库区及其主要入库河流水中有机氯农药残留污染特征及健康风险评价	唐访良, 张明, 徐建芬, 阮东德, 陈峰, 吴志旭, 程新良 (1735)
九龙江流域潜在病原菌污染分析	侯丽媛, 胡安谊, 马英, 于昌平 (1742)
江湖关系变化对鄱阳湖沉积物重金属分布及生态风险影响	刘婉清, 倪兆奎, 吴志强, 王圣瑞, 曾清如 (1750)
鄱阳湖-乐安河湿地水土环境中重金属污染的时空分布特征	简敏菲, 李玲玉, 徐鹏飞, 陈朴青, 熊建秋, 周雪玲 (1759)
典型岩溶水系统中溶解性有机质的运移特征	姚昕, 邹胜章, 夏日元, 许丹丹, 姚敏 (1766)
基于扰动分析方法的 AnnAGNPS 模型水文水质参数敏感性分析	席庆, 李兆富, 罗川 (1773)
混合胁迫条件下蓝藻运动特性研究	孙秀秀, 丛海兵, 高郑娟, 崔朝杰, 曹倩倩 (1781)
不同波长和强度光照对水体汞还原的影响	李希嘉, 钟紫旋, 孙荣国, 杨鲲, 王定勇 (1788)
地下水中常见离子对纳米零价铁除 Se(IV) 动力学的影响	杨文君, 郭迎庆, 杜尔登 (1793)
溴氧化铋可见光催化降解高效氯氟酯的研究	彭一莱, 赵小蓉, 贾漫珂, 周薇, 黄应平 (1798)
石墨烯基磁性复合材料吸附水中亚甲基蓝的研究	常青, 江国栋, 胡梦璇, 黄佳, 唐和清 (1804)
电化学氧化 PFOA 阳极材料筛选及其机制研究	卓琼芳, 邓述波, 许振成, 余刚 (1810)
典型抗生素在中国西南地区某污水处理厂中的行为和归趋	甘秀梅, 严清, 高旭, 张怡昕, 訾成方, 彭绪亚, 郭劲松 (1817)
颗粒状大孔阴树脂去除有机物以及缓解膜污染的效果与机制	何欢, 董秉直, 许光红, 闫昭辉 (1824)
石墨-活性炭纤维复合电极电吸附处理含盐废水的研究	周贵忠, 王兆丰, 王珣, 李文倩, 李少香 (1832)
酞基甲基化聚苯乙烯的制备及废水生化处理应用	张华雨, 许晴, 牛春梅, 王亚君, 侯正浩, 李绍英, 陈延明, 廉静, 吴士彬, 郭建博 (1838)
FePMo ₁₂ 催化电化学反应降解染料废水的研究	王栗, 岳琳, 郭建博, 杨景亮, 廉静, 罗晓, 王开红 (1843)
实际污水培养好氧颗粒污泥及其特性研究	杨淑芳, 张健君, 邹高龙, 杜至力 (1850)
SFBR 中好氧颗粒污泥的培养及特性研究	龙焙, 杨昌柱, 濮文虹, 杨家宽, 白俊, 王晶, 周玄月, 蒋国盛, 李春阳, 刘福标 (1857)
不同好/厌氧区容积负荷对生物膜/颗粒污泥耦合工艺脱氮除磷的影响	尹航, 刘畅, 高辉, 高大文 (1866)
黄原酸化废弃污泥吸附 Cu ²⁺ 研究	岑艳, 全向春, 姜晓满 (1871)
轮叶黑藻和穗花狐尾藻对铜的吸收机制研究	薛培英, 李国新, 赵全利 (1878)
不同烧制温度下玉米秸秆生物炭的性质及对苯的吸附性能	黄华, 王雅雄, 唐景春, 朱文英 (1884)
北京常见绿化树种叶片富集重金属能力研究	李少宁, 孔令伟, 鲁绍伟, 陈波, 高琛, 石媛 (1891)
泰州市区重金属污染的薛袋法与路生法评价研究	陈勤, 方炎明, 颜赞, 陈步金 (1901)
放牧对呼伦贝尔草甸草原土壤呼吸温度敏感性的影响	王旭, 闫瑞瑞, 邓钰, 闫玉春, 辛晓平 (1909)
苹果园土壤呼吸的变化及生物和非生物因素的影响	王蕊, 郭胜利, 刘庆芳, 张彦军, 姜继超, 郭慧敏, 李如剑 (1915)
重庆铁山坪森林土壤汞释放通量的影响因子研究	王琼, 罗遥, 杜宝玉, 叶芝祥, 段雷 (1922)
上海市郊区养殖场周边环境砷含量特征	奚功芳, 周守标, 丁海城, 姚春霞, 孔娟娟 (1928)
不同施氮量下水稻分蘖期光合碳向土壤碳库的输入及其分配的量化研究: ¹³ C 连续标记法	谭立敏, 吴昊, 李卉, 周萍, 李科林, 王久荣, 葛体达, 袁红朝, 吴金水 (1933)
污灌区盐分累积对土壤汞吸附行为影响的模拟研究	郑顺安, 李晓华, 徐志宇 (1939)
石灰干化污泥稳定后土壤中 Pb、Cd 和 Zn 浸出行为的研究	李翔, 宋云, 刘永兵 (1946)
大连市海产品中短链氯化石蜡的含量与分布研究	虞俊超, 王宝盛, 王亚韩, 孟梅, 陈茹, 江桂斌 (1955)
应用生物配体模型(BLM)研究辽河与太湖水体中铜对大型溞的急性毒性	周腾耀, 曹莹, 覃璐玫, 张亚辉, 曾鸿鸣, 闫振广, 刘征涛 (1962)
氧化铜纳米颗粒对水稻幼苗根系代谢毒性的研究	王淑玲, 张玉喜, 刘汉柱, 辛华 (1968)
吐温 80 对苏云金芽孢杆菌降解三苯基锡的促进机制	黄捷, 叶锦韶, 尹华, 彭辉, 马嘉雯, 唐立椿, 王惜若 (1974)
牛粪混合液微生物燃料电池长期运行稳定性研究	焦燕, 张国栋, 赵庆良 (1981)
针铁矿对城市生活垃圾有机组分厌氧发酵的影响	杨露露, 岳正波, 陈天虎, 王进 (1988)
城市生活垃圾集装箱转运过程中污染物产生状况研究	王晓媛, 刘殷华, 汪飞, 黄长缨, 陆峰, 谢冰 (1994)
铈插层黏土负载铁催化剂在 H ₂ S 选择性催化氧化过程中催化性能的研究	孙超, 张鑫, 郝郑平, 窦广玉, 孙春宝 (2002)
脱硫类水滑石衍生复合氧化物不同方法的制备与表征	祝春蕾, 王海林, 孙春宝 (2010)
固定污染源排气中 PM _{2.5} 采样方法综述	蒋靖坤, 邓建国, 李振, 李兴华, 段雷, 郝吉明 (2018)
产甲烷微生物研究概况	李煜珊, 李耀明, 欧阳志云 (2025)
《环境科学》征稿简则(1961) 《环境科学》征订启事(1967) 信息(1643, 1687, 1803, 1837)	

结合外场观测分析珠三角二次有机气溶胶的数值模拟

郭晓霜¹, 司徒淑婷¹, 王雪梅^{1*}, 丁翔², 王新明², 闫才青³, 李小滢³, 郑玫³

(1. 中山大学环境科学与工程学院, 广州 510275; 2. 中国科学院广州地球化学研究所, 有机地球化学国家重点实验室, 广州 510640; 3. 北京大学环境科学与工程学院, 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 北京 100871)

摘要: 结合 2008 年 11 月 18 ~ 25 日期间珠三角地区的二次有机气溶胶 (SOA) 外场观测数据, 验证区域空气质量模式 WRF/Chem (weather research and forecasting model with chemistry) 中两种 SOA 化学机制——VBS (volatile basis set) 和 SORGAM (secondary organic aerosol model) 对珠三角 SOA 的模拟效果. VBS 机制考虑了更为广泛的 SOA 前体物和化学老化过程, SOA 模拟值更接近观测值, 能合理反映 SOA 观测值的逐天变化趋势, 与观测值的平均绝对偏差和相关性分别是 $-4.88 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 0.91, 而 SORGAM 机制的分别为 $-5.32 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 0.18. 利用 VBS 机制模拟区域内 SOA 的时空分布, 结果显示 SOA 浓度具有显著的昼夜变化特征, 浓度峰值出现在中午时段. 受到输送和臭氧区域分布的影响, 各城市 SOA 浓度差异显著, 下风向的城市 (如中山、珠海、江门) SOA 浓度较高.

关键词: 二次有机气溶胶; 数值模拟; 地面观测; VBS; SORGAM; 珠江三角洲

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)05-1654-08 DOI: 10.13227/j.hj.kx.2014.05.004

Numerical Modeling Analysis of Secondary Organic Aerosol (SOA) Combined with the Ground-based Measurements in the Pearl River Delta Region

GUO Xiao-shuang¹, SITU Shu-ping¹, WANG Xue-mei¹, DING Xiang², WANG Xin-ming², YAN Cai-qing³, LI Xiao-ying³, ZHENG Mei³

(1. School of Environmental Science and Engineering, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275, China; 2. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China; 3. State Key Joint Laboratory of Environment Simulation and Pollution Control, College of Environmental Sciences and Engineering, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: Two simulations were conducted with different secondary organic aerosol (SOA) methods—VBS (volatile basis set) approach and SORGAM (secondary organic aerosol model), which have been coupled in the WRF/Chem (weather research and forecasting model with chemistry) model. Ground-based observation data from 18th to 25th November 2008 were used to examine the model performance of SOA in the Pearl River Delta (PRD) region. The results showed that VBS approach could better reproduce the temporal variation and magnitude of SOA compared with SORGAM, and the mean absolute deviation and correlation coefficient between the observed and the simulated data using VBS approach were $-4.88 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ and 0.91, respectively, while they were $-5.32 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ and 0.18 with SORGAM. This is mainly because the VBS approach considers SOA precursors with a wider volatility range and the process of chemical aging in SOA formation. Spatiotemporal distribution of SOA in the PRD from the VBS simulation was also analyzed. The results indicated that the SOA has a significant diurnal variation, and the maximal SOA concentration occurred at noon and in the early afternoon. Because of the transport and the considerable spatial distribution of O_3 , the SOA concentrations were different in different PRD cities, and the highest concentration of SOA was observed in the downwind area, including Zhongshan, Zhuhai and Jiangmen.

Key words: secondary organic aerosol (SOA); numerical modeling; ground-based measurements; volatile basis set (VBS); secondary organic aerosol model (SORGAM); Pearl River Delta (PRD)

二次有机气溶胶 (secondary organic aerosol, SOA) 是由人为源和自然源排放的挥发性有机物 (anthropogenic/biogenic volatile organic compounds, A/BVOCs) 经光氧化过程、气态/粒子态均分过程和一次有机气溶胶的大气老化过程, 再经均相或异相氧化生成^[1], 是大气细粒子的重要组成部分^[2,3], SOA 因能直接或间接地影响人类健康、大气环境质量、气候和地球辐射平衡而越来越受到国内外的重视.

外场观测和数值模拟是 SOA 研究的两种主要手段. SOA 示踪物产率法是目前国际上新发展起来的获取大气中 SOA 浓度的重要方法, 其主要以 SOA 形成过程中的产物为示踪物, 通过测定示踪物的大

收稿日期: 2013-09-18; 修订日期: 2013-12-09

基金项目: 广东省自然科学基金重点项目 (S2012020011044); 公益性行业 (气象) 科研专项 (GYHY201406031)

作者简介: 郭晓霜 (1991 ~), 女, 硕士, 主要研究方向为大气环境, E-mail: gxs09358090@163.com

* 通讯联系人, E-mail: eeswxm@mail.sysu.edu.cn

气浓度,从而量化大气 SOA 的浓度^[4]. 传统意义上认为只有分子量较大的挥发性有机物 (volatile organic compounds, VOCs) 才能生成 SOA,并在此基础上发展了双产物的二次有机气溶胶模式 SORGAM. 但是 Claeyes 等^[5]发现异戊二烯 (isoprene) 可以经过光氧化反应产生大量 SOA. 结合这一发现, Jiang 等^[6]完善了 SORGAM 对 SOA 前体物的考虑,然而与外场观测结果相对比,模式仍然低估大气中的 SOA 浓度. 为进一步改善模式对 SOA 的模拟能力,基于 VOCs 挥发性差异和化学老化过程的 VBS 方法被建立和广泛应用. 研究表明,采用 VBS 方法的 SOA 模拟结果明显优于传统的方法^[1]. Tsimpidi 等^[7]用 VBS 机制在墨西哥的模拟发现,加入化学老化后 SOA 浓度的预测是原来的近 2 倍. Ahmadov 等^[8]利用 VBS 方法在美国模拟发现 SOA 在 OA 总质量中的质量分数是 80% ~ 90%,自然来源的二次有机气溶胶 BSOA 占 OA 质量分数可高达约 70%, VBS 方法对 SOA 的模拟在浓度和时间变化趋势上都具有较好的效果.

珠三角地区光化学污染问题突出,臭氧和细粒子是其主要的大气污染物. 在珠三角地区,有机碳浓度约占大气细粒子浓度的 33% ~ 40%^[9,10]. 同时,研究也指出该地区二次有机碳 (secondary organic carbon, SOC) 浓度占总 OC 浓度的 37.0% ~ 61.7%,二次生成是 OC 的重要来源^[10]. Ding 等^[11]采用示踪物的方法研究珠三角地区的 SOA,发现人为源为该区 SOA 的主要来源,占大气总 SOA 的 76% ~ 79%,同时指出 SOA 的示踪物与气溶胶酸度或周围温度均具有一定的相关性^[12]. 邓涛等^[13]采用三维空气质量模式 CMAQ 在珠三角的模拟发现 SOA 对消光的贡献超过 50%,在相对湿度达 90% 左右时,SOA 对消光的贡献超过 70%. Wang 等^[14]指出珠三角城市化过程导致爱根核模态 SOA 减少 30% 而积聚模态的占了近 70%,来自人为源的 SOA 增加了 14%. 然而,目前国内的研究少有将 SOA 的观测结果与模拟结果相结合,已逐渐成为 SOA 模拟计算主流的 VBS 方法在珠三角地区尚无应用.

本研究利用新一代中尺度空气质量模式 WRF/Chem,分别耦合目前主流的 SOA 化学机制——SORGAM 和 VBS,结合采用示踪物产率法获得的 SOA 外场观测结果,验证这两种不同的 SOA 模拟机制在珠三角地区的模拟效果,同时分析了研究时段内珠三角地区 SOA 的时空分布特征.

1 模式与采样分析

1.1 二次有机气溶胶模式

1.1.1 SORGAM

基于两种产物理论,二次有机气溶胶模式 SORGAM 被建立和发展起来^[15],并在过去较长时间内作为 SOA 模拟计算的主流方法. 图 1(a) 是简化的 SORGAM 机制. 前体物 VOC 经大气氧化剂氧化产生半挥发性产物 SVOC 和气态产物 GAS. SVOC 具有较低的饱和蒸气压,能通过核化、冷凝等转换为 SOA,在此过程中, SORGAM 假定低挥发性产物之间会相互影响,一方面,如果有气溶胶存在, SORGAM 采用一种准理想化方案,假定气/粒转换是颗粒态物质对气态产物的吸收过程,这种过程满足 Pankow^[16,17]提出的一种原则. 已有研究表明低挥发性产物的气/粒转换过程可以参数化为一种准理想化过程^[18~20]. 另一方面,当没有气溶胶态的有机吸收物质时,模式假定低挥发性产物的浓度必须高于一定浓度阈值才能转换为气溶胶态.

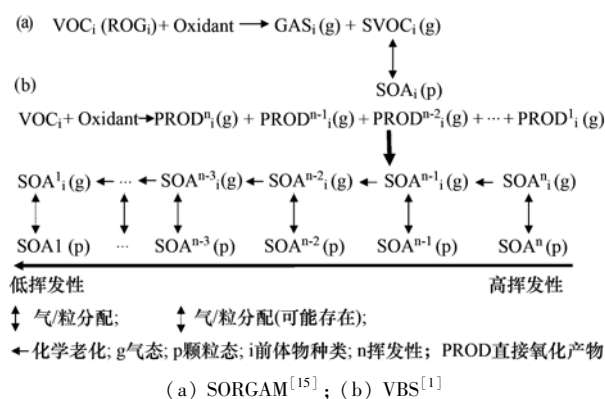


图 1 机制原理

Fig. 1 Schematic diagram of SORGAM and VBS

在前体物方面, SORGAM 考虑了 8 类活跃的 VOCs 氧化对 SOA 的生成贡献,其中 4 类来自人为源排放,包括 2 类芳香烃,1 类烷烃和 1 类烯烃; 4 类来自自然源排放,包括 α -蒎烯 (α -pinene) 和柠檬烯 (limonene) 分别氧化生成的 2 类半挥发性气体. SORGAM 尚未考虑 isoprene、中间挥发性有机物 (inter-mediate volatility organic compounds, IVOCs) 和一次有机气溶胶 (primary organic aerosol, POA) 以及化学老化对 SOA 总产量的影响^[21~25].

随着观测手段的不断发展,越来越多的观测结果指出 SORGAM 对 SOA 的模拟计算普遍存在低估,特别是在发生强光化学反应时^[26,27]. 在污染严重的城市地区这种情况更为明显.

1.1.2 VBS

为改善模式对 SOA 的低估, Lane 等^[1] 在 Odum 等^[18] 提出的产量方程的基础上, 建立了 VBS 方法, 其简化的机制原理见图 1(b). VBS 把 VOCs 在 300K 的饱和浓度下分成几个等级(bin), 分别计算不同 bin 产生的 SOA. VBS 包括了目前可知的所有 SVOCs、IVOCs 和 VOCs 的 SOA 前体物, 共 11 类. VBS 的另一个优势在于考虑了氧化过程的光化学老化. 光化学老化是指光化学反应阶段的前体物经光氧化, 除了产生 SOA 还会生成其他氧化有机产物, 这些有机物与 OH 发生氧化反应后有机产物挥发性降低, 然后进入低一级的 bin 继续氧化^[7,28,29]. 同时, VBS 可以: ①计算上百种化合物的 SOA 生成而无需大量参数; ②简单地耦合新的实验成果而无需改动模式框架; ③计算多个数量级的有机气溶胶浓度; ④描述均相凝结/凝聚过程和异相化学过程^[1].

使用完整的 VBS 机制模拟 SOA 可能会出现 SOA 超报现象^[7,30], 在城市下风向尤为显著^[30]. 同时在不影响 SOA 模拟效果的基础上对 VBS 机制进行适当的简化, 能大大降低计算耗时, 有助于 SOA 的预报^[31]. SVOCs 和 IVOCs 经化学老化能产生大量 SOA, 传统模式中, 低挥发性前体物产生的 SOA 只占人为来源二次有机气溶胶 ASOA 的 25%, 加入化学老化后却能占到 85%^[28,32]. 因此, 本研究将重点突出化学老化在 SOA 形成模拟中的重要作用, 所以采用适当简化的 VBS 机制, 不考虑 POA 对 SOA 产量的贡献.

1.2 模拟方案设置

本研究使用 WRF/Chem v3.4.1, 以广州 (23.055°N, 113.402°E) 为模拟区域中心, 采用 2 重嵌套 (见图 2, d01 和 d02), 网格距分别为 9 km 和 3 km. 模拟时段在 2008 年 11 月 16 日 00:00 至 26 日 00:00 (世界时), 前 48 h 为模式预热时间. 模式气象场由全球再分析气象数据 FNL 驱动, 化学初始条件和边界条件由全球化学模式 MOZART 提供, 污染源采用本地精细化的区域污染源排放清单^[33]. 垂直向上设置 24 层, 模式顶层气压 50 kPa, 其中边界层内层有 10 层.

本研究设置两套模拟方案, 参数化设置列于表 1. case1 的化学机制采用 VBS, case2 采用 SORGAM. RACM 是 RADM2 的升级版, 气相化学反应处理相似, 能够降低痕量气体模拟差异对 SOA 模拟结果的影响.

表 1 模式参数化方案设置	
Table 1 Model configurations	
物理选项	微物理过程
	Lin
	长波辐射
	RRTM
	短波辐射
	Goddard
化学选项	路面过程
	Noah
	行星边界层方案
	Mellor-Yamada-Janjic
化学选项	城市冠层方案
	BET
	气相化学机制
	RACM (case1)
	RADM2 (case2)
化学选项	气溶胶机制
	MADE/VBS (case1)
	MADE/SORGAM (case2)
化学选项	光解机制
	F-TUV

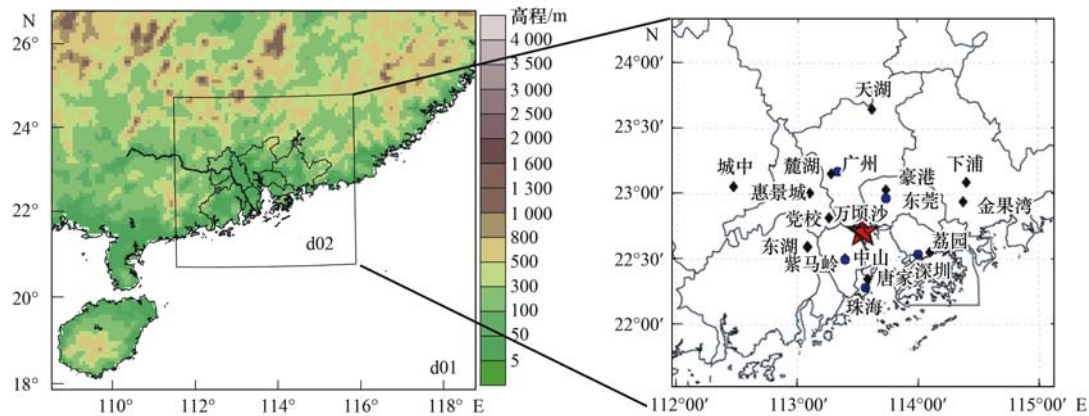


图 2 模拟区域, 地表高程, 空气质量监测站和气象站位置

Fig. 2 Modeling domain, topography and location of air quality monitoring sites and meteorological monitoring sites

1.3 外场观测

本研究的采样点设在广州的万顷沙镇 (见图 2), 该点位于珠三角地区的中心, 能反映区域复合污染状态^[34]. 在 2008 年 11 月 18~25 日, 使用大流

量采样器 (Tisch, 1.1 m³·min⁻¹) 和直径 8×10 英寸的石英膜, 连续 24 h (19:00~次日 19:00) 采集 PM_{2.5} 样品. 采样前, 采样器使用仪器原厂配置的校准装置校准, 石英膜在 550℃ 马弗炉烘烤 5.5 h, 然

后用铝箔包裹保存在 4℃ 条件下硅胶防潮的密封袋中,采样后样品存放在 -20℃ 条件下. 监测时段内,珠三角地区无明显天气变化,有零星小雨分布,但不影响采样结果.

样品分析过程,每张石英膜取 1/8,使用体积比为 1:1 的二氯甲烷和甲醇混合溶液 40 mL 超声提取样品 3 次. 溶剂提取前,在样品中加入同位素标记的正十六酸-D₃₁、邻苯二甲酸-D₄ 和左旋葡聚糖-¹³C₆ 作为内标. 每个样品经溶剂提取、过滤,浓缩到 2 mL,然后将每个样品分成两部分. 一份样品在氮气下吹干,加入 200 μL 二氯甲烷,10 μL 甲醇和 300 μL 新鲜制备的重氮甲烷,室温下进行甲酯化反应 1 h. 甲酯化后的样品定容至 200 μL,使用气相色谱-质谱仪(GC-MSD)分析单萜烯(monoterpenes)的 SOA 示踪物. 另一份样品吹干后加入 100 μL 吡啶和含有 1% TMCS (trimethylchlorosilane) 的 BSTFA [*N*, *O*-bis-(trimethylsilyl)-trifluoroacetamide] 200 μL,置于 70℃ 的烘箱中反应 1 h. 硅醚烷化后的样品分析单萜烯(monoterpenes)、异戊二烯(isoprene)、倍半萜烯(sesquiterpenes)和芳香烃(aromatics)的 SOA 示踪物(见表 2). 硅醚烷化和甲酯化样品的典型总离子色谱图见文献[12]所示. 本研究采用 Agilent 7890-5975 GC-MSD,使用 30 m 的 HP-5MS 毛细管柱,以全扫描模式分析,1 μL 样品无分流进样. GC 初始温度 65℃

(持续 2 min),然后按 5℃·min⁻¹ 的速率升温至 290℃,保持 20 min. *cis*-蒎酮酸(*cis*-pinonic acid)和蒎酸(pinic acid)由标准物质进行定量. 由于没有标样, isoprene 的示踪物用赤藓糖醇(erythritol)定量^[5,35], monoterpenes 的 3 种大分子示踪物用蒎酸(pinic acid)定量; sesquiterpene 和 aromatics 的示踪物分别用硬脂酸(octadecanoic acid)和壬二酸(azelaic acid)定量^[12]. 这些 SOA 示踪物通过比较质谱碎片^[4, 5, 36],以及 GC 色谱图中其他已知化合物的保留时间来确定,经化学离子源(CI)模式确认结构,再在电子电离源(EI)模式下进行定量. 该方法对 *cis*-pinonic acid、pinic acid、erythritol、octadecanoic acid 和 azelaic acid 的检测限分别为 0.05、0.07、0.06、0.09 和 0.11 ng·m⁻³. Kleindienst 等^[4]只采用酮基蒎酸(ketopininc acid)进行示踪物定量,与之相比,不同的示踪物使用不同标样定量产生的不确定性在 3 以内^[37]. 在 Kleindienst 等^[4]实验室模拟的基础上,SOA 示踪物的质量分数定义:

$$f_{\text{SOA}} = \frac{\sum_i [\text{tr}_i]}{[\text{SOA}]}$$

式中, $\sum_i [\text{tr}_i]$ 是某前体物 *i* 的所有示踪物浓度总和, [SOA] 是 SOA 质量浓度, f_{SOA} 是示踪物占气溶胶的质量分数,对应的 f_{SOA} 见表 3.

表 2 实验分析的示踪物种类
Table 2 Tracer species in the experiment

前体物	样本处理	示踪物
aromatics	硅醚烷化	2,3-dihydroxy-4-oxopentanoic acid
isoprene	硅醚烷化	C ₅ -alkentriols, 2-methylglyceric acid, 2-methylthreitol, 2-methylerythritol
monoterpenes	甲酯化	<i>cis</i> -pinonic acid, pinic acid, 3-methyl-1,2,3-butanetricarboxylic acid
	硅醚烷化	3-hydroxyglutaric acid, 3-hydroxy-4,4-dimethylglutaric acid
sesquiterpenes	硅醚烷化	β-caryophyllinic acid

表 3 示踪物的质量分数和 11 月 18 ~ 25 日 SOA 浓度
Table 3 Mass fraction of the SOA tracer concentrations and SOA concentration during Nov. 18th-25th

SOA/μg·m ⁻³	f_{SOA}	18	19	20	21	22	23	24	25
isoprene	0.063	0.15	0.13	0.31	0.37	1.16	0.52	0.59	0.44
monoterpenes	0.168	0.09	0.05	0.05	0.11	0.23	0.25	0.08	0.15
sesquiterpenes	0.011	0.25	0.05	0.15	0.49	1.23	0.73	0.26	0.41
Sum BSOA	—	0.48	0.23	0.51	0.97	2.62	1.50	0.93	1.00
aromatics	0.004	2.10	1.07	3.32	6.01	12.22	7.11	2.61	4.90
Sum SOA	—	2.58	1.31	3.83	6.98	14.84	8.62	3.55	5.89

2 结果与讨论

2.1 模式验证

本研究采用广州、深圳、东莞、中山、珠海

这 5 个气象观测站点和粤港空气质量监测网 13 个空气质量观测站点(见图 2)同期观测的气象要素(2 m 温度、10 m 风速和 2 m 相对湿度)和空气污染物(NO₂、O₃ 和 PM₁₀)数据,验证模式气

象场和空气污染物模拟结果的平均绝对偏差 (Bias)、平均绝对误差 (MAE)、平均相对误差 (MRE)、平方根误差 (RMSE)、相关性 (Cor), 见表 4 和表 5. 整体而言, 模式模拟气象条件是合理的. 两个 case 都较好地模拟了 NO_2 、 O_3 和

PM_{10} 的环境浓度和时间变化, 污染物浓度模拟结果可信. 图 3 是 11 月 18 ~ 25 日万顷沙 NO_2 、 O_3 和 $\text{PM}_{2.5}$ 的模拟值和观测值随时间变化, 两个 case 在万顷沙 O_3 的模拟效果最好且空气污染物的模拟效果相当.

表 4 d02 气象验证变量统计

Table 4 Statistics of meteorological verification variables

项目	OBSSave	SIMave	Bias	MAE	MRE(无单位)	RMSE	Cor(无单位)
2 m 温度/ $^{\circ}\text{C}$	292.3	294.2	2.0	2.1	0.0	2.4	0.9
10 m 风速/ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	2.3	5.9	3.5	3.5	2.4	3.8	0.6
2 m 相对湿度/%	54.6	64.4	9.8	11.3	0.2	13.1	0.8

表 5 空气污染物模拟验证统计/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

Table 5 Verification statistics of air pollutants simulation/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

Case	污染物	OBSSave	SIMave	Bias	MAE	RMSE	Cor(无单位)
case 1	NO_2	46.5	37.9	-8.5	19.0	24.5	0.5
	PM_{10}	97.8	93.4	-4.0	37.9	47.5	0.4
	O_3	64.0	63.1	-0.6	24.3	31.9	0.7
case 2	NO_2	46.5	50.5	4.0	26.8	35.9	0.5
	PM_{10}	97.8	106.4	8.5	36.3	45.1	0.6
	O_3	64.0	81.4	17.9	28.5	34.9	0.7

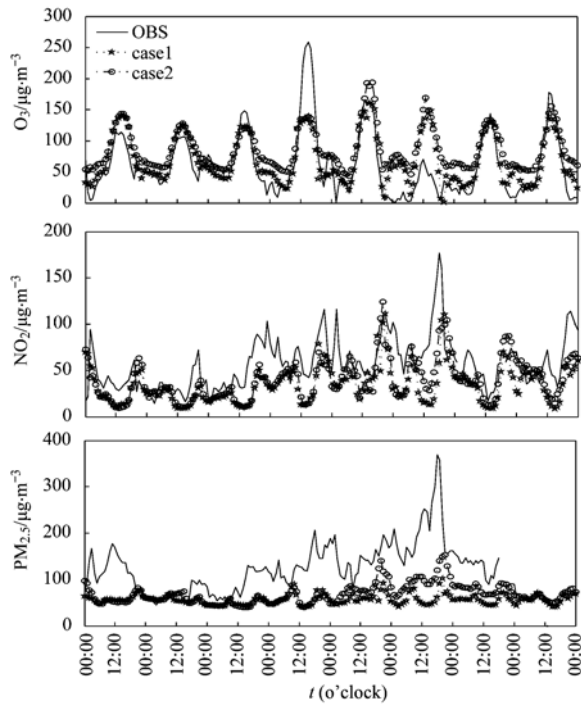


图 3 万顷沙观测和模拟的 O_3 、 NO_2 和 $\text{PM}_{2.5}$ 的对比

Fig. 3 Comparison of observed and simulated O_3 , NO_2 and $\text{PM}_{2.5}$ at WQS

2.2 观测结果与模拟结果分析

SOA 观测结果列于表 3. 研究时段内珠三角的 ASOA 占总 SOA 浓度的 73.5% ~ 86.7%, BSOA 仅占 13.4% ~ 26.3%. isoprene 氧化生成的 SOA 占总

BSOA 的 30.5% ~ 63.1%, 其次是 monoterpenes, 与之前的研究结论一致^[38,39]. BVOCs 的排放受温度和光强影响^[40], 一般在高温强太阳辐射的夏季排放量最大, 秋冬季排放量较小^[12,34]. aromatics 主要来自工业溶剂挥发和汽车尾气排放^[41,42], 是珠三角含量最丰富的挥发性有机物^[42,43], 全年排放量较为稳定. 所以, 本研究时段内珠三角的 ASOA 浓度远高于 BSOA 浓度.

温度降低有助于气/粒分配过程中颗粒相的产生和 SOA 产量增加^[11,44], 同时, 高温有利于 SOA 前体物的排放和示踪物的光氧化过程, 温度变化对 SOA 生成的物理和化学过程有相反的作用. 研究时段内, 万顷沙站的平均温度变化范围小, 对 SOA 生成的影响小. 高混合层有利于 SOA 扩散, 低混合层有利于 SOA 积累^[45], 风速增大有利于大气污染物沿着风向输送^[46], 氧化剂对 SOA 的形成起关键作用^[33], 相对湿度增大促进气溶胶粒子的冷凝和增长. 研究时段内, 混合层高度先下降再升高, 22 日和 23 日混合层高度最低 (<http://envf.ust.hk/dataview/profile/current/>); 风速同样是先降低再升高, 最小值出现在 22 日 ($1.5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$), 最大值出现在 18 日 ($3.6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$), 约是最小风速的 2.3 倍. O_3 的观测浓度和相对湿度都呈现先升再降的趋势, 在 21 和 22 日出现 O_3 浓度高值分别是 $92.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和

$66.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 22 和 23 日的相对湿度均大于 60%。因此, 22 日既是 O_3 浓度和相对湿度的高值点也是风速和混合层高度的低值点, 周围气象条件有利于 SOA 形成而不利扩散, 所以 SOA 观测浓度值呈现先上升再下降的变化, 峰值出现在 22 日 ($14.84 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)。

对比观测和模拟的 SOA 浓度 (见图 4), case1 和 case2 对 22 日 SOA 的模拟浓度分别为 $4.11 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $1.76 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别是观测值的 0.28 和 0.12。尽管两个 case 都不同程度地低估了 SOA 浓度, 但 VBS 和 SORGAM 方案的模拟结果差异显著。采用 VBS 方案的 case1 的模拟值更接近观测值, 模拟时段内的 SOA 模拟平均绝对偏差为 $-4.88 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 采用 SORGAM 方案的 case2 则为 $-5.32 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。同时, case1 较好地再现了模拟时段内 SOA 浓度的时间变化趋势, 其模拟值与观测值的相关性达 0.91, case2 的仅为 0.18。总体而言, 采用 VBS 方案的 case1 对 SOA 的模拟优于采用 SORGAM 方案的 case2。VBS 和 SORGAM 的模拟结果与模式理论分析结论一致。

2.3 模拟 SOA 的时空分布

图 5 是 case1 中珠三角 22 日的 SOA 和 O_3 区域平均浓度的昼夜变化。从中可见, O_3 和 SOA 浓度的昼夜变化趋势相似, 最低值在 07:00, 分别是 $21.30 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.81 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。随着太阳辐射的增强, 温度的升高, 大气光化学反应加强, O_3 和 SOA 浓度上升, 在 15:00 达到最高值, 分别为 $160.68 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $7.06 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。15:00 以后, 由于太阳辐射强度减弱, O_3 浓度逐渐降低, 但区域 SOA 浓度峰值一直持续

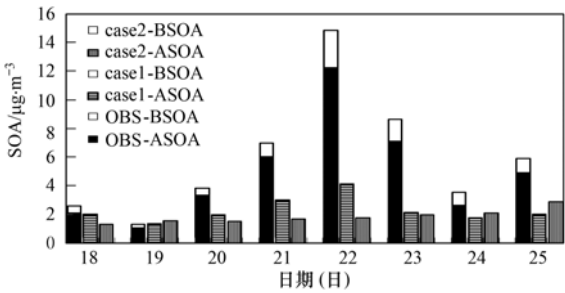


图 4 SOA 浓度的观测值和模拟值对比
Fig. 4 Comparison of observed and simulated SOA

到 18:00。这可能是由于: ①VBS 考虑 SOA 的形成是一个持续氧化的反应过程, 挥发性较低的前体物在大气氧化水平较低的时刻仍可继续反应生成 SOA; ②15:00 以后气温开始下降, 有利于低挥发性物质从气相向颗粒相的转化。

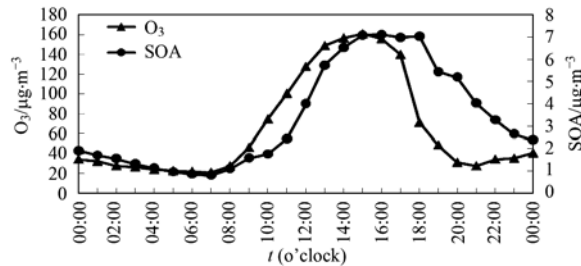


图 5 SOA 和 O_3 浓度昼夜时刻变化
Fig. 5 Diurnal variation of SOA and O_3 concentrations

图 6 为 SOA 和 O_3 浓度最高时刻 15:00 的浓度的空间分布情况。从图 6(a) 可知, 该时刻模拟区域内 SOA 浓度的空间分布差异显著, SOA 浓度高值在下风向 (图中风场箭头指向为风向) 地区和珠江口附近地区出现, 包括江门 ($10.93 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、中山 (8.40

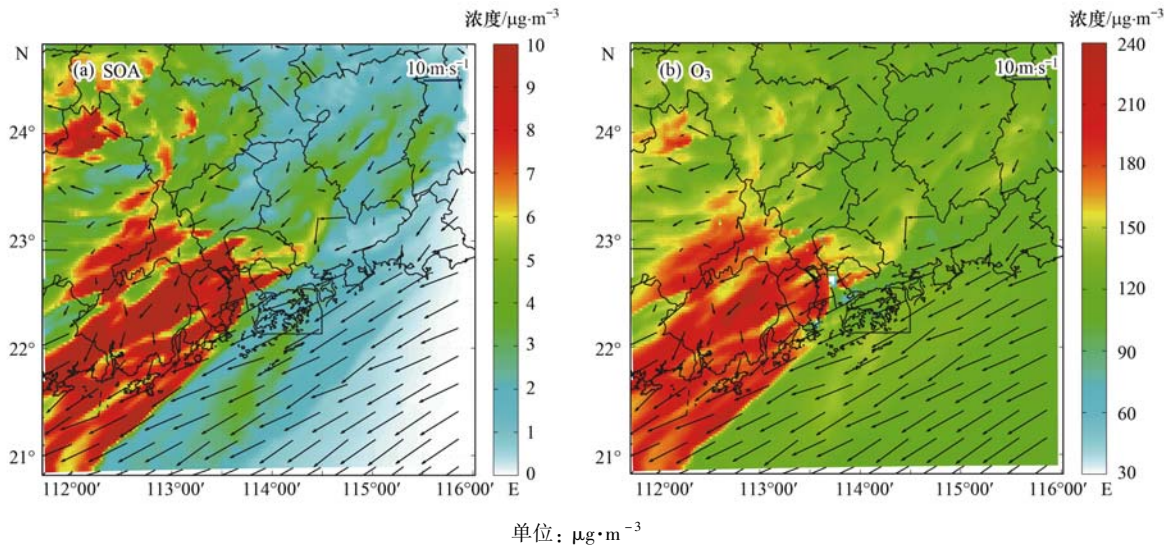


图 6 15:00 模拟区域内 SOA 和 O_3 浓度空间分布
Fig. 6 Spatial distribution of SOA and O_3 at 15:00 LT

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、珠海($13.80\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、广州南部以及佛山和肇庆交界地区。这主要是因为:①SOA 能沿着风向进行长距离输送,下风方向利于 SOA 的累积;②SOA 浓度高值区同为 O_3 高浓度区域,大气氧化程度高,利于 SOA 的氧化生成。深圳和惠州位于上风方向而且 O_3 浓度相对较低,不利于 SOA 的累积和生成,因此深圳和惠州平均的 SOA 浓度在珠三角 9 个城市中最低,分别为 $2.74\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $5.53\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

2.4 展望

本研究的观测数据是在单个站点进行 24 h 连续采样,在下一步的研究中可以考虑提高观测数据的时间分辨率和增加观测站点,得到区域更详细的 SOA 观测值。同时,本研究初步对比了两种 SOA 机制在珠三角的应用情况,与观测的结果仍存在较显著的差距。下一步的工作将继续优化模式,进一步减小模拟和观测之间的差距,提高模式对珠三角地区 SOA 模拟的能力。

3 结论

(1) 观测结果显示,秋冬季珠三角地区 SOA 以人为源为主,占总 SOA 浓度的 73.5%~86.7%。

(2) VBS 机制考虑了更为广泛的 SOA 前体物及其氧化过程的化学老化,SOA 模拟值更接近观测值,能合理反映 SOA 观测值的逐天变化趋势,与观测值的平均绝对偏差和相关性分别是 $-4.88\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 0.91。

(3) 采用 VBS 机制的模拟结果显示,模拟区域内 SOA 具有显著的时空变化特征,受输送和大气氧化水平的影响,SOA 浓度高值出现在下风向的城市,如中山、珠海、江门等。

参考文献:

- [1] Lane T E, Donahue N M, Pandis S N. Simulating secondary organic aerosol formation using the volatility basis-set approach in a chemical transport model [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(32): 7439-7451.
- [2] Kanakidou M, Seinfeld J H, Pandis S N, *et al.* Organic aerosol and global climate modelling: a review [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2005, **5**: 1053-1123.
- [3] Zhang Q, Jimenez J L, Canagaratna M R, *et al.* Ubiquity and dominance of oxygenated species in organic aerosols in anthropogenically influenced Northern Hemisphere midlatitudes [J]. *Geophysical Research Letters*, 2007, **34**(13): L13801.
- [4] Kleindienst T E, Jaoui M, Lewandowski M, *et al.* Estimates of the contributions of biogenic and anthropogenic hydrocarbons to secondary organic aerosol at a southeastern US location [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(37): 8288-8300.
- [5] Claeys M, Graham B, Vas G, *et al.* Formation of secondary organic aerosols through photooxidation of isoprene [J]. *Science*, 2004, **303**(5661): 1173-1176.
- [6] Jiang F, Liu Q, Huang X X, *et al.* Regional modeling of secondary organic aerosol over China using WRF/Chem [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2012, **43**(1): 57-73.
- [7] Tsimpidi A P, Karydis V A, Zavala M, *et al.* Evaluation of the volatility basis-set approach for the simulation of organic aerosol formation in the Mexico City metropolitan area [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(2): 525-546.
- [8] Ahmadov R, McKeen S A, Robinson A L, *et al.* A volatility basis set model for summertime secondary organic aerosols over the eastern United States in 2006 [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2012, **117**(D6): 148-227.
- [9] Cao J J, Lee S C, Ho K F, *et al.* Characteristics of carbonaceous aerosol in Pearl River Delta Region, China during 2001 winter period [J]. *Atmospheric Environment*, 2003, **37**(11): 1451-1460.
- [10] Cao J J, Lee S C, Ho K F, *et al.* Spatial and seasonal variations of atmospheric organic carbon and elemental carbon in Pearl River Delta Region, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**(27): 4447-4456.
- [11] Ding X, Wang X M, Gao B, *et al.* Tracer-based estimation of secondary organic carbon in the Pearl River Delta, south China [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2012, **117**(D5): D05313.
- [12] Ding X, Wang X M, Zheng M. The influence of temperature and aerosol acidity on biogenic secondary organic aerosol tracers: Observations at a rural site in the central Pearl River Delta region, South China [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(6): 1303-1311.
- [13] 邓涛, 吴兑, 邓雪娇, 等. 珠江三角洲一次典型复合型污染过程的模拟研究 [J]. *中国环境科学*, 2012, **32**(2): 193-199.
- [14] Wang X M, Wu Z Y, Liang G X. WRF/CHEM modeling of impacts of weather conditions modified by urban expansion on secondary organic aerosol formation over Pearl River Delta [J]. *Particulology*, 2009, **7**(5): 384-391.
- [15] Schell B, Aclermann I J, Hass H, *et al.* Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2001, **106**(D22): 28275-28293.
- [16] Pankow J F. An absorption model of gas/particle partitioning of organic compounds in the atmosphere [J]. *Atmospheric Environment*, 1994, **28**(2): 185-188.
- [17] Pankow J F. An absorption model of the gas/aerosol partitioning involved in the formation of secondary organic aerosol [J]. *Atmospheric Environment*, 1994, **28**(2): 189-193.
- [18] Odum J R, Hoffmann T, Bowman F, *et al.* Gas/particle partitioning and secondary organic aerosol yields [J]. *Environmental Science and Technology*, 1996, **30**(8): 2580-2585.
- [19] Odum J R, Jungkamp T P W, Griffin R J, *et al.* The atmospheric aerosol-forming potential of whole gasoline vapor

- [J]. Science, 1997, **276**(5309): 96-99.
- [20] Hoffmann T, Odum J R, Bowman F, *et al.* Formation of organic aerosol from the oxidation of biogenic hydrocarbons [J]. Journal of Atmospheric Chemistry, 1997, **26**(2): 189-222.
- [21] Robinson A L, Donahue N M, Shrivastava M K, *et al.* Rethinking organic aerosols: Semivolatile emissions and photochemical aging [J]. Science, 2007, **315**(5816): 1259-1262.
- [22] Presto A A, Miracolo M A, Kroll J H, *et al.* Intermediate-volatility organic compounds: A potential source of ambient oxidized organic aerosol [J]. Environmental Science and Technology, 2009, **43**(13): 4744-4749.
- [23] Miracolo M A, Presto A A, Lambe A T, *et al.* Photo-Oxidation of low-volatility organics found in motor vehicle emissions: production and chemical evolution of organic aerosol mass [J]. Environmental Science and Technology, 2010, **44**(5): 1638-1643.
- [24] Lipsky E M, Robinson A L. Effects of dilution on fine particle mass and partitioning of semi-volatile organics in diesel exhaust and wood smoke [J]. Environmental Science and Technology, 2006, **40**(1): 155-162.
- [25] Donahue N M, Robinson A L, Stanier C O, *et al.* Coupled partitioning, dilution, and chemical aging of semivolatile organics [J]. Environment Science Technology, 2006, **40**(8): 2635-2643.
- [26] Heald C L, Jacob D J, Park R J, *et al.* A large organic aerosol source in the free troposphere mission from current models [J]. Geophysical Research Letters, 2005, **32**(18): L18809.
- [27] Karydis V A, Tsimpidi A P, Pandis S N. Evaluation of a three-dimensional chemical transport model (PMCAMx) in the eastern United States for all four seasons [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2007, **112**(D14): D14211.
- [28] Ng N L, Kwan A J, Surratt J D, *et al.* Secondary organic aerosol (SOA) formation from reaction of isoprene with nitrate radicals (NO_3) [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2008, **8**(14): 4117-4140.
- [29] Kroll J H, Chan, A W H, Ng N L, *et al.* Reactions of semi-volatile organics and their effects on secondary organic aerosol formation [J]. Environmental Science and Technology, 2007, **41**(10): 3545-3550.
- [30] Dzepina K, Cappa C D, Volkamer R M, *et al.* Modeling the multiday evolution and aging of secondary organic aerosol during MILAGRO 2006 [J]. Environmental Science and Technology, 2011, **45**(8): 3496-3503.
- [31] Shrivastava M, Fast J, Easter R, *et al.* Modeling organic aerosols in a megacity: comparison of simple and complex representations of the volatility basis set approach [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2011, **11**(13): 6639-6662.
- [32] Materials and methods are available as supporting material on Science Online [EB/OL].
- [33] Zheng J Y, Zhang L J, Che W W, *et al.* A highly resolved temporal and spatial air pollutant emission inventory for the Pearl River Delta region, China and its uncertainty assessment [J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(32): 5112-5122.
- [34] Zheng J Y, Zheng Z Y, Yu Y F, *et al.* Temporal, spatial characteristics and uncertainty of biogenic VOC emissions in the Pearl River Delta region, China [J]. Atmospheric Environment, 2010, **44**(16): 1960-1969.
- [35] Ding X, Zheng M, Yu L P, *et al.* Spatial and seasonal trends in biogenic secondary organic aerosol tracers and water-soluble organic carbon in the southeastern United States [J]. Environmental Science and Technology, 2008, **42**(14): 5171-5176.
- [36] Claeys M, Szmigielski R, Kourchev I, *et al.* Hydroxycarboxylic acids: Markers for secondary organic aerosol from the photooxidation of α -pinene [J]. Environmental Science and Technology, 2007, **41**(5): 1628-1634.
- [37] Hu D, Bian Q J, Li T W Y, *et al.* Contributions of isoprene, monoterpenes, β -caryophyllene, and toluene to secondary organic aerosols in Hong Kong during the summer of 2006 [J]. Journal of Geophysical Research, 2008, **113**(D22): D22206.
- [38] Helmig D, Klinger L, Guenther A, *et al.* Biogenic volatile organic compound emissions (BVOCs) I. Identifications from three continental sites in the U. S [J]. Chemosphere, 1999, **38**(9): 2163-2187.
- [39] Vizuite W, Junquera V, Allen D T. Sesquiterpene emissions and secondary organic aerosol formation potentials for southeast Texas [J]. Aerosol Science and Technology, 2004, **38**(S1): 167-181.
- [40] Rinne H J I, Guenther A B, Greenberg J P, *et al.* Isoprene and monoterpene fluxes measured above Amazonian rainforest and their dependence on light and temperature [J]. Atmospheric Environment, 2002, **36**(14): 2421-2426.
- [41] Chan LY, Chu K W, Zou S C, *et al.* Characteristics of nonmethane hydrocarbons (NMHCs) in industrial, industrial-urban, and industrial-suburban atmospheres of the Pearl River Delta (PRD) region of south China [J]. Journal of Geophysical Research, 2006, **111**(D11): D11304.
- [42] Zheng J Y, Shao M, Che W W, *et al.* Speciated VOC emission inventory and spatial patterns of ozone formation potential in the Pearl River Delta, China [J]. Environmental Science and Technology, 2009, **43**(22): 8580-8586.
- [43] Barletta B, Meinardi S, Simpson I J, *et al.* Ambient mixing ratios of nonmethane hydrocarbons (NMHCs) in two major urban centers of the Pearl River Delta (PRD) region: Guangzhou and Dongguan [J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(18): 4393-4408.
- [44] Sheehan P E, Bowman F M. Estimated effects of temperature on secondary organic aerosol concentrations [J]. Environmental Science and Technology, 2001, **35**(11): 2129-2135.
- [45] Strader R, Lurmann F, and Pandis S N. Evaluation of secondary organic aerosol formation in winter [J]. Atmospheric Environment, 1999, **33**(29): 4849-4863.
- [46] 程艳丽, 李湉湉, 白郁华, 等. 珠江三角洲区域大气二次有机气溶胶的数值模拟 [J]. 环境科学, 2009, **30**(12): 3441-3447.

CONTENTS

Emission Factors and PM Chemical Composition Study of Biomass Burning in the Yangtze River Delta Region	TANG Xi-bin, HUANG Cheng, LOU Sheng-rong, <i>et al.</i> (1623)
Size Distributions and Source Apportionment of Soluble Ions in Aerosol in Nanjing	XUE Guo-qiang, ZHU Bin, WANG Hong-lei (1633)
Characteristics of Particulate Matters and Its Chemical Compositions During the Dust Episodes in Shanghai in Spring, 2011	LI Gui-ling, ZHOU Min, CHEN Chang-hong, <i>et al.</i> (1644)
Numerical Modeling Analysis of Secondary Organic Aerosol (SOA) Combined with the Ground-based Measurements in the Pearl River Delta Region	GUO Xiao-shuang, SITU Shu-ping, WANG Xue-mei, <i>et al.</i> (1654)
Observation of a Photochemical Event in Jiaying During Summer 2013	SHEN Li-juan, LI Li, LÜ Sheng, <i>et al.</i> (1662)
Spatial and Temporal Variations of Near Surface Atmospheric CO ₂ with Mobile Measurements in Fall and Spring in Xiamen, China	LI Yan-li, XING Zhen-yu, MU Chao, <i>et al.</i> (1671)
Isotope Compositions of Elemental Carbon in the Smoke and Ash from Crop Straw Combustion	LIU Gang, LI Jiu-hai, XU Hui, <i>et al.</i> (1680)
Development of a Chemical Ionization Time-of-Flight Mass Spectrometer for Continuous Measurements of Atmospheric Hydroxyl Radical	DOU Jian, HUA Lei, HOU Ke-yong, <i>et al.</i> (1688)
Residual Levels of Acetochlor in Source Water and Drinking Water of China's Major Cities	YU Zhi-yong, JIN Fen, LI Hong-yan, <i>et al.</i> (1694)
Vertical Distribution of Water Quality and Its Influence on Underwater Light Field in Lake Chaohu	MA Meng-xiao, ZHANG Yu-chao, QIAN Xin, <i>et al.</i> (1698)
Correlation Between Aquatic Plant Diversity and Water Environment in the Typical Sites of Hangzhou Section of the Beijing-Hangzhou Grand Canal	LU Yin, XU Xiao-lu, ZHANG De-yong, <i>et al.</i> (1708)
Nitrogen and Phosphate Pollution Characteristics and Eutrophication Evaluation for Typical Urban Landscape Waters in Hefei City	LI Ru-zhong, LIU Ke-feng, QIAN Jing, <i>et al.</i> (1718)
Distribution of Nitrogen and Phosphorus in the Sediments and Estimation of the Nutrients Fluxes in Longjing Lake, Chongqing City, During the Initial Impoundment Period	PAN Yan-an, LEI Pei, ZHANG Hong, <i>et al.</i> (1727)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Organochlorine Pesticides (OCPs) in the Water of Lake Qiandao and Its Major Input Rivers	TANG Fang-liang, ZHANG Ming, XU Jian-fen, <i>et al.</i> (1735)
Distribution of Potential Pathogenic Bacteria in the Jiulong River Watershed	HOU Li-yuan, HU An-yi, MA Ying, <i>et al.</i> (1742)
Influence of the River-lake Relation Change on the Distribution of Heavy Metal and Ecological Risk Assessment in the Surface Sediment of Poyang Lake	LIU Wan-qing, NI Zhao-kui, WU Zhi-qiang, <i>et al.</i> (1750)
Spatiotemporal Variation Characteristics of Heavy Metals Pollution in the Water, Soil and Sediments Environment of the Lean River-Poyang Lake Wetland	JIAN Min-fei, LI Ling-yu, XU Peng-fei, <i>et al.</i> (1759)
Dissolved Organic Matter (DOM) Dynamics in Karst Aquifer Systems	YAO Xin, ZOU Sheng-zhang, XIA Ri-yuan, <i>et al.</i> (1766)
Sensitivity Analysis of AnnAGNPS Model's Hydrology and Water Quality Parameters Based on the Perturbation Analysis Method	XI Qing, LI Zhao-lu, LUO Chuan (1773)
Movement Characteristics of <i>Cyanobacteria</i> Under Stress of Water-Lifting Aeration	SUN Xiu-xiu, CONG Hai-bing, GAO Zheng-juan, <i>et al.</i> (1781)
Influence of Light Wavelength and Intensity on the Reduction of Divalent Mercury in Aquatic System	LI Xi-jia, ZHONG Zi-xuan, SUN Rong-guo, <i>et al.</i> (1788)
Dynamic Effects of Commonly Co-Existing Anions on the Removal of Selenite from Groundwater by Nanoscale Zero-Valent Iron	YANG Wen-jun, GUO Ying-qing, DU Er-deng (1793)
BiOBr Promoted the Photocatalytic Degradation of Beta-cypermethrin Under Visible Light	PENG Yi-zhu, ZHAO Xiao-rong, JIA Man-ke, <i>et al.</i> (1798)
Adsorption of Methylene Blue from Aqueous Solution onto Magnetic Fe ₃ O ₄ /Graphene Oxide Nanoparticles	CHANG Qing, JIANG Guo-dong, HU Meng-xuan, <i>et al.</i> (1804)
Selection of Electrochemical Anodic Materials for PFOA Degradation and Its Mechanism	ZHUO Qiong-fang, DENG Shu-bo, XU Zhen-cheng, <i>et al.</i> (1810)
Occurrence and Fate of Typical Antibiotics in a Wastewater Treatment Plant in Southwest China	GAN Xiu-mei, YAN Qing, GAO Xu, <i>et al.</i> (1817)
Effects and Mechanism on Removing Organics and Reduction of Membrane Fouling Using Granular Macro-Porous Anion Exchange Resin in Drinking Water Treatment	HE Huan, DONG Bing-zhi, XU Guang-hong, <i>et al.</i> (1824)
Research on Treatment of High Salt Wastewater by the Graphite and Activated Carbon Fiber Composite Electrodes	ZHOU Gui-zhong, WANG Zhao-feng, WANG Xuan, <i>et al.</i> (1832)
Preparation and Application of the Quinonyl Chloromethylation Polystyrene in Biological Treatment of Wastewater	ZHANG Hua-yu, XU Qing, NIU Chun-mei, <i>et al.</i> (1838)
Enhanced Electro-Catalytic Oxidation of Dye Wastewater with FeMo ₁₂ Adopted Catalyst	WANG Li, YUE Lin, GUO Jian-bo, <i>et al.</i> (1843)
Formation and Characterization of Aerobic Granules in a Pilot-scale Reactor for Real Wastewater Treatment	YANG Shu-fang, ZHANG Jian-jun, ZOU Gao-long, <i>et al.</i> (1850)
Research on Cultivation of Aerobic Granular Sludge and Its Characteristics in Sequencing Fed Batch Reactor	LONG Bei, YANG Chang-zhu, PU Wen-hong, <i>et al.</i> (1857)
Effect of Different Volume Loading of Aerobic/Anaerobic Zone on Nitrogen and Phosphorus Removal by Biofilm and Granular Sludge Coupling Process	YIN Hang, LIU Chang, GAO Hui, <i>et al.</i> (1866)
Adsorption of Cu ²⁺ by Xanthate-Functionalized Waste Sludge	CEN Yan, QUAN Xiang-chun, JIANG Xiao-man (1871)
Mechanisms of Copper Uptake by Submerged Plant <i>Hydrilla verticillata</i> (L. f.) Royle and <i>Myriophyllum spicatum</i> L.	XUE Pei-ying, LI Guo-xin, ZHAO Quan-li (1878)
Properties of Maize Stalk Biochar Produced Under Different Pyrolysis Temperatures and Its Sorption Capability to Naphthalene	HUANG Hua, WANG Ya-xiong, TANG Jing-chun, <i>et al.</i> (1884)
Beijing Common Green Tree Leaves' Accumulation Capacity for Heavy Metals	LI Shao-ming, KONG Ling-wei, LU Shao-wei, <i>et al.</i> (1891)
Assessment of Heavy Metal Contamination by Moss-bag Method and Road-dust Method for Taizhou Urban Area	CHEN Qin, FANG Yan-ming, YAN Yun, <i>et al.</i> (1901)
Effect of Grazing on the Temperature Sensitivity of Soil Respiration in Hulunber Meadow Steppe	WANG Xu, YAN Rui-rui, DENG Yu, <i>et al.</i> (1909)
Variation Characteristic in Soil Respiration of Apple Orchard and Its Biotic and Abiotic Influencing Factors	WANG Rui, GUO Sheng-li, LIU Qing-fang, <i>et al.</i> (1915)
Influencing Factors of Mercury Emission Flux from Forest Soil at Tieshanping, Chongqing	WANG Qiong, LUO Yao, DU Bao-yu, <i>et al.</i> (1922)
Characteristics of Arsenic Content in the Livestock Farms' Surrounding Environment in Shanghai Suburbs	XI Gong-fang, ZHOU Shou-biao, DING Hai-cheng, <i>et al.</i> (1928)
Input and Distribution of Rice Photosynthesized Carbon in the Tillering Stage Under Different Nitrogen Application Following Continuous ¹³ C Labeling	TAN Li-min, WU Hao, LI Hui, <i>et al.</i> (1933)
Simulation Study on the Effect of Salinity on the Adsorption Behavior of Mercury in Wastewater-Irrigated Area	ZHENG Shun-an, LI Xiao-hua, XU Zhi-yu (1939)
Leaching Behavior of Pb, Cd and Zn from Soil Stabilized by Lime Stabilized Sludge	LI Xiang, SONG Yun, LIU Yong-bing (1946)
Levels and Distribution of Short Chain Chlorinated Paraffins in Seaford from Dalian, China	YU Jun-chao, WANG Thanh, WANG Ya-wei, <i>et al.</i> (1955)
Application of Biotic Ligand Model for the Acute Toxicity of Copper to <i>Daphnia magna</i> in Water of Liaohe River and Taihu Lake	ZHOU Teng-yao, CAO ying, QIN Lu-mei, <i>et al.</i> (1962)
Phytotoxicity of Copper Oxide Nanoparticles to Metabolic Activity in the Roots of Rice	WANG Shu-ling, ZHANG Yu-xi, LIU Han-zhu, <i>et al.</i> (1968)
Enhancing Effect of Tween 80 on Degradation of Triphenyltin by <i>Bacillus thuringiensis</i>	HUANG Jie, YE Jin-shao, YIN Hua, <i>et al.</i> (1974)
Long-term Performance of Microbial Fuel Cell Using Manure as Substrate	JIAO Yan, ZHANG Guo-dong, ZHAO Qing-liang (1981)
Influence of Goethite on Anaerobic Fermentation of Organic Fraction of Municipal Solid Waste (OFMSW)	YANG Lu-lu, YUE Zheng-bo, CHEN Tian-hu, <i>et al.</i> (1988)
Pollutants Produced in Municipal Refuse Container During Transfer Process	WANG Xiao-yuan, LIU Yin-hua, WANG Fei, <i>et al.</i> (1994)
Selective Catalytic Oxidation of H ₂ S over Supported Fe Catalysts on CeO ₂ -Intercalated Laponite Clay	SUN Chao, ZHANG Xin, HAO Zheng-ping, <i>et al.</i> (2002)
Preparation by Different Methods and Characterization of Desulfurization Mixed Oxides Derived from Hydrotalcites	ZHU Chun-lei, WANG Hai-lin, SUN Chun-bao (2010)
Sampling Methods for PM _{2.5} from Stationary Sources: a Review	JIANG Jing-kun, DENG Jian-guo, LI Zhen, <i>et al.</i> (2018)
A Research Overview of Methanogens	LI Yu-shan, LI Yao-ming, OUYANG Zhi-yun (2025)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2014年5月15日 35卷 第5期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 5 May 15, 2014

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行