

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第9期

Vol.38 No.9

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

中国国道和省道机动车尾气排放特征 王人洁,王堃,张帆,高佳佳,李悦,岳涛(3553)

北偏西大风对北京冬季生物气溶胶的影响 闫威卓,王步英,Oscar Fajardo Montana,蒋靖坤,郝吉明(3561)

不同空气质量等级下环境空气颗粒物及其碳组分变化特征 方小珍,吴琳,张静,李怀瑞,毛洪钧,宋从波(3569)

大气颗粒物及降尘中重金属的分布特征与人体健康风险评价 王永晓,曹红英,邓雅佳,张倩(3575)

2014年6月南京大气复合污染观测 郝建奇,葛宝珠,王自发,张祥志,汤莉莉,徐丹卉(3585)

嘉兴市不同天气条件下大气污染物和气溶胶化学组分的分布特征 王红磊,沈利娟,唐倩,吕升,田旭东,李莉,张孝寒(3594)

应用扩散管测量霾污染期间大气氮硫化合物浓度的方法 田世丽,刘学军,潘月鹏,周焱博,许稳,王跃思(3605)

福建省地级市人为源活性氮排放及其特征分析 张千湖,高兵,黄蕙,颜晓妹,崔胜辉(3610)

珠三角某高校室内灰尘重金属含量水平、来源及其健康风险评价 蔡云梅,黄涵书,任露陆,张艳林(3620)

贵金属和助剂负载量对柴油公交车 CDPF 颗粒净化性能的影响 谭丕强,仲益梅,郑源飞,楼狄明,胡志远(3628)

东营市北部海域沉积物中重金属的分布、来源及生态风险评价 刘群群,孟范平,王菲菲,崔鸿武,王曰杰(3635)

基于 MERIS 影像的洪泽湖叶绿素 a 浓度时空变化规律分析 刘阁,李云梅,吕恒,牟蒙,雷少华,温爽,毕顺,丁潇蕾(3645)

太湖蠡河小流域水质的空间变化特征及污染源解析 连慧姝,刘宏斌,李旭东,宋挺,雷秋良,任天志,武淑霞,李影(3657)

黄河高村至利津河段水体和沉积物中不同形态磷的分布特征 赵瞰,贾雁翔,姜兵琦,梅翔宇,李敏(3666)

三峡澎溪河流域消落区与岸边土壤磷形态特征 黄俊杰,王超,方博,冯磊,方芳,李哲,郭劲松(3673)

网湖沉积物正构烷烃分布特征及其记录的环境变化 沈贝贝,吴敬禄,曾海鳌,张永东,金苗(3682)

高地下水位地区透水停车场的水文控制效果 金建荣,李田,王圣思,陈子隼,周佳雯(3689)

北方典型设施蔬菜种植区地下水水质特征 于静,虞敏达,蓝艳,何小松,李敏(3696)

垃圾填埋水溶性有机物组成、演化及络合重金属特征 肖骁,何小松,席北斗,高如泰,李丹,张慧,崔东宇,袁志业(3705)

潜流人工湿地基质结构与微生物群落特征的相关性 李振灵,丁彦礼,白少元,李雪芬,游少鸿,解庆林(3713)

滑石矿开采对着生藻群落结构和水环境的影响 臧小苗,张远,林佳宁,王书平,高欣,赵茜,王靖淇(3721)

高铵条件下绿狐尾藻的生理与氮磷吸收特征 刘少博,冉彬,曾冠军,李宝珍,朱红梅,刘锋,肖润林,吴金水(3731)

活性炭吸附对藻类有机物的去除及其消毒副产物的控制 苗雨,翟洪艳,于珊珊,张婧,史常香(3738)

石墨烯凝胶电极的制备及电吸附 Pb^{2+} 的性能 王瑶,吉庆华,李永峰,胡承志(3747)

电流密度对 BDD 电极电化学矿化吡啶的影响与机制 张佳维,王婷,郑彤,蒋欢,倪晋仁(3755)

黄铁矿光化学氧化降解微囊藻毒素-LR 的机制 周薇,方艳芬,张钰,吴春红,黄应平(3762)

双氧水协同生化法强化处理印染废水 岳秀,唐嘉丽,于广平,吉世明,刘竹寒(3769)

基于 ABR-MBR 组合工艺不同进水 C/N 比对反硝化除磷性能的影响机制 吴鹏,程朝阳,沈耀良,赵诗惠,吕亮(3781)

利用好氧颗粒污泥持续增殖启动高性能亚硝化反应器 高军军,钱飞跃,王建芳,陈希,沈耀良,张泽宇,闫俞廷(3787)

零价铁自养反硝化过程活性污泥矿化及解决措施 张宁博,李祥,黄勇,张文静(3793)

低氧污泥丝状菌膨胀的呼吸图谱特征分析 马智博,李志华,杨成建,贺春博,秋亮,张晶(3801)

市政污泥接种焦化废水好氧降解能力及微生物群落演替的响应分析 刘国新,吴海珍,孙胜利,胡肖怡,吴晓英,陈华勇,范一文,胡成生,韦朝海(3807)

高效反硝化细菌的快速培养及群落结构多样性分析 孟婷,杨宏(3816)

两座污水处理系统中细胞态和游离态抗生素抗性基因的丰度特征 张衍,陈吕军,谢辉,李奥林,代天娇(3823)

生物炭对土壤 CH_4 、 N_2O 排放的影响 周凤,许晨阳,王月玲,林云,王强,张彤彤,耿增超(3831)

江西省耕地土壤碳氮比空间变异特征及其影响因素 江叶枫,郭熙,孙凯,饶磊,李婕,王澜珂,叶英聪,李伟峰(3840)

碳酸钙与生物炭对酸化菜地土壤持氮能力的影响 俞映惊,杨林章,Alfred Oduor Odindo,薛利红,何世颖,段婧婧(3851)

黄土丘陵区小流域不同整地措施长期影响下的土壤水力学特性 冯天骄,卫伟,陈利顶,陈蝶,干洋,杨磊(3860)

有机碳含量对多环芳烃在土壤剖面残留及迁移的影响 费佳佳,张枝焕,万甜甜,何奉朋(3871)

酸雨区不同用地类型土壤有效态 Cd 含量季节变化及关键影响因子 刘孝利,曾昭霞,铁柏清,叶长城,周俊驰,雷鸣(3882)

陕西潼关冶金污染土壤的修复评价及应用潜力 王姣,肖然,李荣华,宁西翠,蒋顺成,李晓龙,张增强,沈锋(3888)

甘肃白银东大沟铅锌镉复合污染场地水泥固化稳定化原位修复 吕浩阳,费杨,王爱勤,阎秀兰,李发生,李春萍,杜延军,郑梓铭(3897)

设施栽培对土壤与蔬菜中 PAHs 污染特征及其健康风险评价 金晓佩,贾晋璞,毕春娟,王薛平,郭雪,陈振楼,仇新莲(3907)

镉-铅复合污染下 AM 真菌对玉米生长和镉、铅吸收的影响 常青,郭伟,潘亮,王起凡,周昕南,杨亮,李娥(3915)

秸秆还田对水稻镉积累及其亚细胞分布的影响 段桂兰,王芳,岑况,王伯勋,程旺大,刘跃川,张红梅(3927)

Pantoea sp. IMH 介导土壤中砷锑的形态转化 张林,卢金锁(3937)

生物炭对土壤中重金属铅和锌的吸附特性 王红,夏雯,卢平,布雨薇,杨浩(3944)

浒苔生物炭的特征及其对 Cr(VI) 的吸附特点和吸附机制 陈友媛,惠红霞,卢爽,王报英,王志婕,王楠(3953)

灼烧净水污泥对外源磷的吸附和固定作用 于胜楠,李勇,李大鹏,黄勇(3962)

污泥生物炭制备吸附陶粒 李杰,潘兰佳,余广炜,汪印,尤甫天,谢胜禹(3970)

石墨相氮化碳-碘氧化铋层状异质结的构建及其光催化杀菌性能 黄建辉,林文婷,谢丽燕,陈建琴(3979)

《环境科学》征稿简则(3859) 《环境科学》征订启事(3952) 信息(3644, 3688, 3768)

嘉兴市不同天气条件下大气污染物和气溶胶化学组分的分布特征

王红磊¹, 沈利娟², 唐倩³, 吕升², 田旭东³, 李莉², 张孝寒²

(1. 南京信息工程大学气象灾害教育部重点实验室, 气候与环境变化国际合作联合实验室, 气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室, 南京 210044; 2. 嘉兴市环境保护监测站, 嘉兴 314000; 3. 浙江省环境监测中心, 杭州 310000)

摘要: 为研究不同天气条件下大气污染物 ($PM_{2.5}$ 、 $PM_{1.0}$ 、 SO_2 、 NO_2 、 O_3 和 CO) 和气溶胶化学组分的污染特征, 分别使用 SHARP-5030 监测仪、热电 EMS 系统、气溶胶化学成分在线监测仪 (ACSM) 和宽范围颗粒粒径谱仪 (WPS) 对嘉兴市 2015 年 5 月 1~31 日 PM 、污染气体、 $PM_{1.0}$ 中化学组分和 10 nm~10 μm 气溶胶数浓度进行了观测分析。结果表明, 观测期间嘉兴市 $PM_{2.5}$ 、 $PM_{1.0}$ 、 SO_2 、 NO_2 、 O_3 和 CO 的平均浓度分别为 52.8 和 37.2 $\mu g \cdot m^{-3}$ 、10.3 $\mu g \cdot m^{-3}$ 、38.1 $\mu g \cdot m^{-3}$ 、92.1 $\mu g \cdot m^{-3}$ 和 1.2 $mg \cdot m^{-3}$ 。 $PM_{1.0}$ 中 OA 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 和 Cl^- 的平均浓度为 2.18、1.24、0.87、0.63 和 0.08 $\mu g \cdot m^{-3}$ 。数浓度主要集中在爱根核模态 (20~100 nm), 浓度为 12 411.2 cm^{-3} , 其次是核模态 (10~20 nm), 浓度为 4 946.6 cm^{-3} 。不同天气过程中 PM 和污染气体的浓度分布和日变化特征不同。不同天气条件下 $PM_{1.0}$ 中化学组分分布不同。雨天和晴天 $PM_{1.0}$ 中化学组分浓度从大到小顺序均为 $OA > SO_4^{2-} > NO_3^- > NH_4^+ > Cl^-$, 新粒子天 $PM_{1.0}$ 中化学组分浓度的顺序为 $OA > NO_3^- > SO_4^{2-} > NH_4^+ > Cl^-$ 。新粒子天 OA 和 NO_3^- 分别是晴天的 1.61 和 1.42 倍, 说明 OA 和 NO_3^- 是影响新粒子生成事件的主要化学成分。不同天气条件下不同模态气溶胶的日变化特征不同。

关键词: 天气条件; 污染气体; 数浓度; 化学组分; 日变化

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)09-3594-11 DOI: 10.13227/j.hjkk.201702093

Distribution Characteristics of Air Pollutants and Aerosol Chemical Components Under Different Weather Conditions in Jiaying

WANG Hong-lei¹, SHEN Li-juan², TANG Qian³, LÜ Sheng², TIAN Xu-dong³, LI Li², ZHANG Xiao-han²

(1. Key Laboratory of Meteorological Disaster, Ministry of Education (KLME), Joint International Research Laboratory of Climate and Environment Change (ILCEC), Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 2. Jiaying Environmental Monitoring Station, Jiaying 314000, China; 3. Zhejiang Environmental Monitoring Center, Hangzhou 310000, China)

Abstract: Distribution characteristics of air pollutants and aerosol chemical components under different weather conditions were investigated in Jiaying between May 1 and 31, 2015. The particulate matter (PM), gaseous pollutants, chemical components in $PM_{1.0}$, and aerosol number concentrations ranging from 10 nm to 10 μm were measured using the SHARP-5030 monitoring instrument, Thermo EMS system, Aerodyne Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM), and Wide-Range Particle Spectrometer (WPS), respectively. The average concentrations of $PM_{2.5}$, $PM_{1.0}$, SO_2 , NO_2 , O_3 , and CO were 52.8 $\mu g \cdot m^{-3}$, 37.2 $\mu g \cdot m^{-3}$, 10.3 $\mu g \cdot m^{-3}$, 38.1 $\mu g \cdot m^{-3}$, 92.1 $\mu g \cdot m^{-3}$, and 1.2 $mg \cdot m^{-3}$ during the observation period. The chemical components of OA , SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , and Cl^- in $PM_{1.0}$ had average concentrations of 2.18, 1.24, 0.87, 0.63, and 0.08 $\mu g \cdot m^{-3}$, respectively. The aerosol number concentrations were mainly centralized in Aitken mode (20-100 nm), with a value of 12 411.2 cm^{-3} . The nuclei mode aerosols (10-20 nm) followed the number concentrations with 4 946.6 cm^{-3} . The concentration distributions and diurnal variations of PM and gaseous pollutants, and the distributions of chemical components of $PM_{1.0}$ varied under different weather conditions. The concentrations of chemical components were ranked in the order of $OA > SO_4^{2-} > NO_3^- > NH_4^+ > Cl^-$ on rainy days and sunny days, and in the order of $OA > NO_3^- > SO_4^{2-} > NH_4^+ > Cl^-$ on new particle formation (NPF) days. The OA and NO_3^- concentrations on NPF days were 1.61 and 1.42 times larger than those on sunny days, suggesting that the components of OA and NO_3^- were the main substances influencing the NPF events. Additionally, the diurnal variations of aerosols in different modes varied under different types of weather conditions.

收稿日期: 2017-02-17; 修订日期: 2017-04-05

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFA0602003); 南京信息工程大学人才启动经费项目(2016040); 中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室开放课题项目(KDW1601)

作者简介: 王红磊(1988~), 男, 博士, 主要研究方向为大气环境与大气化学, E-mail: hongleiwang@nuist.edu.cn

Key words: weather conditions; gaseous pollutants; number concentration; chemical component; diurnal variation

气溶胶作为大气中重要的组成成分,可以通过影响大气辐射收支进而改变全球气候,在城市区域环境中降低能见度形成霾污染,还能携带有毒有害物质进而危害人体健康^[1~4]。长三角作为中国乃至世界经济发展最快的地区之一,快速的城市化、工业化和人口迁入,对该地区的能源、资源和土地使用类型已产生巨大影响,气溶胶已经成为该地区主要的污染物。有研究表明,近30年来长三角地区霾日数呈增长趋势,能见度每十年降低2.4 km,远高于全国平均水平 $[2.1 \text{ km} \cdot (10 \text{ a})^{-1}]$,霾日大值区主要分布在以南京、杭州、合肥、衢州为中心的周边城市^[5~8]。Cheng等^[2]研究发现 $\text{PM}_{2.5}$ 是长三角地区霾污染增加的关键因素。Wang等^[3]对长三角地区2013年1月持续区域性霾污染的研究发现,霾日 $\text{PM}_{2.5}$ 平均浓度为 $128.6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,是干净天的2.0倍。

气溶胶的粒径分布、化学成分、形成机制和时空变化等决定了气溶胶自身的性质和环境效应。Kang等^[9]发现在霾过程中 $0.6 \sim 1.4 \mu\text{m}$ 气溶胶粒子浓度的增加是造成能见度下降的主要原因。Ding等^[10]发现大气中黑碳的“穹顶效应(dome effect)”是加剧超大城市空气污染污染的重要因素,即黑碳可因其对可见光的强吸收作用冷却地表并加热 $1 \sim 2 \text{ km}$ 高度的大气,导致大气边界层(混合层)的发展受到抑制,使得城市污染排放被限制在更低高度,从而显著加剧城市污染。Park等^[11]发现在亚洲沙尘期间 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 和 K^+ 主要分布在细粒子中,而 Cl^- 、 NO_3^- 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 和 Ca^{2+} 则主要集中在粗粒子中,并且在沙尘暴期间粗粒子中 SO_4^{2-} 的浓度也有显著增加。Ng等^[12]发现在光化学老化过程中含氧有机物(OOA)成分中的 CO_2^+ 显著增加,这表明在OOA老化过程中气溶胶酸性发生了较大的变化。谭吉华等^[13]研究发现大气颗粒物、OC和EC在积聚模态的大幅度增长是广州形成霾污染的重要原因。刘景云等^[14]发现在霾天 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 的粒径分布发生了较大的改变,由干净天的双峰型分布变为单峰型分布,且峰值向大粒径段偏移。牟莹莹等^[15]研究发现来自海洋的暖湿气流除了形成降水对气溶胶形成冲刷作用,使得二次气溶胶粒子和OCEC气溶胶粒子数明显降低以外,也将有机胺带入内陆,在清洁天气气溶胶粒子中形成Amine粒子。

在污染源基本稳定的条件下,气象要素便成为

影响气溶胶的理化特性的主要因素。张仁健等^[16]发现气溶胶粒子数浓度日变化与相对湿度密切相关,RH $< 75\%$ 时,小粒子数浓度随RH的增大呈上升趋势。王开燕等^[17]发现北京粗、细粒子的数浓度日变化受气象要素的影响程度不同,相对于粗粒子,细粒子数浓度更易受气象要素日变化的影响。李瑞芃等^[18]发现沙尘发生时青岛市 $> 1.0 \mu\text{m}$ 的粗颗粒物数浓度较沙尘发生前升高了 $1 \sim 10$ 倍,降雨则使 $> 1.0 \mu\text{m}$ 粗粒子数浓度降低 $> 50\%$ 。苏捷等^[19]发现重污染过程中,积聚模态气溶胶对 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度起到决定作用;小风和静风状态下,降水对积聚模态的气溶胶没有明显的清除作用;沙尘过程中,粗模态粒子浓度显著增加,而积聚模态气溶胶却被明显清除。Zhang等^[20]探讨了天气型对近地层 O_3 时空变化特征的影响,对比了不同天气环流模式下 O_3 时空变化情况。Nilsson等^[21]发现在晴天时,边界层演化过程中快速增长的混合层、对流和强劲的夹卷过程对气溶胶的垂直分布影响较大。Chuang等^[22]发现台北盆地的气溶胶由于受到特殊天气形式和复杂地形的阻挡作用很难向外输送。Zhang等^[23]发现在冬季和夏季,东亚季风的加强或减弱往往与华北平原代表环流模式的变化有关,进而可以改善/恶化这一地区的空气质量。

新粒子生成事件是大气中过饱和蒸气(如硫酸蒸气)成核形成分子簇(最初生成的气溶胶),并通过凝结与碰并等增长到可观测的气溶胶的现象,目前研究中报道的新粒子生成事件气溶胶的粒径主要是 $3 \sim 25 \text{ nm}$ ^[24~29]。气溶胶新粒子的形成及其随后的增长过程是人们了解气溶胶如何在大气中的生消、传输和转化过程的关键^[27]。Nie等^[24]通过对衡山一次沙尘重污染过程中的新粒子生成事件分析表明,新粒子生成事件对气溶胶的化学组分以及大气化学过程可产生显著影响。此外,新粒子还可通过后增长至云凝结核大小继而通过成云和降水作用对气候产生影响^[27,30,31]。Dowd^[32]研究发现海岸地区的新粒子生成事件可以使当地云凝结核的可用率提高3倍。

目前,长三角地区针对不同天气条件下气溶胶粒径分布和化学组分的在线研究还相对较少,并且这些研究多集中在上海、南京和杭州等大城市^[33~35]。嘉兴作为长三角重要城市,临近杭州湾,距离太湖38 km,距离杭州湾32 km,是典型的沿海

城市. 与上海、杭州、宁波、绍兴、苏州等城市相距均不到百公里,工业排放和汽车尾气排放等人为污染较少. 嘉兴5月份为冬夏季风交替时节,天气形势多变. 东亚夏季风带来富含水汽的海洋气团与来自北方内陆的冬季冷气团交汇,容易产生降水. 此外,由于春季嘉兴气团多变,因此还经常受到周边大城市污染物传输的影响. 为探究不同天气条件下大气污染物和气溶胶化学组分的变化特征,本研究分别使用 SHARP-5030 监测仪、热电 EMS 系统、气溶胶化学成分在线监测仪(ACSM)和宽范围颗粒粒径谱仪(WPS)对嘉兴市2015年5月1~31日PM_{1.0}、污染气体、PM_{1.0}中化学组分和10 nm~10 μm 气溶胶数浓度进行了观测分析. 观测期间共出现8次降水过程和15次新粒子生成事件(其中3次过程发生在降雨天),讨论了不同天气过程中大气污染物的日变化特征、化学组分和气溶胶粒径分布的污染特征,此外还讨论了不同化学成分在新粒子生成事件中的作用. 本研究可以为人们深入了解不同天气条件下气溶胶污染特征提供理论依据和数据基础.

1 材料与方法

污染气体的观测采用美国热电环境设备公司的 EMS 系统(包括42i 化学发光 NO-NO₂-NO_x 分析仪、49i 紫外发光 O₃ 分析仪、43i 脉冲荧光 SO₂ 分析仪和48i 气体滤光相关法 CO 分析仪). 颗粒物采用美国热电公司生产的5030型 SHARP 监测仪. 仪器原理介绍参见文献[36]. 监测仪器定期进行标定校准,其中 NO-NO₂-NO_x 分析仪、SO₂ 分析仪和 CO 分析仪每周进行一次校零和校标,每季度进行一次多点校准,O₃ 分析仪每半年校标一次. 颗粒物监测仪定期更换纸带,清洗外置采样头. 数据审核时剔除异常点,所有数据均符合国家环境保护局的数据质量控制标准.

PM_{1.0}中的化学组分观测仪器使用美国 Aerodyne 公司生成的气溶胶化学成分在线监测仪(ACSM),测量有机物(OA)、硫酸盐(SO₄²⁻)、硝酸盐(NO₃⁻)、铵盐(NH₄⁺)和氯化物(Chl)的质量浓度. ACSM 室外采样管的前端装有一个 PM_{1.0} 旋风切割头用以去除大气中的粗颗粒物,被去除粗粒子后的大气细颗粒物被一个3 L·min⁻¹的采样泵吸入. 并通过内径约为1.27 cm 的铜管进入仪器采样口前的一个 Nafion 干燥管(Perma-Pure, 长为100 cm). 经干燥后(相对湿度稳定在30%左右),大气颗粒物

约以84 cm³·min⁻¹的流量进入到 ACSM,采样时间分辨率为30 min. 其中 OA、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺ 和氯化物(Chl) 30 min 的检测限分别为0.54、0.06、0.07、0.25 和 0.03 μg·m⁻³,仪器详细原理介绍参见文献[37~39].

气溶胶数浓度观测仪器使用美国 MSP 公司生产的宽范围颗粒粒径谱仪(WPS),测量直径在10 nm~10 μm 之间的气溶胶粒子数浓度. 仪器原理介绍参见文献[40]. 由于 WPS 适应的环境湿度为0%~90%非冷凝,根据观测的实施情况,经数据处理后剔除了部分无效数据.

EMS 监测仪、5030 型 SHARP 监测仪和 ACSM 放置在嘉兴市环境监测站超级站(北纬30°82',东经120°88'),采样位置距地6 m. WPS 放置在嘉兴市南湖区残疾人联合会楼顶的监测站点(北纬30°45',东经120°47'),采样位置距地15 m. 两观测点相距约13 km,采样点附近均以居民区和公园为主,周边没有明显的工业污染源,视野较为开阔. 观测时间为2015年5月1~31日.

2 结果与讨论

2.1 总体概述

2015年5月中国地区上空北支锋区平直,冷空气活动偏弱. 副热带高压较常年同期面积偏大,强度偏强. 由香港天文台(<http://www.hko.gov.hk>)公布的地面天气图可知5月长三角地区主要受到大陆冷高压或副热带高压外围的控制,等压线比较稀疏. 此外,在观测期间长三角地区多次受到高原南部短波槽活动的影响,东移的短波槽和低层切变系统遇到副高外围西南暖湿气流便会形成较强的降水过程,在观测期间嘉兴市一共出现了8次较强的降水过程. 由图1(a)可发现观测期间嘉兴以偏东风为主,风速平均为2.8 m·s⁻¹. 当为偏西风或偏北风时,风速较大,如5月10日10:00 风速可达6.9 m·s⁻¹. 由图1(b)可发现嘉兴日夜温差较大,如5月13日白天最高温度可达30.5℃,夜间最低温度仅为13.8℃. 但是观测期间 RH 较高,平均为75.7%,主要是因为观测点靠近太湖和杭州湾,因此水汽充足.

由图1可发现观测期间污染物浓度除个别观测日变化较大外,浓度分布相对稳定. 由表1可知观测期间 PM 浓度较低,PM_{2.5}和 PM_{1.0}的平均浓度分别为52.8 μg·m⁻³和37.2 μg·m⁻³. 气体的浓度较高,SO₂、NO₂、O₃ 和 CO 的平均浓度分别为10.3

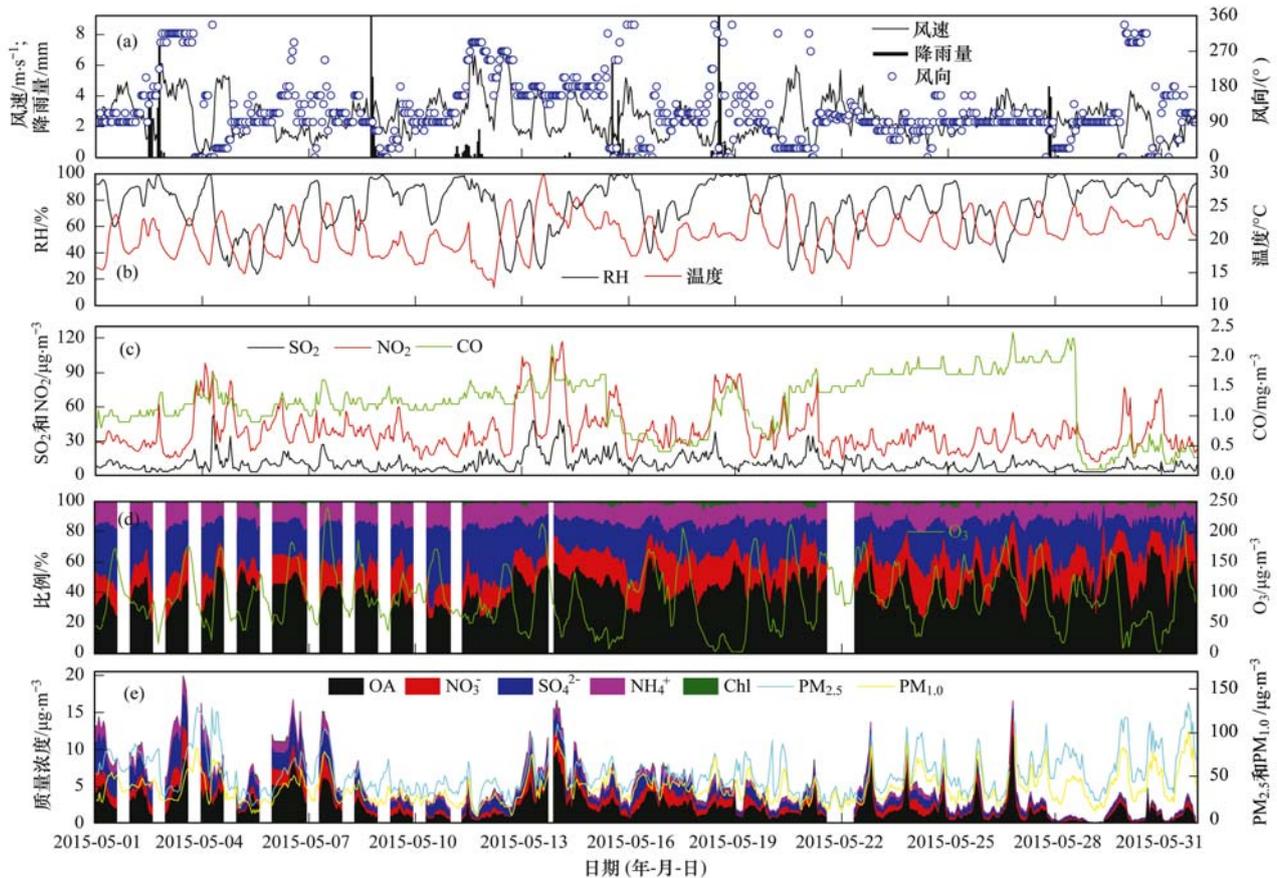


图1 观测期间气象要素、气体、PM和化学成分的时间序列

Fig. 1 Time series of meteorological elements, trace gases, PM and aerosol components during observation period

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $38.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $92.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $1.2 \text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 。PM_{1.0}中气溶胶化学成分以OA为主,平均浓度为 $2.18 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,其次是 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ ,平均浓度分别为 1.24 、 0.87 和 $0.63 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。 Cl^- 的浓度较低,基本可以忽略,平均浓度仅为 0.08

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。数浓度主要集中在爱根核模态($20 \sim 100 \text{nm}$),平均浓度为 12411.2cm^{-3} ,其次是核模态($10 \sim 20 \text{nm}$),平均浓度为 4946.6cm^{-3} 。观测期间观测到15次新粒子生成事件^[41],占总观测日的48%,因此爱根核模态粒子和核模态粒子数浓度较高。

表1 观测期间PM、污染气体、化学成分和不同模态气溶胶数浓度分布

Table 1 Summary of trace gases, PM, aerosol components, and number concentrations in different aerosol modes during observation period

项目	平均值	标准偏差	最大值	最小值	中值
PM _{2.5} / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	52.8	23.1	134.0	5.0	47.0
PM _{1.0} / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	37.2	17.3	102.0	4.0	34.0
SO ₂ / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	10.3	7.2	53.0	3.0	9.0
NO ₂ / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	38.1	18.5	117.0	12.0	33.0
CO/ $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$	1.2	0.5	2.4	0.1	1.2
O ₃ / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	92.1	48.8	240.0	2.0	85.0
OA/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	2.18	1.77	11.78	0.56	1.73
NO ₃ ⁻ / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	0.87	0.71	4.35	0.08	0.73
SO ₄ ²⁻ / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	1.24	1.00	4.98	0.07	0.95
NH ₄ ⁺ / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	0.63	0.48	2.55	0.25	0.51
Cl ⁻ / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	0.08	0.09	0.55	0.04	0.06
核模态/ cm^{-3}	4946.6	7001.7	60463.96	133.4	2663.1
爱根核模态/ cm^{-3}	12411.2	7853.8	69463.16	274.6	10433.5
积聚模态/ cm^{-3}	2358.8	1512.0	21034.41	249.8	2085.8
粗模态/ cm^{-3}	1.7	1.0	18.6	0.1	1.4

由图 1 可发现降雨对污染物浓度的影响较大. 当降雨强度较大时, 可以有效地清除污染物. 例如 5 月 8 日 17:00 ~ 19:00 的强降雨过后, SO_2 、 NO_2 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 $\text{PM}_{1.0}$ 、 OA 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 分别比降雨前下降了 40%、50%、41%、36%、51%、18%、48% 和 34%, 但是 CO 、 O_3 和 Cl^- 在降雨前后并没有明显变化. 当降雨强度较弱时, 对污染物的清除作用较弱, 甚至会使得污染物浓度升高. 例如 5 月 11 日的弱降水过程, 虽然降水持续时间较长, 但是降水后 SO_2 、 NO_2 、 CO 、 OA 、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 分别是降水前的 2.3、1.4、1.2、1.3、1.7 和 1.3 倍. 降水强度较弱时一方面对大气污染物的湿清除作用较弱. 另一方面出现弱降水时天气形势比较稳定, 不利于污染物的扩散. 此外, 由图 1 还可发现弱降水时主要为偏北风, 周边地区的污染物还可能会输送到本地.

由图 1 还可发现除降雨外, 风速风向对污染物的影响也较大. 偏东风下 CO 、 NO_2 和 OA 的浓度较高, 主要因为观测点位于上海西部, 偏东风时会将上海的污染物携带至观测点. 此外由图 1 还可发现在大风结束后污染物浓度会有突然增加的现象, 比如 5 月 4 日、5 月 11 日和 5 月 20 日. 由图 1(a) 可知大风时多为偏北风, 有利于污染物的扩散. 但是当风速减弱后风向则转变为偏南风或偏东风, 一方面

将周边城市污染物携带到观测点, 另一方面小风有利于污染物积累, 因此造成污染物浓度急剧增加.

由图 1 可知在观测期间共出现 8 次降雨过程. 此外在观测期间还出现 15 次新粒子生成事件, 新粒子生成事件对气溶胶数谱分布的影响较大^[41]. 因此笔者将观测期间分为降雨天、晴天和新粒子天这 3 类天气条件, 来探讨不同天气条件下大气污染物、气溶胶数谱及化学组分的污染特征的变化.

2.2 不同天气条件下 PM 和气体污染物的变化特征

由图 2(a) 可知在不同天气条件下 RH 的日变化差异较大, 雨天相对湿度最大, 平均为 94.4%. 新粒子天 RH 最低, 平均为 62.9%, 且日变化最剧烈, 凌晨最高可达 82.1%, 中午最低仅为 41.3%. 由图 2(b) 可知新粒子天风速存在显著的日变化特征, 白天较高, 最大可达 $4.1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, 夜间风速较低. 雨天风速变化较大, 一般降雨量较大时风速较小, 降雨量较小时风速较大. 主要是因为嘉兴春季降雨过程多是由于内陆冷气团与携带大量水汽的偏南气流交汇形成, 因此在降雨初期降雨量较小时风速较大.

由图 2(c) 和图 2(d) 可发现 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{PM}_{1.0}$ 的变化基本一致, $\text{PM}_{2.5}$ 在雨天、晴天和新粒子天的浓度分别为 49.8、56.0 和 $47.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $\text{PM}_{1.0}$ 在雨天、晴天和新粒子天的浓度分别为 32.0、38.2 和 32.9

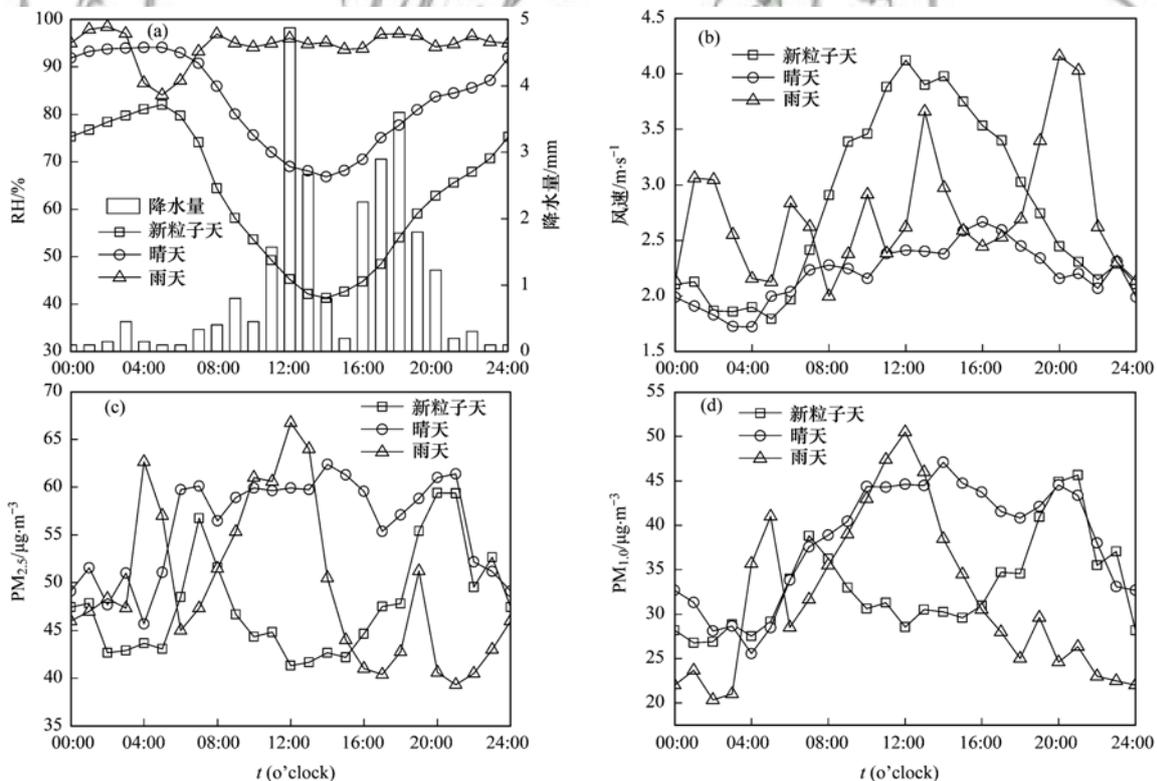


图 2 不同天气条件下气象要素和 PM 日变化

Fig. 2 Diurnal variations in meteorological factors and PM under different weather conditions

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. $\text{PM}_{1.0}$ 占 $\text{PM}_{2.5}$ 的比例在雨天、晴天和新粒子天分别为 64.1%、68.2% 和 69.0%,说明春季嘉兴市颗粒物更集中在细粒子段。

由图 2 可知,在新粒子天 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{PM}_{1.0}$ 的日变化为典型的双峰型分布,峰值分别位于 07:00 和 20:00,主要是由于上下班高峰期人为排放和边界层日变化造成。由图 2(b)可知新粒子天白天风速较大,因此在白天 PM 的浓度较低。在晴天 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{PM}_{1.0}$ 在白天的浓度较高,在夜间浓度较低。由图 2 可发现晴天时风速较低,且在白天 RH 也较高,因此周边城市输送过来的细粒子容易累积。反观雨天 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{PM}_{1.0}$ 的变化非常剧烈,除受到人为源排放的影响外,还受到降雨强度的影响。

图 3 给出了不同天气条件下污染气体的日变化特征。由图 3(b)可发现新粒子天 SO_2 、 NO_2 和 CO 的浓度日变化为显著的双峰型分布,峰值分别出现在 06:00~08:00 和 19:00~21:00,与上下班高峰时间一致。白天浓度较低,由图 2(b)可知新粒子天白天风速较大,有利于污染物扩散。由图 3(d)可发现新粒子天 O_3 在白天的浓度较高,平均浓度为 $104.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,是晴天和雨天的 1.1 和 2.0 倍,说明生成 O_3 的光化学反应可能在新粒子生成过程中扮演了重要的作用。

由图 3 可发现在晴天 SO_2 和 CO 存在明显的单峰型日变化特征,一般在 08:00~10:00 达到峰值,之后浓度开始下降。晴天 NO_2 的浓度日变化较平缓,平均浓度为 $32.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。晴天时 O_3 日变化与新粒子天基本类似,为单峰型分布,峰值出现在 14:00 左右。雨天气体浓度日变化较为剧烈,降水强度较强时由于湿清除作用较强,气体浓度较低;降水强度较弱时,湿清除作用较弱,天气形势比较稳定,因此气体浓度较高。

2.3 不同天气条件下气溶胶化学组分变化特征

在雨天和晴天 $\text{PM}_{1.0}$ 中化学组分浓度从大到小顺序均为 $\text{OA} > \text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^- > \text{NH}_4^+ > \text{Cl}^-$,在雨天中的浓度分别为 1.18、0.85、0.61、0.45 和 0.08 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,在晴天的浓度分别为 1.72、1.12、0.79、0.58 和 0.07 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。降雨过程对不同化学组分的影响不同。雨天 OA 仅为晴天的 69%, SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 为晴天的 77% 左右,说明降雨对 OA 的影响更大,对 SNA 的影响基本一致。 Cl^- 的浓度在雨天比晴天时降低了 0.01 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,说明降水过程对 Cl^- 的浓度影响相对较小。在新粒子天 $\text{PM}_{1.0}$ 中化学组分浓度的顺序为 $\text{OA} > \text{NO}_3^- > \text{SO}_4^{2-} > \text{NH}_4^+ > \text{Cl}^-$,它们的平均浓度分别为 2.77、1.12、1.07、0.75 和 0.11 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。新粒子天 OA、 NO_3^- 分别是晴天的

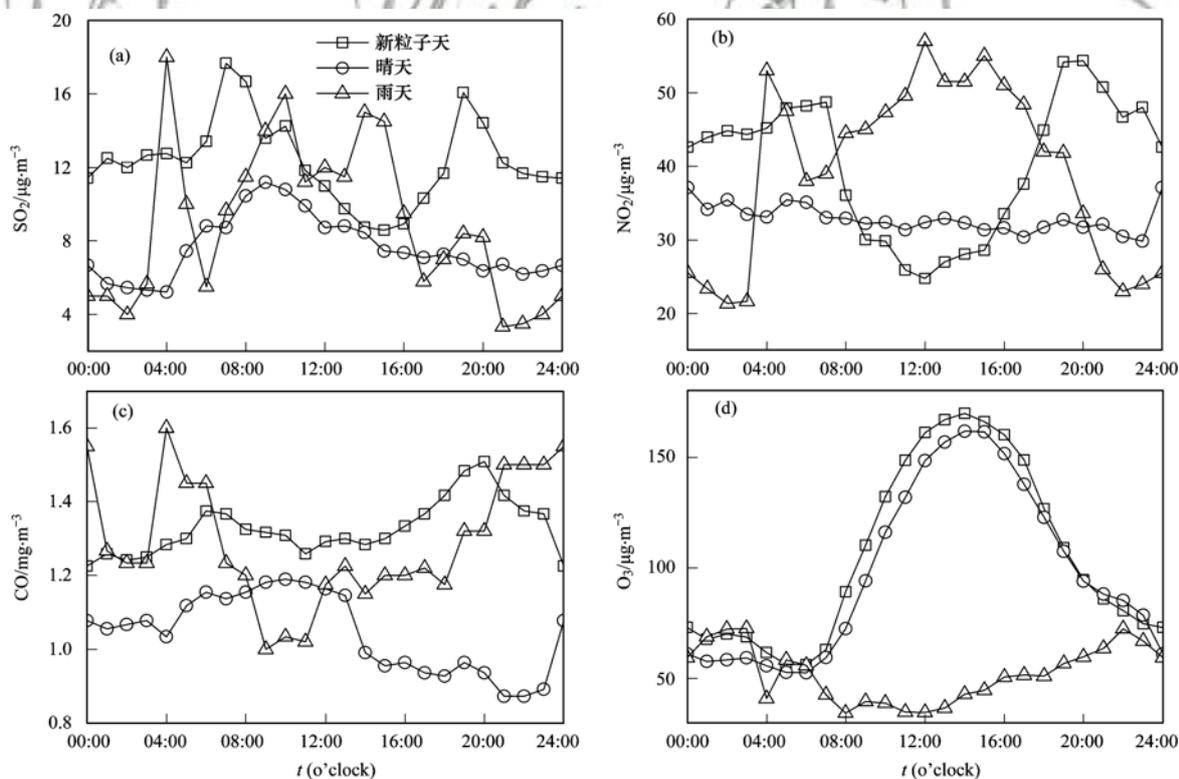


图 3 不同天气条件下污染气体日变化

Fig. 3 Diurnal variations in trace gases under different weather conditions

1.61 和 1.42 倍,这说明 OA 和 NO_3^- 是影响新粒子生成事件的主要物质. SO_4^{2-} 是晴天时的 0.96 倍,说明 SO_4^{2-} 对新粒子生成事件的影响较小. Kulmala 等^[26]研究也表明 H_2SO_4 可能在新粒子生成过程中作用较大,而在后续增长过程中则主要是 OA 的影响.

由图 4 可发现在不同天气条件下 $\text{PM}_{1.0}$ 中 OA 的比例最高,在新粒子天、晴天和雨天占 $\text{PM}_{1.0}$ 中的化学成分的比例分别为 47.25%、40.74% 和

39.13%. 这与张德江等人在南京的观测结果类似^[39]. 新粒子天 OA 所占的比例要远大于晴天和雨天,这说明有机气溶胶在新粒子生成事件中的作用较大. 在晴天和雨天 SO_4^{2-} 所占的比例分别为 26.30% 和 25.75%, NO_3^- 所占的比例分别为 18.07% 和 18.91%. 但是在新粒子天 NO_3^- 所占的比例为 20.77%,要大于 SO_4^{2-} 所占的比例. 这说明在新粒子生成事件过程中 NO_3^- 的形成过程更为重要.

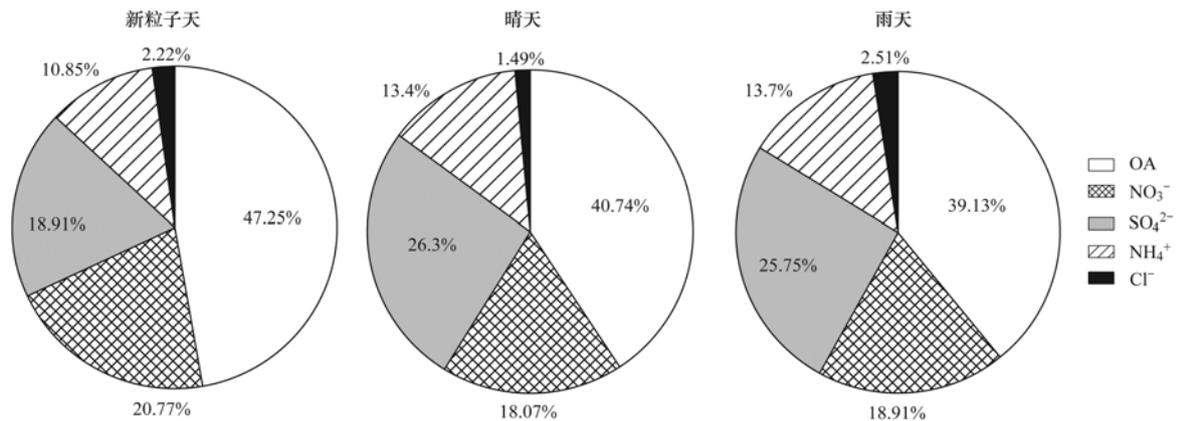


图 4 不同天气条件下气溶胶化学成分组成比例

Fig. 4 Percentage of aerosol components under different weather conditions

由图 5 可发现新粒子天 OA 日变化为三峰型分布,除了早晚上下班高峰期外在白天也存在峰值. 由图 5(a)可发现新粒子生成事件过程中 OA 在 17:00~22:00 的峰值要明显大于 04:00~08:00 的峰值,除了晚高峰人为排放外,可能还和晚饭时烹饪排放有关. 研究表明,烹饪会释放出大量的 OA^[38,39]. 09:00 开始 OA 浓度开始升高,12:00~14:00 达到白天的峰值,该时间段恰好为新粒子生成事件发生阶段,这表明 OA 在新粒子的后续增长过程中起到比较重要的作用. 在晴天时 OA 从 04:00 开始浓度开始增加,但是整个白天浓度变化相对比较平稳. 18:00~21:00 存在比较明显的峰值,主要是受到下班晚高峰及本地餐饮源排放的有机气溶胶的影响. 此结果与南京和北京的观测类似^[38]. 此外,夜间边界层高度降低,近地面逆温层的形成,使得大气扩散条件变差,也有利于污染物的积聚. 雨天 OA 的高浓度主要出现在降水量较小且源排放较强时刻,例如 04:00~06:00 降雨量多为 0.1 mm,此时 OA 存在高值. 07:00 降雨量开始增多,且此时风速开始增大,OA 浓度开始显著降低. 09:00 降雨量较大为 0.8 mm,风速为 $2.4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$,但是风向为西南风,可能将嘉兴、杭州等地的污染物输送到观测

点. 降雨过程对 OA 的清除作用较小,风速风向及排放源的影响较大.

晴天和新粒子天 NO_3^- 和 NH_4^+ 日变化与 OA 基本类似. 由图 5(c)可发现新粒子天 SO_4^{2-} 在白天浓度较高,06:00~09:00 出现一小峰值,主要是因为日出后光化学反应开始加强,且此时 RH 较高,大气中的 SO_2 容易在气溶胶表面发生液相或气相的非均相反应生成 SO_4^{2-} . 09:00 左右多为新粒子生成事件发生时刻,此时 SO_4^{2-} 达到峰值. 此后浓度开始降低,10:00 达到低值,这也说明 H_2SO_4 可能在新粒子形成阶段的作用较大,而对新粒子增长过程的影响较小. 此后由于太阳辐射加强,光化学反应过程加剧,浓度开始增加,15:00 达到最大值,此后随着太阳辐射减弱,浓度开始下降. 晴天时 SO_4^{2-} 的日变化特征比较简单,04:00 之后浓度开始增加,15:00 之后浓度开始降低,基本与光化学反应的日变化对应. 雨天 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 和 Cl^- 的日变化基本类似,在 04:00 和 12:00 出现峰值,由图 2(a)可知 10:00 之前降雨量较小,因此对污染物的清除作用较小. 12:00 降雨量达到最大,清除作用增强,因此污染物在 12:00 达到最大值,此后浓度迅速降低. 此后降雨强度均较强,因此污染物浓度维持在较低的水平.

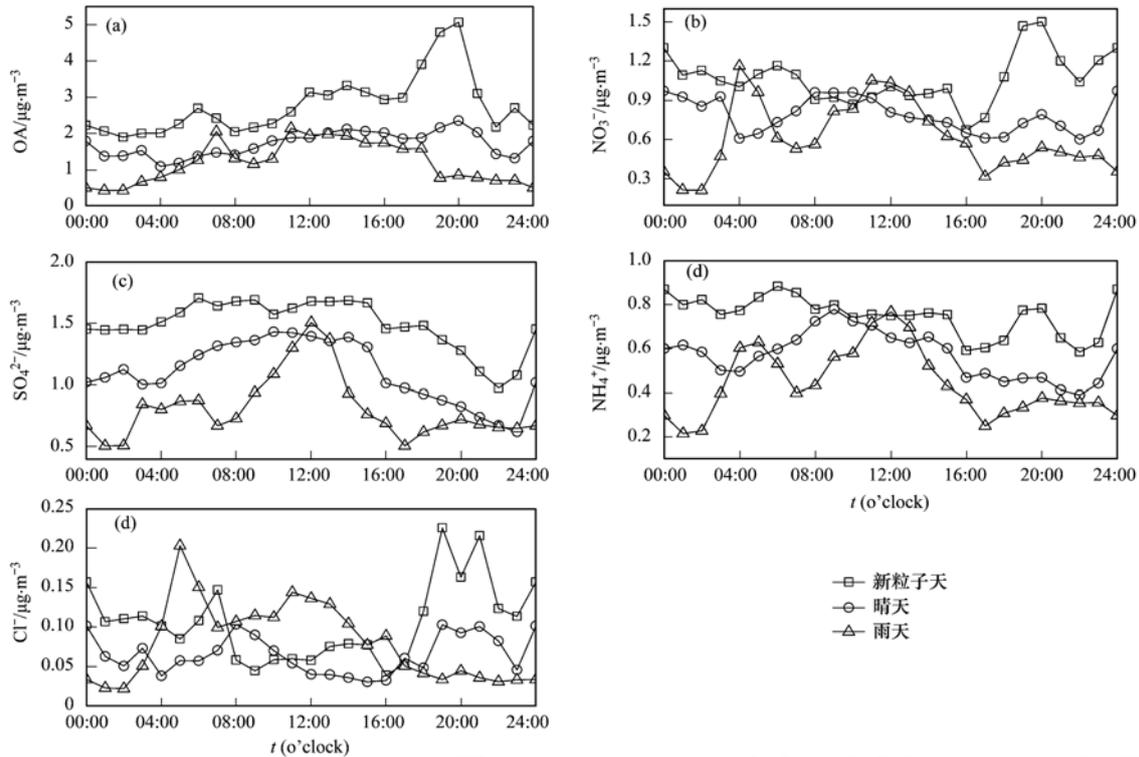


图 5 不同天气条件下化学组分日变化

Fig. 5 Diurnal variations in aerosol components under different weather conditions

2.4 不同天气条件下气溶胶数浓度变化特征

图 6 给出了不同天气条件下核模态 (10 ~ 20 nm)、爱根核模态 (20 ~ 100 nm)、积聚模态 (100 ~ 1 000 nm) 和粗模态 (1 000 nm ~ 10.0 μm) 数浓度的

日变化. 由图 6 (a) 可发现晴天和雨天核模态粒子数浓度日变化特征基本一致, 在白天较高, 夜间较低. 此外雨天核模态数浓度要低于晴天, 一方面是由于降雨的清除作用, 另一方面降雨天光化学反应

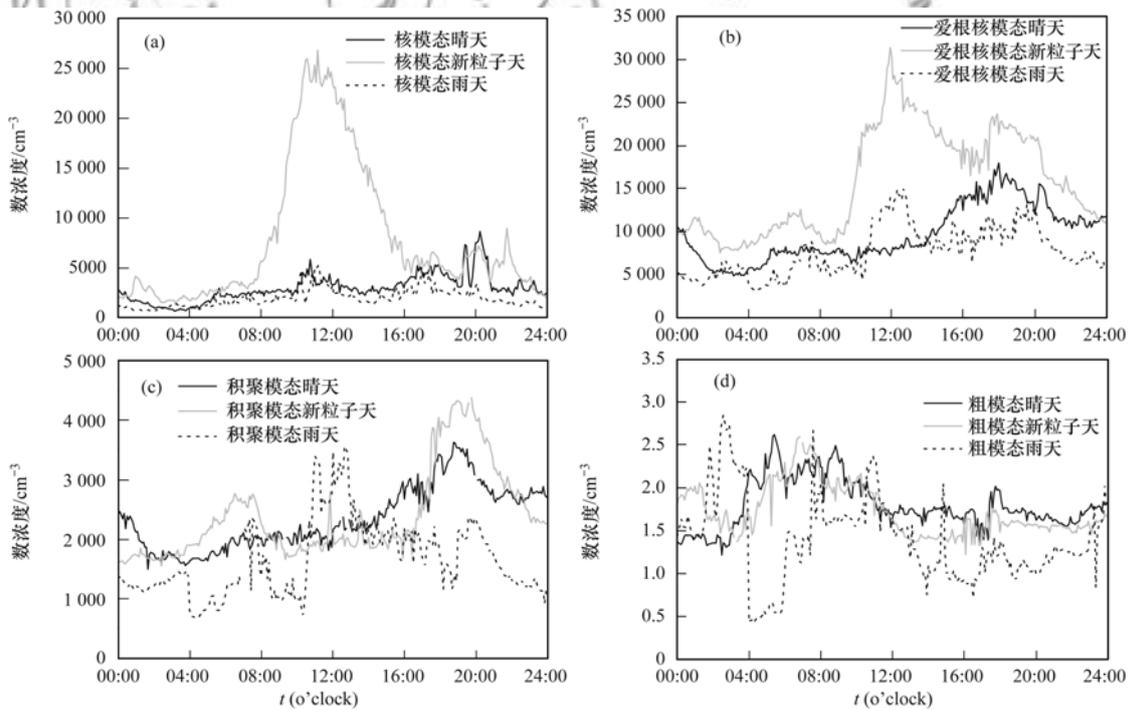


图 6 不同天气条件下不同模态气溶胶数浓度日变化

Fig. 6 Diurnal variations in number concentrations in different aerosol modes under different weather conditions

较弱,生成的核模态粒子较少.新粒子天核模态日变化明显,在 07:00 后随着太阳辐射的加强急剧升高,在几个小时内浓度可增加 5~6 倍.午后随着新粒子生成事件的结束,浓度开始迅速降低.此外由图 6(a) 还可发现在新粒子天和晴天 19:00~21:00 核模态也出现峰值,浓度变化剧烈,峰值持续时间较短,这主要是由于晚高峰汽车尾气的直接排放造成.

由图 6(b) 可发现新粒子天爱根核模态粒子日变化特征与核模态类似,但是其浓度变化要比核模态粒子滞后 1 h 左右,爱根核模态粒子主要来自核模态粒子的增长.在晴天爱根核模态粒子白天的浓度变化比较平缓,14:00 浓度开始增加,18:00 达到峰值.由图 2 可知该时间段风速较低,RH 开始升高,不利于污染物的扩散.此外,由图 6 可发现在新粒子天和雨天 17:00~21:00 爱根核模态粒子也出现了峰值,该时间段为下班晚高峰,研究表明汽车尾气直接排放的粒子主要集中在 10~50 nm^[42,43],因此该时间段爱根核模态主要来自汽车尾气排放.雨天爱根核模态日变化比较杂乱,11:00~13:00 出现一个峰值,由图 2(a) 可知该时间段降雨量较高,但是由图 2(b) 可发现此时风速较低.康汉青等^[44] 研究表明降雨对爱根核模态粒子的清除作用较小,该峰值可能主要由于汽车尾气排放造成.由图 3(b) 可发现雨天该时间段内 NO₂ 的浓度较高,这也证明该时间段主要受汽车尾气的影响.

由图 6(c) 可发现新粒子天积聚模态呈显著的双峰型分布,峰值分别位于 05:00~08:00 和 17:00~21:00.一方面是由于边界层日变化影响,早晚太阳辐射较弱,边界层存在逆温层,不利于污染物扩散.另一方面是由于人为活动的影响,如上下班高峰的汽车尾气、烹饪过程等活动.在晴天积聚模态粒子日变化特征与新粒子天类似,但是峰值浓度较低.由图 2(b) 可发现晴天 05:00~08:00 风速较高,有利于污染物扩散.而在新生成的气溶胶粒子经过十几个小时的增长过程可以长大至积聚模态,进而使得积聚模态粒子下午的峰值要比晴天高.雨天积聚模态粒子日变化与爱根核模态粒子日变化类似.

由图 6(d) 可发现晴天和新粒子天粗模态粒子日变化特征基本一致,04:00~11:00 出现峰值,主要是由边界层日变化和人为活动造成.雨天粗模态粒子日变化比较剧烈,与降雨量成反比.此外由图 6 可发现粗模态粒子的数浓度非常低,基本可以忽略不计,因此本文不做详细分析.

3 结论

(1) 观测期间嘉兴市 PM_{2.5}、PM_{1.0}、SO₂、NO₂、O₃ 和 CO 的平均浓度分别为 52.8 和 37.2、10.3、38.1、92.1 μg·m⁻³ 和 1.2 mg·m⁻³. PM_{1.0} 中 OA、SO₄²⁻、NO₃⁻ 和 NH₄⁺ 和 Cl⁻ 的平均浓度为 2.18、1.24、0.87、0.63 和 0.08 μg·m⁻³. 数浓度主要集中在爱根核模态,浓度为 12 411.2 cm⁻³,其次是核模态,浓度为 4 946.6 cm⁻³.

(2) 观测期间共出现了 8 次降水过程、8 次晴天和 15 次新粒子生成事件.不同天气过程中 PM 和污染气体的浓度分布和日变化特征不同.新粒子天 PM_{2.5}、PM_{1.0}、SO₂、NO₂ 和 CO 的日变化为双峰型分布,峰值分别位于 06:00~08:00 和 19:00~21:00.新粒子天 O₃ 在白天的浓度较高,平均浓度为 104.7 μg·m⁻³,是晴天和雨天的 1.1 和 2.0 倍,说明光化学反应是新粒子的重要生成过程.晴天 PM_{2.5} 和 PM_{1.0} 在白天的浓度较高,在夜间浓度较低.SO₂ 和 CO 存在明显的单峰型日变化特征,峰值位于 08:00~10:00.雨天 PM_{2.5} 和 PM_{1.0} 和气体浓度的变化非常剧烈,除受到人为源排放的影响外,还受到降雨强度的影响.

(3) 不同天气条件下 PM_{1.0} 中化学组分分布不同.雨天和晴天 PM_{1.0} 中化学组分浓度从大到小顺序均为 OA>SO₄²⁻>NO₃⁻>NH₄⁺>Cl⁻,新粒子天为 OA>NO₃⁻>SO₄²⁻>NH₄⁺>Cl⁻.降雨过程对不同化学组分的影响不同.新粒子天 OA 和 NO₃⁻ 分别是晴天的 1.61 和 1.42 倍,这说明 OA 和 NO₃⁻ 是影响新粒子生成事件的主要化学成分.

(4) 不同天气条件下不同模态气溶胶的日变化特征不同.新粒子天对核模态和爱根核模态粒子数浓度日变化影响较大,为单峰型分布.晴天和雨天核模态粒子数浓度日变化特征基本一致,在白天较高,夜间较低.晴天爱根核模态粒子白天的浓度变化比较平缓,14:00 浓度开始增加,18:00 达到峰值.新粒子天和晴天积聚模态粒子日变化呈显著的双峰型分布,粗模态粒子日变化为单峰型分布.降雨对爱根核模态和积聚模态粒子的清除作用较小,对粗模态粒子的清除作用较大.

参考文献:

- [1] Kiehl J T, Briegleb B P. The relative roles of sulfate aerosols and greenhouse gases in climate forcing[J]. Science, 1993, 260 (5106): 311-314.
- [2] Cheng Z, Wang S X, Jiang J K, et al. Long-term trend of haze

- pollution and impact of particulate matter in the Yangtze River Delta, China [J]. *Environmental Pollution*, 2013, **182**: 101-110.
- [3] Wang H L, Zhu B, Shen L J, *et al.* Regional characteristics of air pollutants during heavy haze events in the Yangtze river delta, China [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2016, **16**(9): 2159-2171.
- [4] Seaton A, Godden D, MacNee W, *et al.* Particulate air pollution and acute health effects [J]. *The Lancet*, 1995, **345**(8943): 176-178.
- [5] 郭婷, 朱彬, 康志明, 等. 1960~2012年长江三角洲地区雾日与霾日的气候特征及其影响因素 [J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(4): 961-969.
- Guo T, Zhu B, Kang Z M, *et al.* Spatial and temporal distribution characteristic of fog days and haze days from 1960~2012 and impact factors over the Yangtze River Delta region [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(4): 961-969.
- [6] Gao L N, Jia G S, Zhang R J, *et al.* Visual range trends in the Yangtze River Delta region of China, 1981-2005 [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2011, **61**(8): 843-849.
- [7] Che H Z, Zhang X Y, Li Y, *et al.* Horizontal visibility trends in China 1981-2005 [J]. *Geophysical Research Letters*, 2007, **34**(24): 124706.
- [8] Shen X J, Sun J Y, Zhang X Y, *et al.* Characterization of submicron aerosols and effect on visibility during a severe haze-fog episode in Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **120**: 307-316.
- [9] Kang H Q, Zhu B, Su J F, *et al.* Analysis of a long-lasting haze episode in Nanjing, China [J]. *Atmospheric Research*, 2013, **120**: 78-87.
- [10] Ding A J, Huang X, Nie W, *et al.* Enhanced haze pollution by black carbon in megacities in China [J]. *Geophysical Research Letters*, 2016, **43**(6): 2873-2879.
- [11] Park S H, Song C B, Kim M C, *et al.* Study on size distribution of total aerosol and water-soluble ions during an Asian dust storm event at Jeju Island, Korea [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2004, **93**(1-3): 157-183.
- [12] Ng N L, Canagaratna M R, Zhang Q, *et al.* Organic aerosol components observed in Northern Hemispheric datasets from aerosol mass spectrometry [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(10): 4625-4641.
- [13] 谭吉华, 段菁春, 赵金平, 等. 广州市灰霾期间大气颗粒物中有机碳和元素碳的粒径分布 [J]. *环境化学*, 2009, **28**(2): 267-271.
- Tan J H, Duan J C, Zhao J P, *et al.* The size distribution of organic carbon and elemental carbon during haze period in Guangzhou [J]. *Environmental Chemistry*, 2009, **28**(2): 267-271.
- [14] 刘景云, 刘子锐, 温天雪, 等. 石家庄秋季一次典型霾污染过程水溶性离子粒径分布特征 [J]. *环境科学*, 2016, **37**(9): 3258-3267.
- Liu J Y, Liu Z R, Wen T X, *et al.* Characteristics of the size distribution of water soluble inorganic ions during a typical haze pollution in the autumn in Shijiazhuang [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(9): 3258-3267.
- [15] 牟莹莹, 楼晟荣, 陈长虹, 等. 利用 SPAMS 研究上海秋季气溶胶污染过程中颗粒物的老化与混合状态 [J]. *环境科学*, 2013, **34**(6): 2071-2080.
- Mu Y Y, Lou S R, Chen C H, *et al.* Aging and mixing state of particulate matter during aerosol pollution episode in autumn Shanghai using a single particle aerosol mass spectrometer (SPAMS) [J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(6): 2071-2080.
- [16] 张仁健, 王明星, 戴淑玲, 等. 北京地区气溶胶粒度谱分布初步研究 [J]. *气候与环境研究*, 2000, **5**(1): 85-89.
- Zhang R J, Wang M X, Dai S L, *et al.* Preliminary research on the size distribution of aerosols in Beijing [J]. *Climatic and Environmental Research*, 2000, **5**(1): 85-89.
- [17] 王开燕, 王雪梅, 张仁健, 等. 北京市冬季气象要素对气溶胶浓度日变化的影响 [J]. *环境科学研究*, 2008, **21**(4): 132-135.
- Wang K Y, Wang X M, Zhang R J, *et al.* Impact of meteorological factors on aerosol concentration diurnal variation in Beijing winter [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2008, **21**(4): 132-135.
- [18] 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.
- Li R P, Shi J H, Zhang D Z. Size distribution of atmospheric particles in number concentration in relation to meteorological conditions and air mass origins in Qingdao in spring [J]. *China Environmental Science*, 2012, **32**(8): 1392-1399.
- [19] 苏捷, 赵普生, 陈一娜. 北京地区不同天气条件下气溶胶数浓度粒径分布特征研究 [J]. *环境科学*, 2016, **37**(4): 1208-1218.
- Su J, Zhao P S, Chen Y N. Characteristics of number concentration size distributions of aerosols under different weather processes in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(4): 1208-1218.
- [20] Zhang Y, Mao H T, Ding A J, *et al.* Impact of synoptic weather patterns on spatio-temporal variation in surface O₃ levels in Hong Kong during 1999-2011 [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **73**: 41-50.
- [21] Nilsson E D, Rannik Ü, Kumala M, *et al.* Effects of continental boundary layer evolution, convection, turbulence and entrainment, on aerosol formation [J]. *Tellus B*, 2001, **53**(4): 441-461.
- [22] Chuang M T, Chiang P C, Chan C C, *et al.* The effects of synoptical weather pattern and complex terrain on the formation of aerosol events in the Greater Taipei area [J]. *Science of the Total Environment*, 2008, **399**(1-3): 128-146.
- [23] Zhang Y, Ding A J, Mao H T, *et al.* Impact of synoptic weather patterns and inter-decadal climate variability on air quality in the North China Plain during 1980-2013 [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **124**: 119-128.
- [24] Nie W, Ding A, Wang T, *et al.* Polluted dust promotes new particle formation and growth [J]. *Scientific Reports*, 2014, **4**: 6634, doi: 10.1038/srep06634.
- [25] Kulmala M. How particles nucleate and grow [J]. *Science*, 2003, **302**(5647): 1000-1001.
- [26] Kulmala M, Kontkanen J, Junninen H, *et al.* Direct observations of atmospheric aerosol nucleation [J]. *Science*, 2013, **339**(6122): 943-946.

- [27] Kulmala M, Vehkamäki H, Petäjä T, *et al.* Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations[J]. *Journal of Aerosol Science*, 2004, **35**(2): 143-176.
- [28] Hussein T, Junninen H, Tunved P, *et al.* Time span and spatial scale of regional new particle formation events over Finland and Southern Sweden [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(14): 4699-4716.
- [29] Harrison R M, Grenfell J L, Savage N, *et al.* Observations of new particle production in the atmosphere of a moderately polluted site in eastern England [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2000, **105**(D14): 17819-17832.
- [30] Laaksonen A, Hamed A, Joutsensaari J, *et al.* Cloud condensation nucleus production from nucleation events at a highly polluted region[J]. *Geophysical Research Letters*, 2005, **32**(6): L06812, doi: 10.1029/2004GL022092.
- [31] Yue D L, Hu M, Zhang R Y, *et al.* Potential contribution of new particle formation to cloud condensation nuclei in Beijing [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(33): 6070-6077.
- [32] Dowd C D O. Biogenic coastal aerosol production and its influence on aerosol radiative properties [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2001, **106**(D2): 1545-1549.
- [33] Wang H L, An J L, Cheng M T, *et al.* One year online measurements of water-soluble ions at the industrially polluted town of Nanjing, China: sources, seasonal and diurnal variations [J]. *Chemosphere*, 2016, **148**: 526-536.
- [34] Du H H, Kong L D, Cheng T T, *et al.* Insights into summertime haze pollution events over Shanghai based on online water-soluble ionic composition of aerosols [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(29): 5131-5137.
- [35] Jansen R C, Shi Y, Chen J M, *et al.* Using hourly measurements to explore the role of secondary inorganic aerosol in PM_{2.5} during haze and fog in Hangzhou, China [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2014, **31**(6): 1427-1434.
- [36] 沈利娟, 李莉, 吕升, 等. 2013 年夏季嘉兴市一次光化学事件的观测分析 [J]. *环境科学*, 2014, **35**(5): 1662-1670.
Shen L J, Li L, Lü S, *et al.* Observation of a photochemical event in Jiaxing during summer 2013 [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(5): 1662-1670.
- [37] Ng N L, Herndon S C, Trimborn A, *et al.* An aerosol chemical speciation monitor (ACSM) for routine monitoring of the composition and mass concentrations of ambient aerosol [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2011, **45**(7): 780-794.
- [38] 汤莉莉, 张运江, 孙业乐, 等. 南京持续雾霾天气中亚微米细颗粒物化学组分及光学性质 [J]. *科学通报*, 2014, **59**(20): 1955-1966.
Tang L L, Zhang Y J, Sun Y L, *et al.* Components and optical properties of submicron aerosol during the lasting haze period in Nanjing [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2014, **59**(20): 1955-1966.
- [39] 张运江, 汤莉莉, 王壮, 等. 南京夏季大气有机气溶胶老化过程在线观测研究 [J]. *中国科学: 化学*, 2014, **44**(10): 1654-1664.
Zhang Y J, Tang L L, Wang Z, *et al.* Aging of atmospheric organic aerosol during summertime in Nanjing: insights from on-line measurement [J]. *Scientia Sinica Chimica*, 2014, **44**(10): 1654-1664.
- [40] Wang H L, Zhu B, Shen L J, *et al.* Number size distribution of aerosols at Mt. Huang and Nanjing in the Yangtze River Delta, China: effects of air masses and characteristics of new particle formation [J]. *Atmospheric Research*, 2014, **150**: 42-56.
- [41] Shen L J, Wang H L, Lü S, *et al.* Observation of aerosol size distribution and new particle formation at a coastal city in the Yangtze River Delta, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **565**: 1175-1184.
- [42] Kittelson D B. Engines and nanoparticles: a review [J]. *Journal of Aerosol Science*, 1998, **29**(5-6): 575-588.
- [43] 陆叶强, 陈秋方, 孙在, 等. 汽车排放超细微粒数浓度及粒径谱特征的实验研究 [J]. *环境科学*, 2014, **35**(9): 3309-3314.
Lu Y Q, Chen Q F, Sun Z, *et al.* Ultrafine particle number concentration and size distribution of vehicle exhaust ultrafine particles [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(9): 3309-3314.
- [44] 康汉青, 朱彬, 樊曙先. 南京北郊冬季大气气溶胶及其湿清除特征研究 [J]. *气候与环境研究*, 2009, **14**(5): 523-530.
Kang H Q, Zhu B, Fan S X. Size distributions and wet scavenging properties of winter aerosol particles in north suburb of Nanjing [J]. *Climatic and Environmental Research*, 2009, **14**(5): 523-530.

CONTENTS

Emission Characteristics of Vehicles from National Roads and Provincial Roads in China	WANG Ren-jie, WANG Kun, ZHANG Fan, <i>et al.</i> (3553)
Impact of Gustly Northwesterly Winds on Biological Particles in Winter in Beijing	YAN Wei-zhuo, WANG Bu-ying, Oscar Fajardo Montana, <i>et al.</i> (3561)
Characteristics of Particulate Matter and Carbonaceous Species in Ambient Air at Different Air Quality Levels	FANG Xiao-zhen, WU Lin, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (3569)
Distribution and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particulate Matter and Dust	WANG Yong-xiao, CAO Hong-ying, DENG Ya-jia, <i>et al.</i> (3575)
Observational Study of Air Pollution Complex in Nanjing in June 2014	HAO Jian-qi, GE Bao-zhu, WANG Zi-fa, <i>et al.</i> (3585)
Distribution Characteristics of Air Pollutants and Aerosol Chemical Components Under Different Weather Conditions in Jiaxing	WANG Hong-lei, SHEN Li-juan, TANG Qian, <i>et al.</i> (3594)
Observations of Reactive Nitrogen and Sulfur Compounds During Haze Episodes Using a Demuder-based System	TIAN Shi-li, LIU Xue-jun, PAN Yue-peng, <i>et al.</i> (3605)
Analysis of Anthropogenic Reactive Nitrogen Emissions and Its Features on a Prefecture-level City in Fujian Province	ZHANG Qian-hu, GAO Bing, HUANG Wei, <i>et al.</i> (3610)
Levels, Sources, and Health Risk Assessments of Heavy Metals in Indoor Dust in a College in the Pearl River Delta	CAI Yun-mei, HUANG Han-shu, REN Lu-lu, <i>et al.</i> (3620)
Influence of Noble Metal and Promoter Capacity in CDPF on Particulate Matter Emissions of Diesel Bus	TAN Pi-qiang, ZHONG Yi-mei, ZHENG Yuan-fei, <i>et al.</i> (3628)
Spatial Distribution, Source and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in the Coastal Sediments of Northern Dongying City	LIU Qun-qun, MENG Fan-ping, WANG Fei-fei, <i>et al.</i> (3635)
Remote Sensing of Chlorophyll-a Concentrations in Lake Hongze Using Long Time Series MERIS Observations	LIU Ge, LI Yun-mei, LÜ Heng, <i>et al.</i> (3645)
Analysis of Spatial Variability of Water Quality and Pollution Sources in Lihe River Watershed, Taihu Lake Basin	LIAN Hui-shu, LIU Hong-bin, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (3657)
Distribution of Different Phosphorus Species in Water and Sediments from Gaocun to Lijin Reaches of the Yellow River	ZHAO Tun, JIA Yan-xiang, JIANG Bing-qi, <i>et al.</i> (3666)
Characterization of Phosphorus Fractions in the Soil of Water-Level-Fluctuation Zone and Unflooded Bankside in Pengxi River, Three Gorges Reservoir HUANG Jun-jie, WANG Chao, FANG Bo, <i>et al.</i> (3673)
Distribution of <i>n</i> -alkanes from Lake Wanghu Sediments in Relation to Environmental Changes	SHEN Bei-bei, WU Jing-lu, ZENG Hai-ao, <i>et al.</i> (3682)
Hydrological Performance Assessment of Permeable Parking Lots in High Water Areas	JIN Jian-rong, LI Tian, WANG Sheng-si, <i>et al.</i> (3689)
Analysis of the Characteristics of Groundwater Quality in a Typical Vegetable Field, Northern China	YU Jing, YU Min-da, LAN Yan, <i>et al.</i> (3696)
Composition, Evolution, and Complexation of Dissolved Organic Matter with Heavy Metals in Landfills	XIAO Xiao, HE Xiao-song, XI Bei-dou, <i>et al.</i> (3705)
Correlations Between Substrate Structure and Microbial Community in Subsurface Flow Constructed Wetlands	LI Zhen-ling, DING Yan-li, BAI Shao-yuan, <i>et al.</i> (3713)
Impact of Talc Ore Mining on Periphyton Community Structure and Water Environment	ZANG Xiao-miao, ZHANG Yuan, LIN Jia-ning, <i>et al.</i> (3721)
Physiological Characteristics and Nitrogen and Phosphorus Uptake of <i>Myriophyllum aquaticum</i> Under High Ammonium Conditions	LIU Shao-bo, RAN Bin, ZENG Guan-jun, <i>et al.</i> (3731)
Removal of Algal Organic Matter and Control of Disinfection By-products by Powder Activated Carbon	MIAO Yu, ZHAI Hong-yan, YU Shan-shan, <i>et al.</i> (3738)
Preparation and Pb ²⁺ Electrosorption Characteristics of Graphene Hydrogels Electrode	WANG Yao, JI Qing-hua, LI Yong-feng, <i>et al.</i> (3747)
Influence of Current Densities on Mineralization of Indole by BDD Electrode	ZHANG Jia-wei, WANG Ting, ZHENG Tong, <i>et al.</i> (3755)
Mechanism of Photochemical Degradation of MC-LR by Pyrite	ZHOU Wei, FANG Yan-fen, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (3762)
Enhanced Treatment of Printing and Dyeing Wastewater Using H ₂ O ₂ -Biochemical Method	YUE Xiu, TANG Jia-li, YU Guang-ping, <i>et al.</i> (3769)
Effects of Influent C/N Ratios on Denitrifying Phosphorus Removal Performance Based on ABR-MBR Combined Process	WU Peng, CHENG Chao-yang, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (3781)
Start-up of a High Performance Nitrosation Reactor Through Continuous Growth of Aerobic Granular Sludge	GAO Jun-jun, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (3787)
Activated Sludge Mineralization and Solutions in the Process of Zero-Valent Iron Autotrophic Denitrification	ZHANG Ning-bo, LI Xiang, HUANG Yong, <i>et al.</i> (3793)
Analysis of Respirogram Characteristics of Filamentous Bulking Caused by Low Dissolved Oxygen	MA Zhi-bo, LI Zhi-hua, YANG Cheng-jian, <i>et al.</i> (3801)
Aerobic Degradation and Microbial Community Succession of Coking Wastewater with Municipal Sludge	LIU Guo-xin, WU Hai-zhen, SUN Sheng-li, <i>et al.</i> (3807)
Rapid Culture, Microbial Community Structure, and Diversity of High-Efficiency Denitrifying Bacteria	MENG Ting, YANG Hong (3816)
Abundance of Cell-associated and Cell-free Antibiotic Resistance Genes in Two Wastewater Treatment Systems	ZHANG Yan, CHEN Lü-jun, XIE Hui, <i>et al.</i> (3823)
Effect of Biochar on CH ₄ and N ₂ O Emissions from Lou Soil	ZHOU Feng, XU Chen-yang, WANG Yue-ling, <i>et al.</i> (3831)
Spatial Variability of C-to-N Ratio of Farmland Soil in Jiangxi Province	JIANG Ye-feng, GUO Xi, SUN Kai, <i>et al.</i> (3840)
Influence of Calcium Carbonate and Biochar Addition on Soil Nitrogen Retention in Acidified Vegetable Soil	YU Ying-liang, YANG Lin-zhang, Alfred Oduor Odindo, <i>et al.</i> (3845)
Comparison of Soil Hydraulic Characteristics Under the Conditions of Long-term Land Preparation and Natural Slope in Longtan Catchment of the Loess Hilly Region FENG Tian-jiao, WEI Wei, CHEN Li-ding, <i>et al.</i> (3860)
Effects of Organic Carbon Content on the Residue and Migration of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Soil Profiles FEI Jia-jia, ZHANG Zhi-huan, WAN Tian-tian, <i>et al.</i> (3871)
Major Factors Influencing the Cd Content and Seasonal Dynamics in Different Land Cover Soils in a Typical Acid Rain Region	LIU Xiao-li, ZENG Zhao-xia, TIE Bai-qing, <i>et al.</i> (3882)
Application Potential and Assessment of Metallurgical Contaminated Soil After Remediation in Tongguan of Shaanxi	WANG Jiao, XIAO Ran, LI Rong-hua, <i>et al.</i> (3888)
Effects and Mechanisms of In-situ Cement Solidification/Stabilization on a Pb-, Zn-, and Cd-Contaminated Site at Baiyin, China	LÜ Hao-yang, FEI Yang, WANG Ai-qin, <i>et al.</i> (3897)
Concentrations and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Soils and Vegetables influenced by Facility Cultivation JIN Xiao-pei, JIA Jin-pu, BI Chun-juan, <i>et al.</i> (3907)
Effects of Arbuscular Mycorrhizal Fungi on the Growth and Uptake of La and Pb by Maize Grown in La and Pb-Contaminated Soil	CHANG Qing, GUO Wei, PAN Liang, <i>et al.</i> (3915)
Effects of Straw Incorporation on Cadmium Accumulation and Subcellular Distribution in Rice	DUAN Gui-lan, WANG Fang, CEN Kuang, <i>et al.</i> (3927)
Redox Transformation of Arsenic and Antimony in Soils Mediated by <i>Pantoea</i> sp. IMH ZHANG Lin, LU Jin-suo (3937)
Adsorption Characteristics of Biochar on Heavy Metals (Pb and Zn) in Soil	WANG Hong, XIA Wen, LU Ping, <i>et al.</i> (3944)
Characteristics of <i>Enteromorpha prolifera</i> Biochars and Their Adsorption Performance and Mechanisms for Cr(VI)	CHEN You-yuan, HUI Hong-xia, LU Shuang, <i>et al.</i> (3953)
External Phosphorus Adsorption and Immobility with the Addition of Ignited Water Purification Sludge	YU Sheng-nan, LI Yong, LI Da-peng, <i>et al.</i> (3962)
Preparation of Adsorption Ceramsite Derived from Sludge Biochar	LI Jie, PAN Lan-jia, YU Guang-wei, <i>et al.</i> (3970)
Construction of Graphitic Carbon Nitride-Bismuth Oxide Layered Heterostructures and Their Photocatalytic Antibacterial Performance HUANG Jian-hui, LIN Wen-ting, XIE Li-yan, <i>et al.</i> (3979)