ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第7期

Vol.37 No.7

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办

科学出版社 出版

双效期刊

环境科学
(HUANJING KEXUE) ENVIRONMENTAL SCIENCE
第37卷 第7期
2016年7月15日

目 次

2015年北京市两次红色预警期间 $PM_{2.5}$ 浓度特征 …… 程念亮,张大伟,陈添,石爱军,孙峰,刘保献,邹本东,王琴,李倩,王小菊,姜磊,孟凡(2409)
北京市冬季雾霾天人体呼吸高度 $PM_{2.5}$ 变化特征对气象因素的响应 …… 张南,熊黑钢,葛秀秀,段鹏程,毛先如,王亚龙(2419)
兰州大气细颗粒物中多环芳烃污染特征及来源分析 …… 李英红,饶志国,谭吉华,段菁春,马永亮,贺克斌(2428)
南京北郊冬季 $PM_{2.5}$ 中芳香酸的测定及来源解析 …… 张亚飞,马嫣,亓鲁,王振,王利朋,朱麟(2436)
海洋-大气过程对南海气溶胶数浓度谱分布的影响 …… 孔亚文,盛立芳,刘骞,李秀镇(2443)
新疆准东煤田降尘重金属污染及健康风险评价 …… 杨春,塔西甫拉提·特依拜,侯艳军,高宇潇,刘芳,夏楠(2453)
重庆地区大气场降水中氢氧同位素变化特征及与大气环流的关系 …… 温艳茹,王建力(2462)
湖水氢氧同位素组分的时间变化特征及影响因子分析 …… 徐敬争,肖薇,肖启涛,王伟,温学发,胡诚,刘诚,刘寿东,李旭辉(2470)
河水-地下水侧向交互带地球化学特征:以重庆市马鞍溪为例 …… 张宇,杨平恒,王建力,谢世友,陈峰,詹兆君,任娟,张海月,刘黛薇,孟元可(2478)
亚热带典型岩溶溪流水气界面 CO_2 交换通量变化过程及其环境影响 …… 李丽,蒲俊兵,李建鸿,于奭,肖琼,张陶(2487)
淹水条件下三峡库区典型消落带土壤释放 DOM 的光谱特征:紫外-可见吸收光谱 …… 梁俭,江韬,卢松,魏世强,王定勇,陈雪霜,王齐磊(2496)
淹水条件下三峡库区典型消落带土壤释放 DOM 的光谱特征:荧光光谱 …… 梁俭,江韬,卢松,魏世强,王定勇,陈雪霜,王齐磊(2506)
华东地区某水源水中13种磺胺类抗生素的分布特征及人体健康风险评价 …… 金磊,姜蕾,韩琪,薛佳怡,叶辉,曹国民,林匡飞,崔长征(2515)
北京水环境中氯胺酮和去甲氯胺酮的浓度水平 …… 张华方,杨军,杜鹏,王琮淙,李喜青(2522)
输水期间于桥水库流域水体中溶解态多环芳烃的分布特征与风险 …… 昌盛,赵兴茹,付青,郭睿,王山军(2530)
卤系阻燃剂在东江工业水体中的质量浓度及其分配特征 …… 何明靖,李琦,赵佳渊,王登祥(2539)
岩溶地下河水中多环芳烃、脂肪酸分布特征及来源分析 …… 谢正兰,孙玉川,张媚,廖昱,江泽利,王尊波,梁作兵(2547)
哈尔滨主城区不同下垫面融雪径流污染特性 …… 孙夕涵,刘硕,万鲁河,王宏(2556)
降水对洋河水质和水体微生物的影响 …… 卢思丹,孙寓姣,赵轩,王蕾,郑丹阳(2563)
不同磷源下铜绿微囊藻的生长差异及对砷酸盐的响应 …… 王振红,张汉鹏,罗专溪(2570)
布洛芬和双氯芬酸在不同构型人工湿地中的去除行为研究 …… 景瑞瑛,杨扬,戴玉女,万翔,邰义萍,樊静静(2577)
化学预氧化对苏氨酸生成三氯乙醛的影响 …… 蔡广强,傅学敏,刘丽君,卢小艳,张金松,刘嘉祺,曲莹(2586)
活性炭负载 Co_3O_4 活化过一硫酸盐降解金橙 G …… 王忠明,陈家斌,张黎明,李文卫,黄天寅(2591)
碳纳米管活化过一硫酸盐降解金橙 G 过程及动力学 …… 张黎明,陈家斌,李文卫,王忠明,黄天寅(2601)
碳纳米管修饰电极电催化还原去除废水中的氯霉素 …… 邓飞,唐柏彬,张进忠,汤民,刘江(2610)
铁刨花-Fenton-絮凝工艺对染料生产废水中 AOX、色度和 TOC 的去除效果研究 …… 舒小铭,徐灿灿,文晓刚,朱静娜,赵远,刘锐,陈吕军(2618)
Fenton 氧化去除制药企业活性污泥中 AOX 的效果研究 …… 陈思,徐灿灿,刘锐,李国华,陈吕军,郑炜(2625)
中试规模微气泡曝气生物膜反应器运行性能评估 …… 刘春,张晶,张静,陈晓轩,张磊,曹丽亚(2632)
基于 CANON 工艺的新型 HABR 反应器生物脱氮性能研究 …… 鲍林林,陈婉秋(2639)
异养与硫自养反硝化协同处理高硝氮废水特性研究 …… 李祥,马航,黄勇,朱亮,杨朋兵,朱强(2646)
基于高通量测序的 ABR 厌氧氨氧化反应器各隔室细菌群落特征分析 …… 陈重军,张海芹,汪瑶琪,喻徐良,王建芳,沈耀良(2652)
NUA-DAS 生态滤池脱氮效果与反硝化菌特征研究 …… 汪龙眠,仇皓雨,车昱晓,张松贺,郭照冰,张毅敏(2659)
葡萄藻生物膜贴壁培养处理含钴工业废水与烃类生产的耦合 …… 程鹏飞,王艳,杨期勇,汤明,刘天中(2666)
拉乌尔菌 sari01 的分离及其异养硝化好氧反硝化特性 …… 颜薇芝,郝健,孙俊松,史吉平(2673)
海水异养硝化-好氧反硝化芽孢杆菌 $SLWX_2$ 的筛选及脱氮特性 …… 成钰,李秋芬,费聿涛,张艳(2681)
焦化废水活性污泥中降解硫氰化物细菌种群多样性分析 …… 徐伟超,蒙小俊,尹莉,张玉秀,李海波,曹宏斌(2689)
浮游微型真核生物群落对电厂温排水增温的响应 …… 戴文芳,阳石页,阙治家,熊金波(2696)
磷脂脂肪酸(PLFA)法检测蒙古沙冬青根围土壤微生物群落结构 …… 左易灵,贺学礼,王少杰,赵丽莉(2705)
半干旱区土壤微生物呼吸对极端降水的响应 …… 赵慢,王蕊,李如剑,杜兰兰,吴得峰,孙棋棋,高鑫,郭胜利(2714)
三峡库区消落带 N_2O 排放及其影响因素 …… 李睿,雷利国,江长胜,柴雪思,黄哲,范志伟,郝庆菊(2721)
不同量碳源输入梯度下果园排水沟底泥氮素反硝化与 N_2O 排放研究 …… 高雪梅,佘冬立,颜晓元,夏永秋(2731)
冬季污泥堆肥过程温室气体排放特征 …… 易建婷,杨雨洽,张成,陈宏,赵秀兰,木志坚(2738)
藏东南色季拉山土壤中有机氯农药和多环芳烃的浓度分布及来源解析 …… 罗东霞,张淑娟,杨瑞强(2745)
基于地质统计及随机模拟技术的天津武清区土壤重金属源解析 …… 宋志廷,赵玉杰,周其文,刘潇威,张铁亮(2756)
水热变化对三峡水库消落带紫色土有机碳矿化的影响 …… 丁长欢,王莲阁,唐江,慈恩,谢德体(2763)
减磷配施有机肥对紫色土旱坡地磷素流失的消减效应 …… 韩晓飞,高明,谢德体,王子芳,陈晨(2770)
水稻根际与非根际土壤硫素赋存形态转化及其迁移规律 …… 杜光辉,饶伟,李鑫,张亚楠,王代长,杨军,化党领,刘世亮,李培培,刘红恩(2779)
组配改良剂对污染稻田中 Pb、Cd、Cu 和 Zn 钝化效果持续性比较 …… 吴玉俊,周航,杨文弢,邹紫今,朱维,辜娇峰,彭佩钦,张平,曾敏,廖柏寒(2791)
生物法回收贵金属铂纳米颗粒及其机制 …… 商儒,朱能武,康乃馨,石超宏(2799)
热处理天然褐铁矿制备 γ-Fe_2O_3 及其 NH_3-SCR 活性探究 …… 徐彬,陈天虎,刘海波,朱承驻,陈冬,邹雪华,蒋阳(2807)
《环境科学》征订启事(2569) 《环境科学》征稿简则(2576) 信息(2744, 2769, 2790)

海洋-大气过程对南海气溶胶数浓度谱分布的影响

孔亚文[1],盛立芳[1,2,3*],刘骞[1],李秀镇[4]

(1. 中国海洋大学海洋与大气学院,青岛 266100; 2. 中国海洋大学物理海洋教育部重点实验室,青岛 266100; 3. 中国海洋大学山东省高校海洋-大气相互作用与气候重点实验室,青岛 266100; 4. 中国卫星海上测控部,江阴 214431)

摘要: 利用 2012 年 8 月 28 日至 10 月 13 日期间走航观测的气溶胶数据,分析了南海气溶胶数浓度时空分布和粒径谱分布特征,以及海洋-大气过程的影响. 结果表明,南海气溶胶数浓度的时空分布和粒径谱分布受海洋和陆地源以及当地气象条件如风速、风向、相对湿度、云量、温度等的共同影响. 陆地气团影响下的海域气溶胶数浓度较大,达2 300 个·cm^{-3}; 受陆地影响较小的海域大气较为洁净,气溶胶数浓度在1 200 个·cm^{-3}以下. 观测得到的气溶胶粒径谱包括积聚模态和粗模态,峰值分别位于 0.08 ~ 0.2 μm 和 0.5 ~ 2 μm 附近. 出现频率较高的谱型有 3 种: 陆地型,海洋背景 1 型和海洋背景 2 型. 陆地型与海洋 2 型的谱分布形状基本一致,但后者次微米粒子数浓度非常小,是洁净海洋背景下最常见的谱型; 海洋 1 型在 0.05 ~ 0.1 μm 粒径段数浓度显著高于海洋 2 型,并且在大于 0.5 μm 的粗粒子段,海洋 1 型的气溶胶数浓度超过陆地型气溶胶数浓度,暗示了海洋源对这两个粒径段的粒子数浓度的贡献. 0.05 ~ 0.12 μm 的积聚模态粒子数浓度与低云量有明显的正相关关系,且当相对湿度达 90% ~ 95% 时,0.08 μm 附近的粒子数浓度增加显著. 0.5 ~ 6 μm 的粗模态海洋气溶胶对风速的依赖性较强,相关性达 0.7; 0.05 ~ 0.12 μm 气溶胶数浓度与风速呈现弱正相关; 0.12 ~ 0.5 μm 粒子数浓度与风速呈负相关. 随着相对湿度的增大,0.08 ~ 0.12 μm 的粒子数浓度降低,而 0.05 ~ 0.08 μm 和 0.5 ~ 6 μm 的粒子数浓度增大. 降水过程中,各粒径段粒子数浓度逐渐降低,但在降水初期,相对湿度达到 90% ~ 95%,0.05 ~ 0.12 μm 和 0.5 ~ 6 μm 的粒子数浓度显著增大,随后逐渐减小.

关键词:南海; 海洋气溶胶; 数浓度; 粒径谱; 气象条件

中图分类号: X513 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2016)07-2443-10 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.2016.07.005

Impact of Marine-atmospheric Process on Aerosol Number Size Distribution in the South China Sea

KONG Ya-wen[1], SHENG Li-fang[1,2,3*], LIU Qian[1], LI Xiu-zhen[4]

(1. College of Oceanic and Atmospheric Sciences, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 2. Key Laboratory of Physical Oceanography, Ministry of Education, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 3. Key Laboratory of Ocean-Atmosphere Interaction and Climate in University of Shandong Province, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 4. China Satellite Maritime Tracking and Control Department, Jiangyin 214431, China)

Abstract: The shipboard measurements of aerosol number concentration from August 28th to October 13th, 2012 were conducted to analyze the characteristics of temporal-spatial distribution and number size distribution of marine aerosol in the South China Sea. The impact of meteorological condition on the marine aerosol was also analyzed in this paper. The result showed that the temporal-spatial distribution and number size distribution of marine aerosol were influenced by the backward trajectory of the air masses and the time they spent over the sea, and the meteorological conditions in the local sea area such as wind speed, wind direction, temperature, relative humidity and cloud cover. In terms of temporal-spatial distribution of marine aerosol in the South China Sea, the aerosol in the sea areas under the influence of continental air mass concentration showed much higher concentration than that in the clean maritime air mass (2 300 cm^{-3} vs. 1 200 cm^{-3}). During the ship observation, three kinds of number size distribution of marine aerosol were found and classified: polluted type, marine type 1 and marine type 2 (clean). All the distributions had a similar sub-micron mode and a similar coarse mode. The marine type 2 (clean) had the same distribution shape as polluted type except that the value of concentration was much lower. The sub-micron peak of marine type 1 appeared near 0.08 μm and its concentration was significantly higher than that of marine type 2 (clean). Non-precipitating clouds as well as abundant moisture contributed to the growth of ultrafine particles to the size of accumulation mode aerosol (0.05-0.12 μm). Number concentration of particles in this range showed weak positive correlation with wind speed since wind can enhance the efficiency of sea-air exchange and accelerate the release of gas precursors of sulfate aerosol to the atmosphere. The concentration of coarse particles ranging from 0.5-6 μm in diameter strongly depended on the wind speed, and the correlation coefficient reached a value of 0.7.

Key words: South China Sea; marine aerosol; number concentration; particle size distribution; meteorological condition

收稿日期: 2015-11-01; **修订日期**: 2016-02-25
基金项目: 国家自然科学基金项目(41276009); 海洋公益性行业科研专项(201505007)
作者简介: 孔亚文(1990 ~),女,硕士研究生,主要研究方向为海洋气象,E-mail:kyawen@126.com
* 通讯联系人,E-mail:shenglf@ouc.edu.cn

海洋气溶胶通过直接吸收和散射太阳辐射,或通过形成云凝结核影响云的反照率间接地影响太阳辐射,进而影响气候[1,2]. 特别是直径为 0.1 ~ 1.0 μm 的粒子,无论是对于光的散射还是作为云-滴成核粒子都是非常高效的[2,3].

远离陆地影响的海洋气溶胶主要包括两类:海洋飞沫气溶胶和二次气溶胶[4,5]. 海洋飞沫或称为初级海洋气溶胶,主要成分为海盐和有机物质,产生于海洋表面的机械扰动,直接喷射入大气中. 研究表明,粗粒子(r > 0.5 μm)主要成分是海盐,其浓度与风速有显著地正相关[6]. 二次气溶胶,即非海盐硫酸盐气溶胶和有机物种来自气态前体的转化,如在大气中的均质成核,在液滴内的异相成核,和发生在已有粒子表面的冷凝过程. 非海盐硫酸盐气溶胶是细粒子(r < 0.3 μm)的重要组成成分,源于海洋生物排放的气态前体二甲基硫(DMS)氧化产物的气粒转化[6,7]. 在受陆地影响较大的海域,陆地上传输的污染也是硫酸盐气溶胶的来源[8].

在远海,气溶胶数浓度粒径谱分布一般呈现 3 个模态:爱根核模态、积聚模态和粗模态. 3 个模态峰值分别位于直径 0.03 ~ 0.06、0.1 ~ 0.2 和 1 μm 附近[2,9]. 普遍认为,次微米的气溶胶的双峰谱型是云过程的结果,即在这两个峰处的颗粒提供了层积云和弱积雨云云凝结核[10].

气溶胶的演化和各粒径段数浓度的变化受到气溶胶来源、在源地经历的时间以及气象要素等的共同影响[11~13]. 导致气溶胶数浓度增长的过程是成核现象和初级气溶胶的排放[14],而凝结和干、湿沉降过程可导致气溶胶数浓度减少. 对于超细粒子(<10 nm)而言,冷凝增长的过程是高效和迅速的,因此超细粒子的存在时间短暂,仅有数小时. 随着粒子尺寸增长至 10 ~ 100 nm 的爱根核模态,凝结的过程变得非常缓慢. 当粒子尺寸达到 0.1 ~ 1 μm 的积聚模态时,干沉降的影响变得很小,主要的清除机制为湿沉降,因此积聚模态在大气中停留的时间较长. 爱根核模态和积聚模态的生命周期为几天到一周(依赖于降水和云过程频率)[12].

有研究证明,海洋气溶胶的云过程可以促进细粒子或气态前体转化至积聚模态[12,15,16],例如,O'Dowd 等[17]发现多云天气下,边界层内积聚模态的数浓度明显大于背景气溶胶数浓度,这是由于可溶气溶胶气态前体在云滴中氧化加强,促进了细粒子增长至积聚模态的尺寸; Hoppel 等[18]通过对边界层内的云覆盖进行统计等方法证明了非降水云可促进气态前体和更小粒子转化为 0.08 ~ 0.15 μm 尺寸的积聚模态粒子,挥发性实验表明这个尺寸的气溶胶主要是硫酸盐类. 此外,很多的研究都在云雾和一定的湿度条件下观测到了积聚模态粒子数浓度的"暴增"现象,证明了液相氧化在激活粒子尺寸增长方面的作用[19,20]. 一些研究认为,海洋初级生产力依赖于温度. 较高温度的天气下,大气中的 DMS 和非海盐硫酸盐的产量更高[3,21,22].

一些研究表明气溶胶粒径谱分布可以反映气溶胶在气团内的演化过程[12,23]. Dusek 等[24]指出,在成为 CCN 的能力方面,气溶胶的尺寸比化学成分更为重要. 因此,了解气溶胶尺寸分布特征和时空变化,在探究气溶胶的直接和间接气候强迫方面是很有帮助的[25].

由于气溶胶形成过程的复杂性和在大气中的停留时间相对短暂(在对流层底部一般是 1 ~ 2 周),它们的特性和分布的时空变化都很大[3]. 弄清楚影响气溶胶时空变化的因素以及描述这些变化是气溶胶研究的一个重要目标[3]. 海洋气溶胶的研究涉及到很多海域、物理环境以及影响这些海域大气的各种源地. 在中国海域,Lin 等[26]曾基于船测气溶胶数据,利用对数正态分布拟合得到中国邻近海域气溶胶粒径谱的典型特征并分析了气团来源的影响以及超细粒子暴发过程,但对于海洋、气象条件对各粒径段数浓度的影响描述的并不多. 目前,关于南海海域气溶胶粒径谱特征的描述和分析仍很少见,尤其是对气候影响很大的 0.1 ~ 1 μm 气溶胶粒子的研究很缺乏,本研究的目的是基于在南海航船观测的 0.05 ~ 6 μm 粒径段的海洋气溶胶数浓度,分析各粒径段,尤其是次微米气溶胶的成分来源、粒径谱分布特征,以及海洋、气象条件和大气过程对其数浓度的影响.

1 材料与方法

1.1 观测资料简介

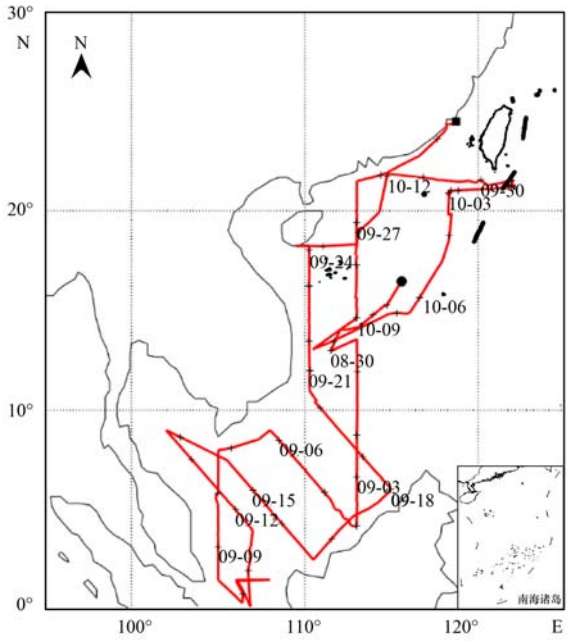
气溶胶资料来源于 2012 年 8 月 28 日至 10 月 13 日在南海的走航观测. 走航路线和时间见图 1. 观测仪器为美国 DMT (Droplet Measurement Technologies company)公司研发生产的地基气压空腔气溶胶谱仪(PCASP-X2, Version2). 数据采样频率为 1 Hz,采样粒径范围为 0.12 ~ 10 μm(液相尺寸),分为 40 档自动计数[27],见表 1.

在对观测数据进行质量控制时,首先将 1 Hz 的采样数据进行 1 min 平均,然后采用差值的 3 倍标

准差法对 1 min 平均的数据进行了异常值剔除，即选择每半小时的时间序列，将前后相邻气溶胶总浓度作差，形成差值序列，求差值序列的平均值（m）和标准差（σ），当某一观测值与前后观测的差值大小都在 $m \pm 3\sigma$ 范围之外时，被认为是异常值并将其剔除. 采用此方法剔除了 53 个异常值. 本研究的分析采用 0.5 h 间隔的气溶胶数浓度.

1.2　气象数据

气象资料来自船载自动气象站的观测，与气溶胶的观测同步，包括温度，相对湿度，气压，风速和风向，采样频率为 0.1 Hz. 云量的数据来自 ERA-Interim 每日 4 次的再分析实时资料，空间分辨率为 0.25° × 0.25 °，与气溶胶数浓度的观测资料进行了时空匹配，即筛选时间一致并且空间上走航观测点落在每个 0.25° × 0.25° 网格点内的云与气溶胶的数据. 后向轨迹资料来自 NOAA/ARL 研发的混合单粒子拉格朗日综合轨迹模式（HYSPLIT4）的模拟结果，用于计算轨迹的气象资料来自全球数据同化系统（GDAS）（http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php）. 后向轨迹模拟的位置为观测地点上空 500 m[25]，时间为每日的 10:00.



红线为连续观测路线

图 1　2012 年 8 月 28 日 ~ 10 月 13 日走航观测路线和日期

Fig. 1　Cruise route and date from Sep. 18 to Sep. 23, 2012

表 1　采样粒径范围

Table 1　Sampling diameter range

采样粒径/μm									
0.12	0.14	0.16	0.18	0.2	0.22	0.24	0.26	0.28	0.3
0.35	0.4	0.45	0.5	0.55	0.6	0.65	0.7	0.75	0.8
0.85	0.9	0.95	1.0	1.1	1.2	1.3	1.4	1.6	1.8
2.0	2.3	2.6	3.0	3.5	4.0	5.0	6.5	8.0	10.0

1.3　气溶胶尺寸的修正

Lewis 等[28]依据海洋气溶胶干燥粒子的质量一定的物理属性，得到了气溶胶干直径与环境相对湿度的关系：

$$D_{RH} = D_{dry}\left(\frac{4.0}{3.7}\right)\left(\frac{2.0 - RH}{1 - RH}\right)^{1/3}$$

式中，D_{dry} 为干直径，D_{RH} 为环境相对湿度下的直径，RH 为环境相对湿度. 该公式具有较高的准确性，并且也适用于高湿度条件[28,29]. 由于本实验观测到的是环境相对湿度下的液相海洋气溶胶，为了分析影响气溶胶粒子增长的因素，根据上述公式将观测的液相气溶胶直径调整到干燥气溶胶的大小，最终得到的干燥气溶胶的直径范围为 0.05 ~ 6 μm.

2　结果与分析

2.1　南海气溶胶时空分布特征

根据走航期间观测的气溶胶总数浓度的空间分布特征将南海区域分为 A、B、C、D 四类区域（图 2），图 3 为 4 个区域观测地点对应的 5 d 后向轨，A ~ D 区域分别对应大陆性气团（10 条），过渡性气团（4 条），海洋性气团（8 条）和岛屿性气团（15 条）.

A 区位于南海东北海域，是气溶胶数浓度的大值区，浓度范围为2 000 ~ 2 300 个·cm^{-3}. B 区浓度相对 A 区减小（1 200 ~ 2 000 个·cm^{-3}）. 从 5 d 后向轨迹来看，A、B 区的气团大都来自北方大陆或岛屿，不同的是 A 区域的气团直接来自大陆或者经过较短的海上输运. 而 B 区气团经过了较长时间的海上输运，因此陆地的影响减弱，气溶胶数浓度也相对减小.

D 区位于加里曼丹岛西北，一直延伸至中南半岛西南沿岸，也是气溶胶数浓度的大值区（1 200 ~ 2 200 个·cm^{-3}）. 从后向轨迹来看，这一海域的气团大多来自南部岛屿并且只经过了较短的海上输运，故该区域气溶胶总数浓度较大.

C 区位于南海中部狭长区域，即中国广东与海南以南，中南半岛东岸一直延伸至加里曼丹岛东北

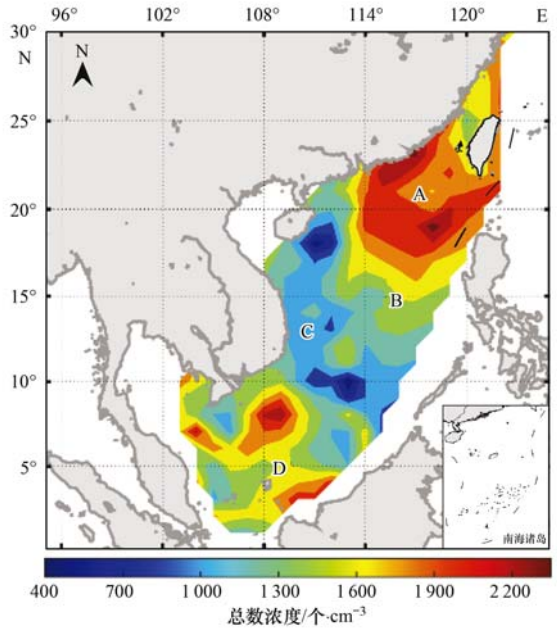


图 2 南海海平面气溶胶总数浓度分布

Fig. 2 Distribution of total number concentration of aerosol over South China Sea

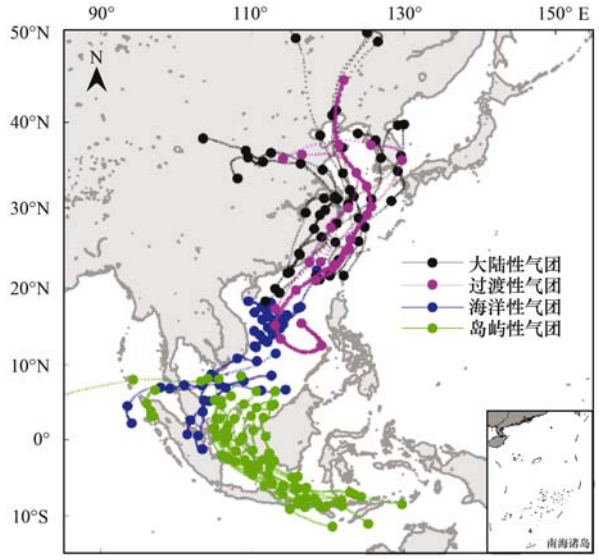


图 3 观测地点 5 d 后向轨迹

Fig. 3 Five-day back-trajectories in the observing site

岸,是气溶胶数浓度的低值区(800 ~ 1 200 个·cm^{-3}). 该海域受陆地影响较小,120 h 的后向轨迹表明气团均经过了很长的海上输运(超过 3 d),大气较为清洁,可以认为是南海洁净的海洋背景气溶胶.

总之,大陆性或岛屿性气团影响下的气溶胶数浓度较大,高达2 300 个·cm^{-3}; 而海洋性气溶胶数浓度较小,约在1 200 个·cm^{-3}以下; (大陆/海洋)过渡性气溶胶数浓度介于二者之间,约为1 500 个·cm^{-3}. 这与前人的研究结果一致[11,25,30].

2.2 南海气溶胶谱分布类型

本文得到的海洋气溶胶粒径谱分布,包含两个模态: 积聚模态(0.08 ~ 0.2 μm)与粗模态(0.5 ~ 2 μm,与许多研究得到的结果比较接近[5,10,31,32].

图 4 为船测期间出现频率最多的 3 种典型粒度谱分布类型: 陆地型(出现在 A、D 区),海洋背景型 1 和海洋背景型 2(主要出现在 C 区),B 区的谱型多为陆地型与海洋 1 型结合的过渡类型. 其中的陆地型来自 A、D 区所有谱型的平均; 海洋 1 型与海洋 2 型是根据 C 区所有谱型在 0.05 ~ 0.12 μm 的差异分两类,分别取平均而来. 3 种谱型的主要区别体现在 0.05 ~ 0.2 μm 的峰值位置和数浓度大小方面: 陆地型与海洋 2 型的谱分布形状基本一致,但次微米粒子的数浓度非常小; 海洋 1 型在 0.05 ~ 0.1 μm 粒径段数浓度 显著高于海洋 2 型,并且在大于 0.5 μm 的粗粒子段,海洋 1 型的气溶

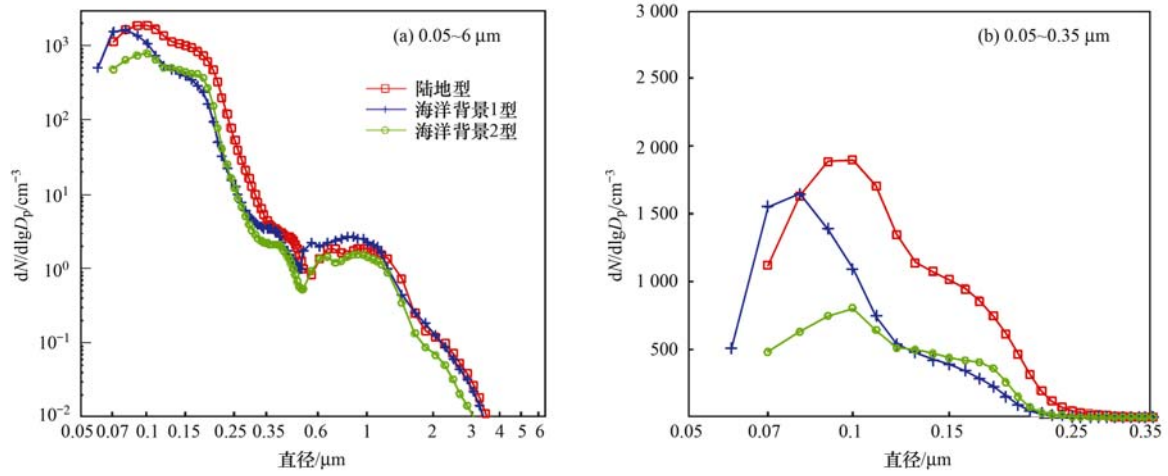


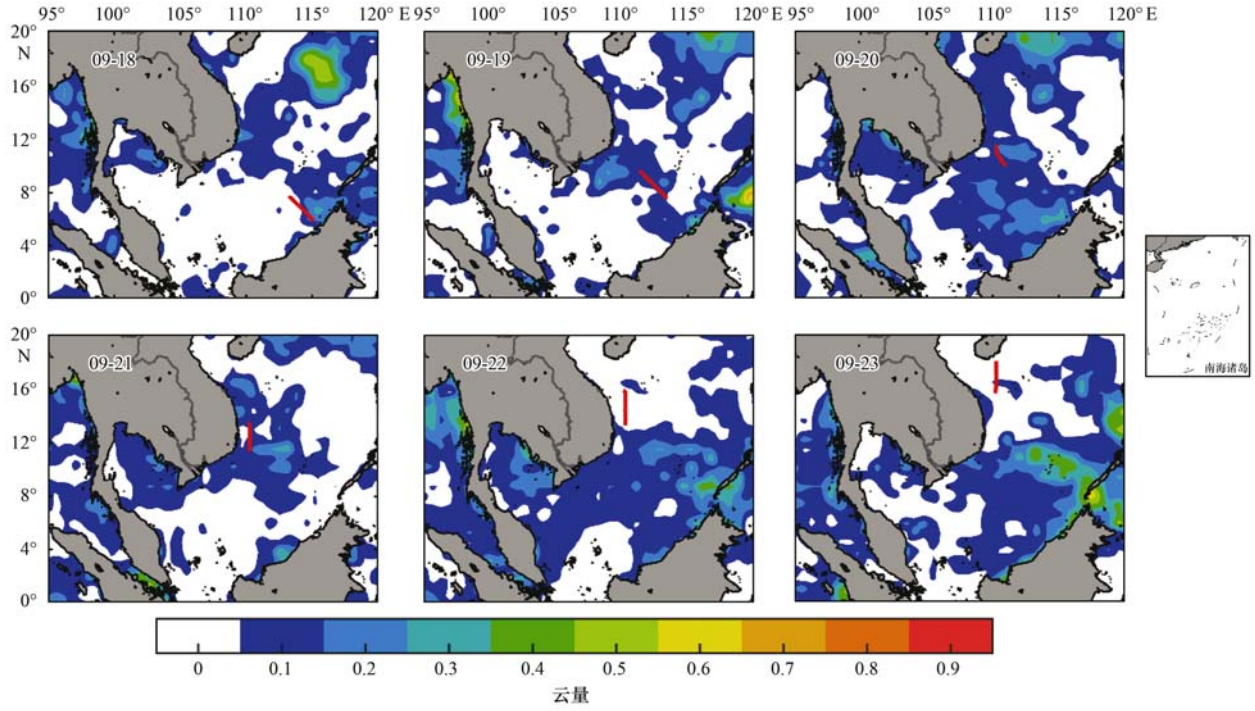
图 4 南海气溶胶 3 种典型粒径谱分布

Fig. 4 Three typical aerosol particle size distributions in South China Sea

胶数浓度超过了陆地型气溶胶数浓度，暗示了海洋源对这两个粒径段的粒子数浓度的贡献[33].

2.3　云对 0.12 ~ 0.2 μm 积聚模态气溶胶数浓度的影响

C 区域常出现海洋 1 型的谱型，即 0.08μm 附近出现较大的峰值. 据统计，C 区域 0.05 ~ 0.12 μm 粒子数浓度的大小与低云量有很好的对应关系. 9 月 18 ~ 21 日在观测区域云量相对较多（低云量约为 1 ~ 2 成，总云量为 7 成以上），海洋 1 型谱分布出现较为频繁，对应的 0.05 ~ 0.12 μm 的粒子浓度非常高. 9 月 22 ~ 23 日低云量为 0，对应的谱分布基本上都是海洋 2 型，气溶胶数浓度值很小（图 5 ~ 7）.



红线为当日船轨迹

图 5　2012 年 9 月 18 日 ~ 9 月 23 日逐日平均低云量

Fig. 5　Mean low cloud cover on Sep. 18-Sep. 23, 2012

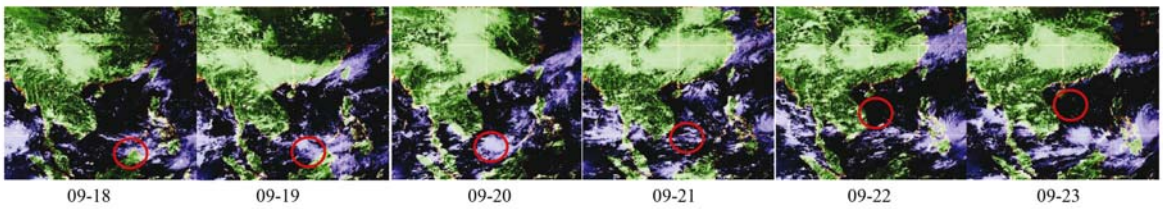


图 6　2012 年 9 月 18 日 ~ 9 月 23 日可见光卫星云图

Fig. 6　Visible satellite images on Sep. 18-Sep. 23, 2012

不仅 C 区有如此现象，统计结果显示，在 9 月 1 日 ~ 10 月 13 日整个观测期间，出现海洋 1 型的天数共有 22 d，其中 20 d 是低云的天气，仅 2 d 是没有低云的条件；未出现海洋 1 型谱型的有 21 d，其中 16 d 都是没有低云的天气. 因此，海洋 1 型气溶胶粒径谱的出现，与低云量有着一定的关联.

将 9 月 28 日 ~ 10 月 13 日观测期间 0.05 ~ 0.12 μm 粒子数浓度（去掉降水或十分靠近大陆的 9 月 17 日，9 月 26 ~ 28 日，10 月 10 ~ 13 日的数据）与来自 ERA-Interim 每日 4 次的云量资料匹配分析，发现该粒径段数浓度与低云量的相关系数为 0.253（通过了 0.01 的置信度检验），如图 8 所示. 类似地，将中云与高云量与该粒径段数浓度做对比，却没有发现任何显著的相关. 这表明 0.05 ~ 0.12 μm 粒子数浓度与低云量有着较好的一致性. 已有研究指出[7,17]，来自海洋生物源的硫酸盐气溶胶是积聚模态海洋气溶胶的重要组成成分，多云的条件有利于气态前体 DMS 在云内异相氧化. 氧化过程中，云滴

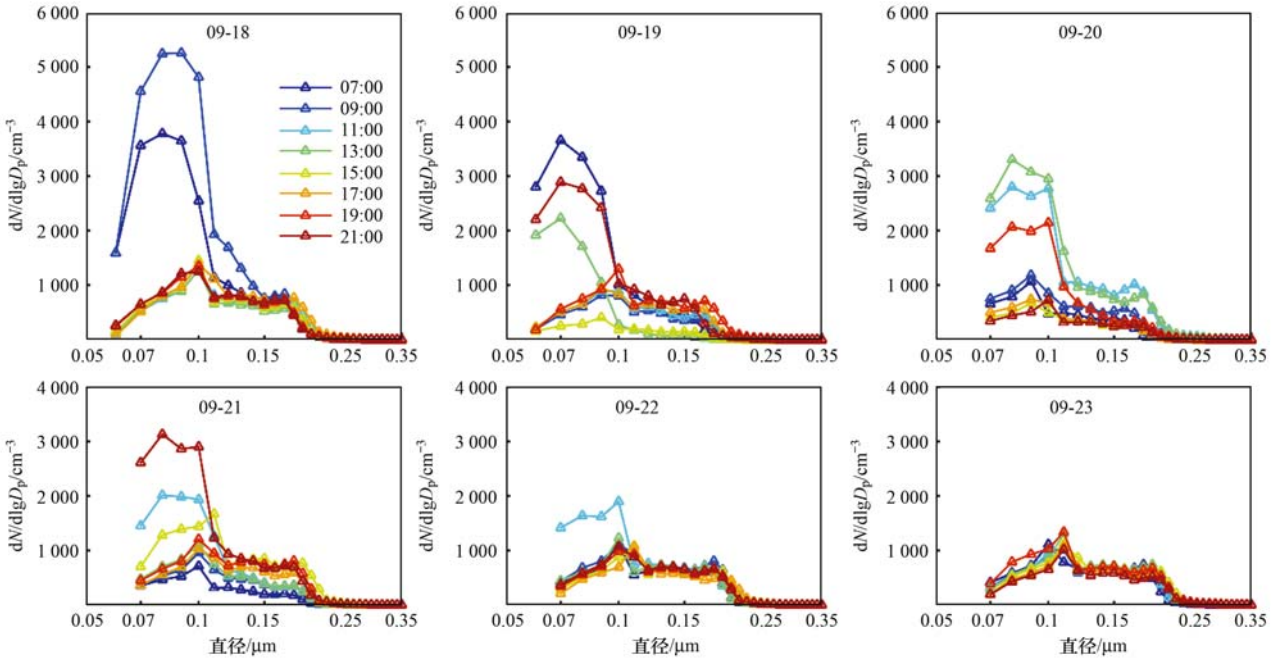


图 7 9 月 18 日 ~ 9 月 23 日的气溶胶粒径分布谱型

Fig. 7 Aerosol particle size distributions on Sep. 18-Sep. 23, 2012

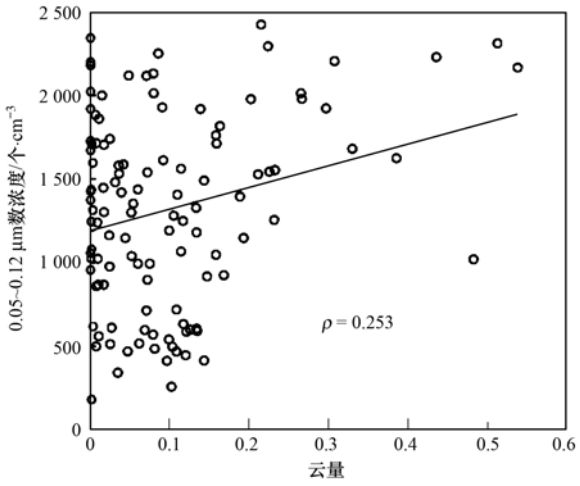


图 8 0.05 ~ 0.12 μm 粒子数浓度与低云量的散点图

Fig. 8 Scatter plot of particulate number concentrations and low cloud cover

内溶质的浓度会大幅减小,pH 增大,因此增长速率更快,研究表明,粒子通过云内异相氧化途径由 0.063 μm 增长至 0.1 μm 的时间尺度为 10 ~ 30 min. 即云是细粒子增长为积聚模态尺寸的重要媒介,因此多云天气下,积聚模态浓度明显增大. Hoppel 等[18]通过探空和海表温度进行边界层模拟得出,空气从海表向上进入云层可以在 2 h 内完成,在整个边界层内充分混合大概需要 6 h.

2.4 海面气象要素对南海气溶胶粒径谱的影响

2.4.1 气温对南海气溶胶数浓度的影响

在 A、B、D 区域,气团来自于陆地,人为源向海洋输送的粒子大多为次微米颗粒,因此 A、B 区域在 0.05 ~ 0.12μm 粒径段浓度较大并且波动较小. 而在 C 区域的该粒径段粒子浓度波动较大,在较低的背景浓度的基础上频繁地出现粒子浓度的大幅增加现象(图 9).

观测期间,C 区的气团来自海洋,海洋初级生产力影响当地的气溶胶的数浓度. 对比 4 个区域的海表面气温,C 区的温度总体上相对其他 3 个区域的温度要高(图 9). 由于气温受下垫面的加热作用,因此对应的海表面水温也应该较大. 较高的温度有助于该区域的浮游植物迅速生长,从而释放更多的 DMS[7, 21, 22, 34]. 而 DMS 释放到大气中进行氧化增长,可导致积聚模态粒子的数浓度增加. 当地大气过程和气象因子的扰动(如风、云过程)可促进 DMS 释放到大气中或者促进 DMS 氧化增长,导致在较低的背景浓度下,频繁出现 0.05 ~ 0.12 μm 粒子浓度大幅度增长的现象,即出现海洋 1 型谱分布.

2.4.2 风速对南海气溶胶粒径谱的影响

无论是海盐气溶胶还是海气交换产生的硫酸盐气溶胶,都与风浪破碎有重要关联. 当风速超过一定极限后,风浪破碎,白冠出现,海表面出现了由于海气湍混合作用而产生的气泡,气泡的产生加强了海洋与大气之间的气体交换过程[35]. 因此,风引起的风浪破碎有利于增加海洋大气边界层内的海盐气

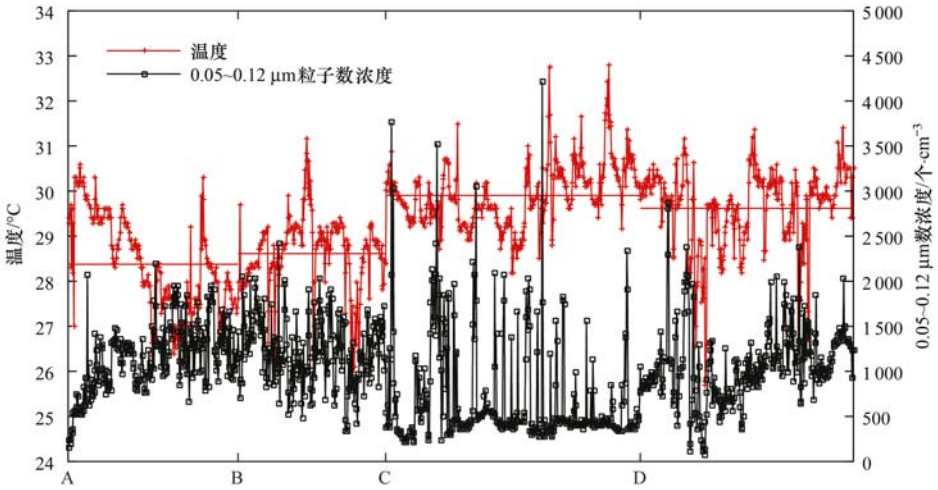


图 9　A ~ D 区域 0.05 ~ 0.12 μm 粒子数浓度和温度时间序列

Fig. 9　The 0.05-0.12 μm aerosol number concentrations and air temperature in A-D areas

溶胶和非海盐的硫酸盐气溶胶,从而改变海洋气溶胶的粒径谱分布.

对于受陆地影响较小的 C 区域来说,气溶胶的主要源是海洋,因此在 C 区域,海洋气溶胶对风速的依赖性较强,尤其是对以海盐粒子为主的粗粒子而言. 这种相关性可以体现在粒子浓度与风速的指数关系上,通常以对数拟合 $\lg N = a \cdot U_{10} + b$ 的形式表示(式中,N 为粒子数浓度,U_{10}为 10 m 风速,a、b 为跟粒子尺度有关的常数)[36,37]. 在南海海洋背景环境下(即 C 区,样本数为 436 个),0.5 ~ 6 μm 气溶胶与风速具有显著的相关,相关系数达 0.62 和 0.73(图 10),暗示着该区域 0.5 ~ 6 μm 气溶胶的主要成分是直接由风浪破碎而进入大气的海盐颗粒. 0.05 ~ 0.12 μm 粒径段的粒子浓度与风速显示出比较弱的正相关,原因是该粒径段海盐颗粒成分非常少,主要成分是海洋生物源排放的有机硫气体进入大气后经过一系列化学和物理作用产生的非海盐硫酸盐,高风速可以增大海气交换速率,所以该粒径段粒子浓度与风速是有一定的正相关性的,但是相关性并不明显. 0.12 ~ 0.5 μm 数浓度与风速的相关性为负值,可能是风速增大对该粒径粒子起到了稀释作用.

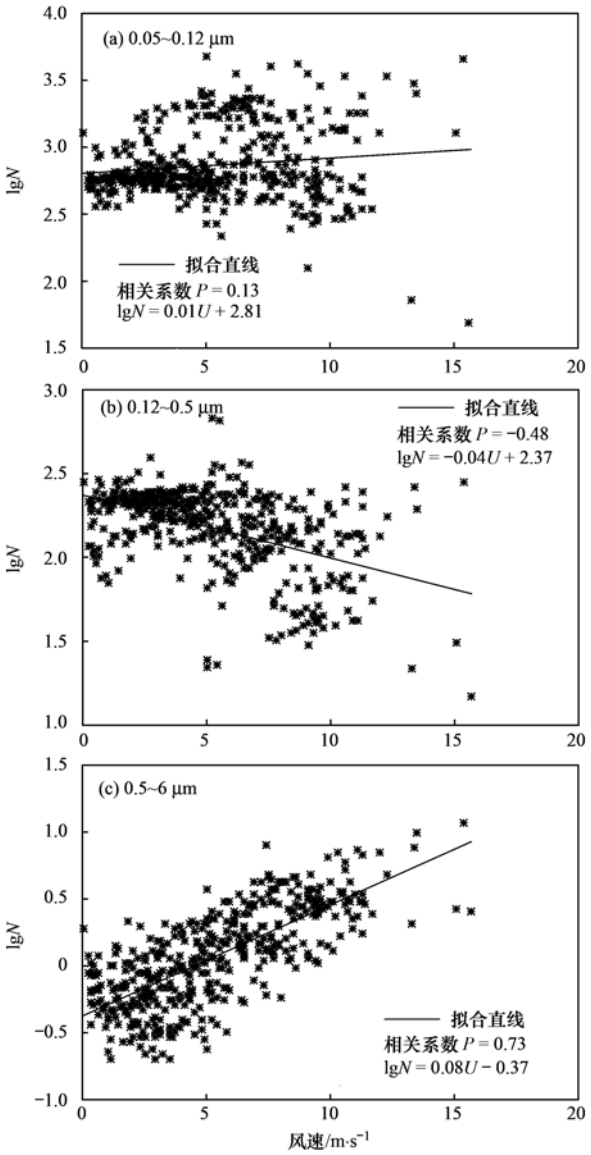
但是,由于来自于人为源气溶胶的加入,整个船测期间的气溶胶数浓度与风速的相关性明显弱于在受陆地影响相对较小的 C 区,整个观测期间的粗粒子与风速的相关系数仅为 0.23.

2.4.3　相对湿度对南海气溶胶粒径谱的影响

将观测期间的相对湿度分为 5 个区间(图 11),对各湿度区间内气溶胶平均数浓度谱进行比较,发现以 0.08 μm 和 0.5 μm 为界,各粒径段粒子对相对湿度的响应不同: 对于 0.5 ~ 6 μm 粒径段的气溶胶颗粒而言,粒子数浓度随着相对湿度的增大而有所增加; 008 ~ 0.12 μm 粒径段,粒子数浓度随着相对湿度的增大而明显下降,这与尚倩等[38]的研究结果类似; 小于 0.08 μm 时,粒子数浓度随着相对湿度的增大而明显增加,尤其是相对湿度达 90% ~ 95% 区间时,粒子数浓度的增幅十分明显. 研究表明,液滴内的异相氧化可以加快小粒子或者气态前体的增长速率[12],最终导致积聚模态粒子数浓度的大幅度增加. 这可能与 2.3 节中提到的云滴对细粒子增长为积聚模态的加速作用类似. 孙贞等[20]的研究也指出,超细粒子进入水汽饱和状态的空气中,吸附凝结了大量的水汽,使粒子活性增强而快速发生非均相化学反应,使得次微米粒子数量“暴增”.

2.5　降雨对南海气溶胶粒径谱的影响

9 月 17 日 01:30 开始降水,至中午 12:00 天气转晴. 在降水初期(湿沉降对粒子浓度的影响还比较小),水汽较为充分,相对湿度在 90% ~ 95% 之间,细粒子的尺寸增长导致 0.05 ~ 0.12 μm 与 0.5 ~ 2 μm 的粒子浓度明显增加(图 12),尤其是 0.05 ~ 0.12 μm 粒径段粒子数浓度的增长程度很大,与 2.3 节中提到的多云情况下的激增,以及 2.4.3 节中相对湿度的条件类似,这表明空气中的水滴对细粒子的增长的作用与云滴对细粒子增长至积聚模态尺寸的作用类似. 而 0.5 ~ 6 μm 的粗粒子数浓度的增加也与 2.4.3 中相对湿度作用下的现象相似. 降水后,各粒径段粒子浓度降到最小,这是降水引起 0.05 ~ 6 μm 粒径的气溶胶粒子湿沉降的结果.



相关性均通过了 0.01 的置信度检验

图 10 各粒径段的海洋气溶胶数浓度与风速的对数拟合

Fig. 10 Logarithm Fit of marine aerosol number concentration in different particle size ranges and wind speed

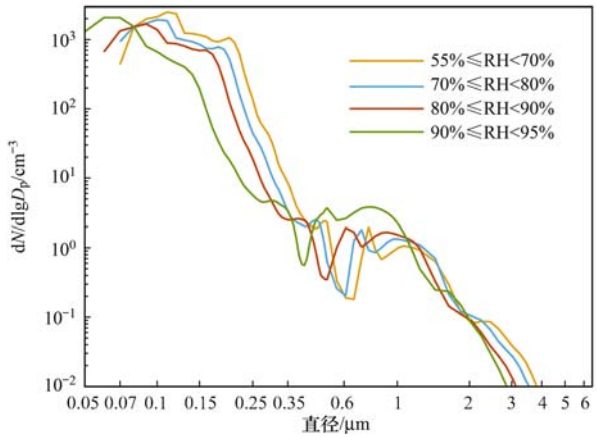
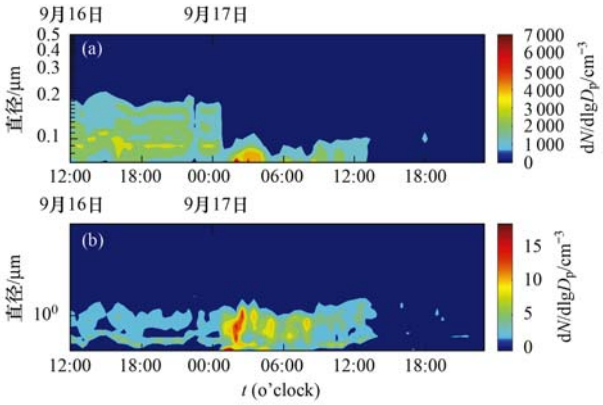


图 11 不同相对湿度区间下气溶胶粒径谱分布

Fig. 11 Aerosol particle size distributions under different relative humidity



(a)0.05~0.5 μm, (b)0.5~6 μm

图 12 降雨过程中粒子数浓度变化

Fig. 12 Temporal variation of aerosol number concentration during the precipitation process

3 结论

(1)陆地气团影响下的 0.05~6 μm 气溶胶总数浓度高达 2300 个·cm^{-3},受陆地影响较小的海洋性气溶胶数浓度较低,约在 1200 个·cm^{-3}以下,代表南海洁净的海洋背景气溶胶.

(2)船测期间的南海气溶胶的粒度谱分布表现为在 0.05~0.2 μm 和 0.5~2 μm 处有明显的峰,根据峰的位置以及各粒径数浓度大小将谱型分为三类:陆地型,海洋背景 1 型和海洋背景 2 型. 其中陆地型主要出现在受陆地气团影响的环境下,海洋 1 型和海洋 2 型多出现在受陆地影响较小的海洋背景条件下,尤其是各粒径粒子浓度都很小的海洋 2 型是海洋背景条件下最常见的类型. 在小于 0.1 μm 的次微米粒径段和大于 0.5 μm 的粗粒子段,海洋 1 型的气溶胶数浓度较大,甚至超过陆地型气溶胶数浓度.

(3)低云量与 0.05~0.12 μm 的海洋气溶胶数浓度具有明显的正相关性,相关系数约为 0.25,多云天气下,0.05~0.12 μm 的浓度明显增高. 这说明云滴可以大大增加超细粒子氧化增长为积聚模态粒子的速率.

(4)相对湿度达 90%~95% 的条件下,0.08 μm 附近的粒子浓度显著增大. 这表明在不足以沉降的前提下,空气中的水滴对细粒子的增长的作用与云滴对细粒子增长至积聚模态尺寸的作用类似.

(5)海洋气溶胶数浓度对风速的敏感性较强,粗粒子表现的尤其明显. 在受陆地影响相对较小的环境下,0.5~6 μm 气溶胶与风速具有显著的相关,

相关性达 0.7；0.05 ~ 0.12 μm 粒径段的粒子浓度与风速显示出比较弱的正相关；0.12 ~ 0.5 μm 粒子浓度与风速呈负相关性.

参考文献：

[1] Langmann B, Scannell C, O'Dowd C. New Directions: organic matter contribution to marine aerosols and cloud condensation nuclei[J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(33): 7821-7822.

[2] Andreae M O, Rosenfeld D. Aerosol-cloud-precipitation interactions. Part 1. The nature and sources of cloud-active aerosols[J]. Earth-Science Reviews, 2008, **89**(1-2): 13-41.

[3] Prospero J M. The chemical and physical properties of marine aerosols: an introduction[A]. In: Gianguzza A, Pelizzetti E, Sammartano S (Eds.). Chemistry of Marine Water and Sediments[M]. Berlin Heidelberg: Springer, 2002. 35-82.

[4] O'Dowd C D, Smith M H, Consterdine I E, *et al.* Marine aerosol, sea-salt, and the marine sulphur cycle: a short review [J]. Atmospheric Environment, 1997, **31**(1): 73-80.

[5] Bates T S, Kapustin V N, Quinn P K, *et al.* Processes controlling the distribution of aerosol particles in the lower marine boundary layer during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE 1)[J]. Journal of Geophysical Research, 1998, **103**(D13): 16369-16383.

[6] Fitzgerald J W. Marine aerosols: a review[J]. Atmospheric Environment. Part A. General Topics, 1991, **25**(3-4): 533-545.

[7] 乔利平. DMS 光降解过程中二次污染的形成及大气中 MSA 的现场观测研究[D]. 上海：复旦大学, 2011.

[8] Andreae M O, Berresheim H, Andreae T W, *et al.* Vertical distribution of dimethylsulfide, sulfur dioxide, aerosol ions, and radon over the Northeast Pacific Ocean [J]. Journal of Atmospheric Chemistry, 1988, **6**(1-2): 149-173.

[9] Heintzenberg J, Birmili W, Wiedensohler A, *et al.* Structure, variability and persistence of the submicrometre marine aerosol [J]. Tellus B, 2004, **56**(4): 357-367.

[10] Met Office. Atmospheric processes and parameterizations-ACE-2 [EB/OL]. http://research.metoffice.gov.uk/research/apr/ace-2.html. 2015-10-10.

[11] Tunved P, Ström J, Hansson H C. An investigation of processes controlling the evolution of the boundary layer aerosol size distribution properties at the Swedish background station Aspvreten[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2004, **4**(11-12): 2581-2592.

[12] 高健. 大气颗粒物个数浓度、粒径分布及颗粒物生成-成长过程研究[D]. 济南：山东大学, 2008.

[13] 柯馨姝, 盛立芳, 孔君, 等. 青岛大气颗粒物数浓度变化及对能见度的影响[J]. 环境科学, 2014, **35**(1): 15-21.

[14] Monahan E C, Fairall C W, Davidson K L, *et al.* Observed inter-relations between 10m winds, ocean whitecaps and marine aerosols [J]. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 1983, **109**(460): 379-392.

[15] Leaitch W R. Observations pertaining to the effect of chemical transformation in cloud on the anthropogenic aerosol size distribution[J]. Aerosol Science and Technology, 1996, **25**(2): 157-173.

[16] Gong W M, Dastoor A P, Bouchet V S, *et al.* Cloud processing of gases and aerosols in a regional air quality model (AURAMS) [J]. Atmospheric Research, 2006, **82**(1-2): 248-275.

[17] O'Dowd C D, Lowe J A, Smith M H. The effect of clouds on aerosol growth in the rural atmosphere [J]. Atmospheric Research, 2000, **54**(4): 201-221.

[18] Hoppel W A, Frick G M, Larson R E. Effect of nonprecipitating clouds on the aerosol size distribution in the marine boundary layer[J]. Geophysical Research Letters, 1986, **13**(2): 125-128.

[19] 时宗波, 贺克斌, 陈雁菊, 等. 雾过程对北京市大气颗粒物理化特征的影响[J]. 环境科学, 2008, **29**(3): 551-556.

[20] 孙贞, 杨育强, 徐晓亮, 等. 青岛市连续天气过程中不同气溶胶浓度特征对比分析[J]. 环境科学, 2010, **31**(4): 871-876.

[21] Criscitiello A S, Das S B, Karnauskas K B, *et al.* Tropical Pacific influence on the source and transport of marine aerosols to West Antarctica[J]. Journal of Climate, 2014, **27**(3): 1343-1363.

[22] Kouvarakis G, Mihalopoulos N. Seasonal variation of dimethylsulfide in the gas phase and of methanesulfonate and non-sea-salt sulfate in the aerosols phase in the Eastern Mediterranean atmosphere[J]. Atmospheric Environment, 2002, **36**(6): 929-938.

[23] Kleinman L I, Springston S R, Wang J, *et al.* The time evolution of aerosol size distribution over the Mexico City plateau [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2009, **9**(13): 4261-4278.

[24] Dusek U, Frank G P, Hildebrandt L, *et al.* Size matters more than chemistry for cloud-nucleating ability of aerosol particles [J]. Science, 2006, **312**(5778): 1375-1378.

[25] Wang Z B, Hu M, Zeng L W, *et al.* Measurements of particle number size distributions and optical properties in urban Shanghai during 2010 World Expo: relation to air mass history[J]. Tellus B, 2014, **66**: 22319.

[26] Lin P, Hu M, Wu Z J, *et al.* Marine aerosol size distributions in the springtime over China adjacent seas [J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(32): 6784-6796.

[27] 王静, 牛生杰, 宋刘明, 等. 南京郊区 $PM_{2.5}$ 粒度谱及浓度的观测研究[A]. 见：中国环境科学学会2013 年学术年会论文集[C]. 昆明：中国环境科学学会, 2013. 181-187.

[28] Lewis E R, Schwartz S E. Comment on "size distribution of sea-salt emissions as a function of relative humidity" [J]. Atmospheric Environment, 2006, **40**(3): 588-590.

[29] Zhang K M, Knipping E M, Wexler A S, *et al.* Reply to comment on "Size distribution of sea-salt emissions as a function of relative humidity"[J]. Atmospheric Environment, 2006, **40**(3): 591-592.

[30] Zhang X Y, Zhuang G S, Guo J H, *et al.* Characterization of

aerosol over the Northern South China Sea during two cruises in 2003[J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(36): 7821-7836.

[31] Bates T S, Quinn P K, Covert D S, *et al*. Aerosol physical properties and processes in the lower marine boundary layer: a comparison of shipboard sub-micron data from ACE-1 and ACE-2 [J]. Tellus B, 2000, **52**(2): 258-272.

[32] Iorga G, Stefan S. Sensitivity of cloud albedo to aerosol concentration and spectral dispersion of cloud droplet size distribution[J]. Atmósfera, 2007, **20**(3): 247-269.

[33] 李瑞芃, 石金辉, 张代洲. 天气条件及气团来源对青岛春季大气颗粒物数浓度谱分布的影响[J]. 中国环境科学, 2012, **32**(8): 1392-1399.

[34] 杨剑. 中国东部陆架海生源硫的分布、通量及其对气溶胶中非海盐硫酸盐的贡献[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2014.

[35] 王洲, 陈俊昌. 海洋白冠的研究进展[J]. 地球科学进展, 1993, **8**(3): 37-44.

[36] Gras J L, Ayers G P. Marine aerosol at southern mid-latitudes [J]. Journal of Geophysical Research: Oceans (1978-2012), 1983, **88**(C15): 10661-10666.

[37] O'Dowd C D, Smith M H. Physicochemical properties of aerosols over the northeast Atlantic: evidence for wind-speed-related submicron sea-salt aerosol production[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984-2012), 1993, **98**(D1): 1137-1149.

[38] 尚倩, 李子华, 杨军, 等. 南京冬季大气气溶胶粒子谱分布及其对能见度的影响[J]. 环境科学, 2011, **32**(9): 2750-2760.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 37 No. 7

Jul. 15, 2016

CONTENTS

Concentration Characteristics of $PM_{2.5}$ in Beijing During Two Red Alert Periods ····· CHENG Nian-liang, ZHANG Da-wei, CHEN Tian, *et al.* (2409)

Response of Human Respiratory Height $PM_{2.5}$ Variation Characteristics to Meteorological Factors During Winter Haze Days in Beijing ····· ZHANG Nan, XIONG Hei-gang, GE Xiu-xiu, *et al.* (2419)

Pollutional Characteristics and Sources Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmospheric Fine Particulate Matter in Lanzhou City ····· LI Ying-hong, RAO Zhi-guo, TAN Ji-hua, *et al.* (2428)

Determination and Source Apportionment of Aromatic Acids in $PM_{2.5}$ from the Northern Suburb of Nanjing in Winter ····· ZHANG Ya-fei, MA Yan, QI Lu, *et al.* (2436)

Impact of Marine-atmospheric Process on Aerosol Number Size Distribution in the South China Sea ····· KONG Ya-wen, SHENG Li-fang, LIU Qian, *et al.* (2443)

Assessment of Heavy Metals Pollution and Its Health Risk of Atmospheric Dust Fall from East Part of Junggar Basin in Xinjiang ····· YANG Chun, Tashpolat Tiyip, HOU Yan-jun, *et al.* (2453)

Variations of Stable Isotope in Precipitation and Its Atmospheric Circulation Effect in Chongqing ····· WEN Yan-ru, WANG Jian-li (2462)

Temporal Dynamics of Stable Isotopic Composition in Lake Taihu and Controlling Factors ····· XU Jing-zheng, XIAO Wei, XIAO Qi-tao, *et al.* (2470)

Geochemical Characteristics of Lateral Hyporheic Zone Between the River Water and Groundwater, a Case Study of Maanxi in Chongqing ····· ZHANG Yu, YANG Ping-heng, WANG Jian-li, *et al.* (2478)

Variations of CO_2 Exchange Fluxes Across Water-air Interface and Environmental Meaning in a Surface Stream in Subtropical Karst Area, SW China ····· LI Li, PU Jun-bing, LI Jian-hong, *et al.* (2487)

Spectral Characteristics of Dissolved Organic Matter (DOM) Releases from Soils of Typical Water-Level Fluctuation Zones of Three Gorges Reservoir Areas: UV-Vis Spectrum ····· LIANG Jian, JIANG Tao, LU Song, *et al.* (2496)

Spectral Characteristics of Dissolved Organic Matter (DOM) Releases from Soils of Typical Water-Level Fluctuation Zones of Three Gorges Reservoir Areas: Fluorescence Spectra ····· LIANG Jian, JIANG Tao, LU Song, *et al.* (2506)

Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Thirteen Sulfonamides Antibiotics in a Drinking Water Source in East China ····· JIN Lei, JIANG Lei, HAN Qi, *et al.* (2515)

Concentrations of Ketamine and Norketamine in the Water Environment in Beijing ····· ZHANG Hua-fang, YANG Jun, DU Peng, *et al.* (2522)

Distribution Characteristics and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Water of Yuqiao Reservoir Watershed During the Water Delivery Period ····· CHANG Sheng, ZHAO Xing-ru, FU Qing, *et al.* (2530)

Concentrations and Partitioning of Halogenated Flame Retardants in Industrial Water of Dongjiang River ····· HE Ming-jing, LI Qi, ZHAO Jia-yuan, *et al.* (2539)

Distribution Characteristics and Source Identification of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, Fatty Acids in Water of Karst Underground River ····· XIE Zheng-lan, SUN Yu-chuan, ZHANG Mei, *et al.* (2547)

Pollution Characteristics of Snowmelt Runoff on Different Underlying Surface in Main Urban Area of Harbin ····· SUN Xi-han, LIU Shuo, WAN Lu-he, *et al.* (2556)

Impact of Precipitation on Fenghe River Water and Aquatic Microorganisms ····· LU Si-dan, SUN Yu-jiao, ZHAO Xuan, *et al.* (2563)

Response of *Microcystis aeruginosa* Growth to Arsenate Under Different Phosphorus Regimes ····· WANG Zhen-hong, ZHANG Han-peng, LUO Zhuan-xi (2570)

Removal Behavior of Ibuprofen and Diclofenac in Different Constructed Wetlands ····· JING Rui-ying, YANG Yang, DAI Yu-nü, *et al.* (2577)

Influence of Chemical Pre-oxidation on Chloral Hydrate Formation of Threonine ····· CAI Guang-qiang, FU Xue-min, LIU Li-jun, *et al.* (2586)

Activated Carbon Supported Co_3O_4 Catalysts to Activate Peroxymonosulfate for Orange G Degradation ····· WANG Zhong-ming, CHEN Jia-bin, ZHANG Li-ming, *et al.* (2591)

Kinetics for Degradation of Orange G with Peroxymonosulfate Activated by Carbon Nanotubes ····· ZHANG Li-ming, CHEN Jia-bin, LI Wen-wei, *et al.* (2601)

Removal of Chloramphenicol in Wastewater by Electrocatalytic Reduction with Carbon Nanotubes-Modified Electrode ····· DENG Fei, TANG Bo-bin, ZHANG Jin-zhong, *et al.* (2610)

Removal of AOX, Chroma and TOC in Chemical Dyestuff Wastewater with Iron Scraps-Fenton-Coagulation Combined Process ····· SHU Xiao-ming, XU Can-can, WEN Xiao-gang, *et al.* (2618)

Removal of AOX in Activated Sludge of a Chemical Pharmaceutical Industry with Fenton Oxidation ····· CHEN Si, XU Can-can, LIU Rui, *et al.* (2625)

Performance Evaluation of a Pilot-scale Microbubble-aerated Biofilm Reactor ····· LIU Chun, ZHANG Jing, ZHANG Jing, *et al.* (2632)

Nitrogen Removal Performance of Novel HABR Reactor over CANON Process ····· BAO Lin-lin, CHEN Wan-qiu (2639)

Characteristics of a Combined Heterotrophic and Sulfur Autotrophic Denitrification Technology for Removal of High Nitrate in Water ····· LI Xiang, MA Hang, HUANG Yong, *et al.* (2646)

Characteristics of Microbial Community in Each Compartment of ABR ANAMMOX Reactor Based on High-throughput Sequencing ····· CHEN Chong-jun, ZHANG Hai-qin, WANG Yao-qi, *et al.* (2652)

Nitrogen Removal and the Characteristics of Denitrification Bacteria Using NUA-DAS Ecofilter ····· WANG Long-mian, QIU Hao-yu, CHE Yu-xiao, *et al.* (2659)

Coupling of Hydrocarbon Accumulation and Cobalt Removal During Treatment of Cobalt Enriched Industrial Wastewater with *Botryococcus braunii* Biofilm Attached Cultivation ····· CHENG Peng-fei, WANG Yan, YANG Qi-yong, *et al.* (2666)

Isolation of *Raoultella* sp. sari01 and Its Heterotrophic Nitrification-Aerobic Denitrification Characteristics ····· YAN Wei-zhi, HAO Jian, SUN Jun-song, *et al.* (2673)

Screening and Nitrogen Removing Characteristics of Heterotrophic Nitrification-Aerobic Denitrification Bacteria $SLWX_2$ from Sea Water ····· CHENG Yu, LI Qiu-fen, FEI Yu-tao, *et al.* (2681)

Biodiversity of Thiocyanate-degrading Bacteria in Activated Sludge from Coking Wastewater ····· XU Wei-chao, MENG Xiao-jun, YIN Li, *et al.* (2689)

Responses of Plankton Microeukaryotic Community to Increasing Temperatures Created by Power Plant Thermal Discharges ····· DAI Wen-fang, YANG Shi-ye, QUE Zhi-jia, *et al.* (2696)

Characteristics of Soil Microbial Community Structure in the Rhizospheric Soil of *Ammopiptanthus mongolicus* by Phospholipid Fatty Acid (PLFA) ····· ZUO Yi-ling, HE Xue-li, WANG Shao-jie, *et al.* (2705)

Response of Soil Respiration to Extreme Precipitation in Semi-arid Regions ····· ZHAO Man, WANG Rui, LI Ru-jian, *et al.* (2714)

Features and Influencing Factors of N_2O Emissions from Drawdown Area in the Three Gorges Reservoir ····· LI Rui, LEI Li-guo, JIANG Chang-sheng, *et al.* (2721)

Denitrification Loss and N_2O Emission from Different Carbon Inputs in Orchard Drains Sediments ····· GAO Xue-mei, SHE Dong-li, YAN Xiao-yuan, *et al.* (2731)

Emissions Characteristics of Greenhouse Gas from Sewage Sludge Composting Process in Winter ····· YI Jian-ting, YANG Yu-han, ZHANG Cheng, *et al.* (2738)

Distribution and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) and Organochlorine Pesticides (OCPs) in Soils from Shergyla Mountain, Southeast Tibetan Plateau ····· LUO Dong-xia, ZHANG Shu-juan, YANG Rui-qiang (2745)

Applications of Geostatistical Analyses and Stochastic Models to Identify Sources of Soil Heavy Metals in Wuqing District, Tianjin, China ····· SONG Zhi-ting, ZHAO Yu-jie, ZHOU Qi-wen, *et al.* (2756)

Effects of Soil Moisture and Temperature Variations on Organic Carbon Mineralization of Purple Soil in the Hydro-fluctuation Belt of the Three Gorges Reservoir ····· DING Chang-huan, WANG Lian-ge, TANG Jiang, *et al.* (2763)

Reduction Effect of Reduced Phosphorus Fertilizer and Combining Organic Fertilizers on Phosphorus Loss of Purple Soil Sloping Field ····· HAN Xiao-fei, GAO Ming, XIE De-ti, *et al.* (2770)

Transformation and Migration of Sulfur Speciation in the Rhizosphere and Bulk Soil of Paddy Soil ····· DU Guang-hui, RAO Wei, LI Xin, *et al.* (2779)

Comparison of the Persistence of a Combined Amendment Stabilizing Pb, Cd, Cu and Zn in Polluted Paddy Soil ····· WU Yu-jun, ZHOU Hang, YANG Wen-tao, *et al.* (2791)

Bio-inspired Recovery of Platinum Nanoparticle and Its Mechanism ····· SHANG Ru, ZHU Neng-wu, KANG Nai-xin, *et al.* (2799)

Preparation of γ-Fe_2O_3 Catalyst by Heat Treatment of Natural Limonite for Selective Catalytic Reduction of NO by NH_3 ····· XU Bin, CHEN Tian-hu, LIU Hai-bo, *et al.* (2807)

《环境科学》第 6 届编辑委员会

主　编：赵进才

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　刘　毅　汤鸿霄　孟　伟　周宗灿　林金明

赵进才　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）

2016 年 7 月 15 日　第 37 卷　第 7 期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

（Monthly　Started in 1976）

Vol. 37　No. 7　Jul. 15, 2016

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	赵进才	**Editor-in -Chief**	ZHAO Jin-cai
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	中国国际图书贸易集团有限公司 （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：120.00 元　　国外发行代号：M 205

国 内 外 公 开 发 行