

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.5
第40卷 第5期

目次

2016年10~11月期间北京市大气颗粒物污染特征与传输规律	张晗宇,程水源,姚森,王晓琦,张俊峰(1999)
餐饮排放有机颗粒物的质量浓度、化学组成及排放因子特征	王红丽,景盛翱,乔利平(2010)
泰山顶(1534 m)夏季气溶胶粒径分布特征	沈利娟,王红磊,银燕,陈魁,陈景华,施双双(2019)
郑州-新乡冬季PM _{2.5} 中元素浓度特征及其源分析	闫广轩,张朴真,黄海燕,高雅,张靖雯,宋鑫,张佳羽,李怀刚,曹治国,姜继韶,樊静,王跃思,金彩霞(2027)
我国PM _{2.5} 浓度分阶段改善目标情景分析	贺晋瑜,燕丽,王彦超,雷宇,汪旭颖(2036)
安阳市典型工业源PM _{2.5} 排放特征及减排潜力估算	杜小申,燕丽,贺晋瑜,汪旭颖,王克,张瑞芹(2043)
郑州市典型工业炉窑细颗粒物排放特征及清单	赵庆炎,韩士杰,张铁舜,杨留明,张瑞芹,燕启社(2052)
2015年南京市城区挥发性有机物组成特征及大气反应活性	乔月珍,陈凤,赵秋月,刘倩(2062)
兰州市化石燃料燃烧源排放VOCs的臭氧及二次有机气溶胶生成潜势	刘镇,朱玉凡,郭文凯,刘晓,陈强(2069)
12种常见落叶果树BVOCs排放清单和排放特征	李双江,袁相洋,李琦,冯兆忠(2078)
我国典型陆地生态系统水化学离子特征及空间分布	黄丽,张心昱,袁国富,朱治林,唐新斋,孙晓敏(2086)
我国典型区域地表水环境中抗生素污染现状及其生态风险评价	刘昔,王智,王学雷,李珍,杨超,厉恩华,位慧敏(2094)
我国七大流域水体多环芳烃的分布特征及风险评价	范博,王晓南,黄云,李霖,高祥云,李雯雯,刘征涛(2101)
大连海域入海污染源中PFASs的赋存、输入通量和季节特征	陈虹,韩建波,张灿,程嘉熠(2115)
干旱内陆河流域降水稳定同位素的时空特征及环境意义	袁瑞丰,李宗省,蔡玉琴,邹海明(2122)
柳林泉域岩溶地下水区域演化规律及控制因素	黄奇波,覃小群,刘朋雨,程瑞瑞,李腾芳(2132)
崇左响水地区岩溶地下水主要离子特征及控制因素	周巾枚,蒋忠诚,徐光黎,覃小群,黄奇波,张连凯(2143)
三峡水库水体溶解磷与颗粒磷的输移转化特征分析	秦延文,韩超南,郑丙辉,马迎群,杨晨晨,刘志超,张雷,赵艳民(2152)
三峡水库蓄水至175 m后干流沉积物磷蓄积特征及释放潜力	黎睿,潘婵娟,汤显强,肖尚斌,李青云,杨文俊(2160)
不同水期洞庭湖水体中磷分布特征及影响因素	李莹杰,王丽婧,李虹,欧阳美凤(2170)
巢湖十五里河沉积物磷平衡浓度对外源磷的响应及释放风险	李如忠,鲍琴,戴源(2178)
闽江上游溪流沉积物有机磷空间分布及其环境意义分析	徐健,袁旭音,叶宏萌,张晓辉,周慧华,韩年(2186)
生态工程综合治理系统对农业小流域氮磷污染的治理效应	蒋倩文,刘锋,彭英湘,王华,姚燃,李红芳,罗沛,刘新亮,吴金水(2194)
太湖流域河流沉积物重金属分布及污染评估	张杰,郭西亚,曾野,邓建才(2202)
三峡水库支流汝溪河口水体汞的时空变化特征	马尉斌,陈秋禹,尹德良,孙涛,王永敏,王定勇(2211)
多功能型城市人工湿地水体汞分布特征及其量变分析	刘伟豪,王永敏,樊宇飞,吕东威,王定勇(2219)
不同类型城市人工湿地水体汞的分布特征	樊宇飞,刘伟豪,孙涛,苑萌,吕东威,李先源,王永敏,王定勇(2226)
微塑料对河口沉积物抗生素抗性基因的影响	黄福义,杨凯,张子兴,苏建强,朱永官,张娟(2234)
上海市郊道路地表径流多环芳烃污染特征对比及源解析	吴杰,熊丽君,吴健,沙晨燕,唐浩,林匡飞,李大雁,沈城(2240)
异龙湖不同湖区浮游植物群落特征及其与环境因子的关系	王振方,张玮,杨丽,徐玉萍,赵凤斌,王丽卿(2249)
水库热分层期藻类水华与温跃层厌氧成因分析	刘雪晴,黄廷林,李楠,杨尚业,李扬,徐进,王涵玥(2258)
绿狐尾藻对铜绿微囊藻和羊角月牙藻的抑藻效应	毕业亮,吴诗敏,周思宁,吴尚华,宿辉,白志辉,徐圣君(2265)
紫外/亚硫酸钠还原降解三氯乙酰胺的效能	伏芝萱,郭迎庆,楚文海(2271)
UV降解水溶液中拉法辛的影响因素及机制	吕娟,许志伟,王言(2278)
铝代水铁矿协同吸附砷的机制	黄博,郭朝晖,肖细元,彭驰,朱惠文,史磊,阳安迪(2287)
新型材料磁性氧化铁的除氟效能	方文侃,李小娣,方菁,吴德意(2295)
羧基改性阴极对微生物电合成系统产乙酸性能的影响机制	祁家欣,曾翠平,骆海萍,刘广立,张仁铎,卢耀斌(2302)
基于分区供氧与溶解氧调控的低C/N比污水短程硝化反硝化	吴春雷,荣懿,刘晓鹏,史会欣,章武首,金鹏康,马文伟(2310)
不同COD浓度下低基质厌氧氨氧化的启动特征	马艳红,赵智超,安芳娇,黄利,师晓娟,慕浩,陈永志(2317)
15℃SBBR短程硝化快速启动和稳定运行性能	孙艺齐,卞伟,李军,赵青,王文啸,梁东博,吴耀东(2326)
长期低聚磷条件对AO-SBR系统Accumulibacter代谢特性的影响	王少坡,李柱,赵乐丹,于静洁,赵明,郑胜达,孙力平(2333)
厌氧氨氧化颗粒污泥EPS及其对污泥表面特性的影响	杨明明,刘子涵,周杨,祁菁,赵凡,郭劲松,方芳(2341)
HN-AD菌生物强化接触氧化工艺处理猪场沼液	刘向阳,张千,吴恒,李宸,唐健泓,封丽,肖芃颖,赵天涛(2349)
温度对自养型同步脱氮工艺处理猪场废水厌氧消化液性能及微生物群落的影响	黄方玉,邓良伟,杨红男,杨含,肖友乾,王兰(2357)
城市污水处理系统真核微生物群落特性与地域性差异	秦文韬,张冰,孙晨翔,陈湛,文湘华(2368)
三江平原湿地开垦对土壤微生物群落结构的影响	王娜,高婕,魏静,刘颖,庄绪亮,庄国强(2375)
亚高山湖群中真菌群落的分布格局和多样性维持机制	刘晋仙,李鑫,罗正明,王雪,暴家兵,柴宝峰(2382)
生物质炭对双季稻田土壤反硝化功能微生物的影响	刘杰云,邱虎森,王聪,沈健林,吴金水(2394)
地膜覆盖和施肥对菜地CH ₄ 排放的影响	倪雪,江长胜,陈世杰,李晓茜,石孝均,郝庆菊(2404)
亏缺灌溉对冬小麦农田温室气体排放的影响	王晓云,蔡焕杰,李亮,徐家屯,陈慧(2413)
不同施肥模式对热区晚稻田CH ₄ 和N ₂ O排放的影响	田伟,伍延正,汤水荣,胡玉麟,赖倩倩,文冬妮,孟磊,吴川德(2426)
周期性变温对紫色土有机碳矿化的影响	曾蔓蔓,慈恩,樊晶晶,李江文,翁吴璐,李松(2435)
广西高镉异常区水田土壤Cd含量特征及生态风险评价	宋波,王佛鹏,周浪,吴勇,庞瑞,陈同斌(2443)
超富集植物藿香薹(Ageratum conyzoides L.)对镉污染农田的修复潜力	张云霞,宋波,宾娟,周子阳,陈记玲,陈同斌(2453)
种植油菜麦评价多环芳烃污染土壤的农用风险	焦海华,郭佳佳,张婧旻,张晓霞,茹文明,白志辉(2460)
土壤重金属累积对土地利用与景观格局的响应	舒心,李艳,李锋,冯靖仪,沈嘉瑜,史舟(2471)
某区生活垃圾焚烧发电厂周边及厂区内土壤中重金属元素的污染特征及评价	吕占禄,张金良,陆少游,邹天森,刘凯,张晗,谷亚亚(2483)
《环境科学》征订启事(2018)	《环境科学》征稿简则(2042)
信息(2114, 2348, 2393)	

2016年10~11月期间北京市大气颗粒物污染特征与传输规律

张晗宇, 程水源*, 姚森, 王晓琦, 张俊峰

(北京工业大学环境与能源工程学院, 区域大气复合污染防治北京市重点实验室, 北京 100124)

摘要: 本研究采用气溶胶化学组分在线监测仪(ACSM)对北京地区2016年10月15日~11月15日期间非难溶性 PM_{10} (NR- PM_{10})化学组分进行实时连续在线观测, 探讨了NR- PM_{10} 化学组分的演变特征; 运用潜在源贡献分析(PSCF)法和气象-空气质量模式(WRF-CAMx)识别了北京 $\text{PM}_{2.5}$ 潜在污染源区和传输路径, 揭示了 $\text{PM}_{2.5}$ 净传输通量的垂直分布特征。结果表明, 北京秋季NR- PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度分别为 $(59.16 \pm 57.05) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(89.82 \pm 66.66) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 其中NR- PM_{10} 平均占 $\text{PM}_{2.5}$ 的 $(70.31 \pm 22.28)\%$ 。整个观测期间, 有机物(Org)、硝酸盐(NO_3^-)、硫酸盐(SO_4^{2-})、铵盐(NH_4^+)和氯化物(Chl)分别占NR- PM_{10} 总质量浓度的 $(42.75 \pm 11.35)\%$ 、 $(21.27 \pm 7.72)\%$ 、 $(19.11 \pm 7.08)\%$ 、 $(12.19 \pm 2.64)\%$ 和 $(4.68 \pm 3.24)\%$, 不同化学组分的日变化特征存在明显差异。对北京秋季NR- PM_{10} 污染影响较大的潜在源区主要集中在河北南部、河南东北部及山东西部, 重污染期间保定、北京南部及廊坊等城市对NR- PM_{10} 贡献较大。WRF-CAMx模拟结果表明, $\text{PM}_{2.5}$ 总的净传输通量呈现出显著的垂直分布特征。整个观测期间, 毗邻城市主要向北京输入 $\text{PM}_{2.5}$, 净通量最大出现在海拔600~1000 m; 而重污染前期外来源输送 $\text{PM}_{2.5}$ 主要位于高空, 直到污染最严重的11月5日, $\text{PM}_{2.5}$ 转为近地面传输, 说明高空和近地面传输是影响北京秋季 $\text{PM}_{2.5}$ 重污染形成的重要因素。同时鉴别出了两种传输路径, 即西南-东北方向(保定→北京→承德)和西北-东南方向(张家口→北京→廊坊北→天津)。

关键词: 气溶胶化学组分在线监测仪(ACSM); 非难溶性 PM_{10} (NR- PM_{10}); 化学组分; 潜在源贡献分析(PSCF)法; 气象-空气质量模式(WRF-CAMx); $\text{PM}_{2.5}$ 传输通量

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)05-1999-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.201810228

Pollution Characteristics and Regional Transport of Atmospheric Particulate Matter in Beijing from October to November, 2016

ZHANG Han-yu, CHENG Shui-yuan*, YAO Sen, WANG Xiao-qi, ZHANG Jun-feng

(Key Laboratory of Beijing on Regional Air Pollution Control, College of Environmental and Energy Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China)

Abstract: In this study, the Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) was used to conduct real-time and continuous comprehensive observation of chemical components in non-refractory submicron aerosols (NR- PM_{10}) from October 15 to November 15, 2016. In addition to that, the evolution characteristics of NR- PM_{10} chemical components were discussed. The potential source contribution function (PSCF) method and a meteorology-air quality coupling model system (WRF-CAMx) were applied to identify the potential $\text{PM}_{2.5}$ emission sources and transport path in Beijing, and the vertical distribution characteristics of $\text{PM}_{2.5}$ net transport flux. The results indicate that the monthly average mass concentrations of NR- PM_{10} and $\text{PM}_{2.5}$ were $(59.16 \pm 57.05) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ and $(89.82 \pm 66.66) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, respectively. On average, NR- PM_{10} accounted for $(70.31 \pm 22.28)\%$ of $\text{PM}_{2.5}$. During the whole study period, Org, NO_3^- , SO_4^{2-} , NH_4^+ , and Chl represented $(42.75 \pm 11.35)\%$, $(21.27 \pm 7.72)\%$, $(19.11 \pm 7.08)\%$, $(12.19 \pm 2.64)\%$, and $(4.68 \pm 3.24)\%$ of NR- PM_{10} , respectively. The diurnal variation characteristics of different chemical components were disparate. The high potential source areas were mainly located in southern Hebei, northeastern Henan, and western Shandong provinces during the whole study period. During the haze episode, the potential regions of higher contribution were concentrated in Baoding, southern Beijing, and Langfang. The simulation results of WRF-CAMx showed that the vertical distribution characteristics of $\text{PM}_{2.5}$ net flux varied with different altitudes. The adjacent cities mainly export $\text{PM}_{2.5}$ to Beijing, and the $\text{PM}_{2.5}$ net fluxes mainly occurred at 600-800 m during the whole study period. $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing from external sources mainly occurred in high altitudes during the early stage of the heavy pollution episode. Then it turned to near-ground transport until November 5, when the pollution was the most severe. This indicated that high-altitude and near-ground transport both played an essential role in the formation of heavy $\text{PM}_{2.5}$ pollution in Beijing during the autumn. Moreover, two important transport pathways were identified: the southwest-northeast pathway (Baoding → Beijing → Chengde) and the northwest-southeast pathway (Zhangjiakou → Beijing → Langfang-south → Tianjin).

Key words: Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM); non-refractory submicron aerosols (NR- PM_{10}); chemical components; potential source contribution function (PSCF) method; meteorology-air quality coupling model system (WRF-CAMx); $\text{PM}_{2.5}$ transport flux

收稿日期: 2018-10-29; 修订日期: 2018-11-28

基金项目: 国家重点研发计划项目(2018YFC0213206); 国家自然科学基金项目(91544232, 51638001); 北京市科技计划项目(Z181100005418017)

作者简介: 张晗宇(1991~), 男, 博士, 主要研究方向为环境规划管理与污染防治, E-mail: zhy2016@emails.bjut.edu.cn

* 通信作者, E-mail: bjutpaper@gmail.com

近年来,伴随着我国大城市经济高速提升、能源消耗增长以及城镇化和工业化的发展,导致以高浓度大气颗粒物(PM)为主要特征的霾污染天气频繁发生^[1]. 高浓度的PM不仅会降低大气能见度,影响公共交通^[2],增加人类心血管疾病和呼吸系统的发病率^[3],还会影响全球气候^[4]. PM_{2.5}具有典型的区域性、复合型污染特征^[5],因此深入研究其污染特征与跨区域传输规律,是控制PM_{2.5}污染的有效途径.

北京地处华北平原、太行山脉和燕山山脉的交界处,是我国的政治、经济、文化和国际交流中心,同时也是我国大气污染较为严重的地区之一. 中华人民共和国生态环境部公布:2015和2016年北京PM_{2.5}年均质量浓度分别为81 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和73 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,是国家PM_{2.5}年均二级标准(35 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)的2.31倍和2.09倍. PM₁是PM_{2.5}中重要组成部分^[6],由于其粒径更小,比表面积更大,对人类健康影响更严重,成为了当前研究的新焦点. 许多学者围绕PM₁的理化特征、来源解析、气象影响要素等进行了大量的分析^[6,7],同时也采用了CAMx-PSAT (comprehensive air quality model with extensions-particulate source apportionment technology)^[8]、WRF-Chem (weather research and forecasting model coupled to chemistry)^[9]、后向轨迹模型^[10]、潜在源贡献分析(PSCF)法^[11]对PM_{2.5}传输规律开展了深入研究. 然而尚缺乏对北京市PM₁及其化学组分进行长时间连续观测,关于重污染日与非重污染理化特征研究仍存在不足. 此外,针对PM_{2.5}的来源分析多局限于近地面传输影响,而关于PM₁的传输规律更有待进一步探讨. 因此,本研究采用气溶胶化学组分在线监测仪(ACSM),对北京市2016年10月15日至11月15日期间大气中难溶性PM₁(NR-PM₁)的化学组分进行连续在线监测,对比分析了重污染日、清洁日和整个监测时段NR-PM₁及其化学组分的演变特征;同时采用PSCF模型识别了整个观测时段和一次重污染过程NR-PM₁及其化学组分污染的潜在源区,采用WRF-CAMx耦合模型定量分析了北京与其接壤区域边界处垂直方向上不同海拔高度PM_{2.5}的传输通量特征,以期为我国区域联防联控提供有效地科技支撑.

1 材料与方法

1.1 采样点和数据采集

本研究观测地点位于北京工业大学环能楼楼顶(39.87°N, 116.48°E),距地面约20 m. 周边为居民区、商业区和道路交通,无明显局地排放源和高

大建筑物遮挡. 采样时间为2016年10月15日至11月15日,运用ACSM对NR-PM₁的5种化学组分,包括有机物(Org)、硫酸盐(SO₄²⁻)、硝酸盐(NO₃⁻)、铵盐(NH₄⁺)以及氯化物(Chl)的质量浓度进行实时在线测定,时间分辨率为15 min. 考虑到北京农展馆周边污染源与北京工业大学相同,并且两者相聚7 km,因此本研究中2.1节涉及到的PM_{2.5}、SO₂、NO₂、CO和O₃等监测数据采用北京市空气质量发布平台中的国控站点——农展馆污染物小时分辨率数据. 温度、风速、风向、相对湿度来自中国气象局发布的气象观测数据. 后向轨迹模式采用的气象资料来自NCEP(美国国家环境预报中心)提供的全球资料同化系统(GDAS)数据.

1.2 仪器介绍与数据分析

ACSM主要包括粒子进样系统、气化和离子化系统、粒子化学组分检测三部分,其原理简单来讲即粒径约为40~1000 μm 的粒子通过前端的空气动力透镜后汇聚成较窄的粒子束,粒子束通过真空腔室到达检测室,随后非耐火性颗粒物的化学组分在600℃高温条件下瞬间气化,并通过70 eV的轰击源(钨丝)发射电子进行离子化,产生的带正电荷的碎片离子随后进入四级残气分析仪进行检测与定量,从而实现Org、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺和Chl的选取与测定^[12].

气溶胶质谱数据处理采用ACSM内嵌的标准数据处理软件(Wavemetrics Igor ProTM, version 1.5.2.0.0)进行处理与分析. 为了获取准确的质量浓度,需要对化学组分进行捕集效率(CE)校正. CE主要受气化器表面未气化的粒子即反弹粒子(Eb)的影响,而Eb主要受颗粒物的酸度、含水量以及化学组分影响,尤其是硝酸铵的含量. 研究表明CE=0.5基本能够保证化学组分质量浓度测量的不确定性在20%以内,本文采用关系式CE=Max(0.45, 0.0833 + 0.9167 × ANMF)来校正CE^[13],其中ANMF代表硝酸铵的质量分数,Max代表两者中的最大值. 此外,离子传输效率(TE)是影响ACSM定量的另一个重要因素. 超过一定的质荷比(m/z)之后,四级残气分析仪的TE随 m/z 的增加而迅速降低,详见文献[14]的介绍. 为实现从信号到质量浓度的转化,需采用NH₄NO₃对ACSM开展离子化效率(IE)标定^[15]. 本研究NH₄⁺的相对离子化效率(RIEs)为6.5,其他化学组分采用ACSM的默认值,即NO₃⁻为1.1,SO₄²⁻为1.2,Chl为1.3,Org为1.4. 同时,本研究计算获得的平均值均采用(平均值±标准偏差)的方式表示,如大气颗粒物及其化学组分浓度、气态前体物浓度、NR-

PM₁/PM_{2.5} 百分比及组分所占百分比等, 标准偏差的计算公式如下:

$$\theta = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (X_i - X)^2}{n - 1}}$$

(1)

式中, θ 代表标准偏差(无量纲), i 代表样品编号(无量纲), n 代表样本总数(个), X_i 代表第 i 个样本($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 或%), X 代表所有样本的平均值($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 或%).

1.3 PSCF 法介绍

本研究采用后向轨迹 HYSPLIT 模式^[16]对北京地区整个观测期间和一次重污染天气的气团来源及轨迹变化进行分析, 选取 100 m 高度对研究区域每小时气团移动的 72 h 后向轨迹进行模拟计算. PSCF 法^[17]可以结合气团轨迹和污染物阈值来确定潜在污染源的可能区域. 在计算过程中, 潜在源区被分成多个分辨率为 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ 的 $i \times j$ 的网格, 目标区域范围介于 $80^\circ \sim 125^\circ\text{E}$ 和 $20^\circ \sim 55^\circ\text{N}$. 计算公式如下^[17]:

$$\text{PSCF}_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}} \cdot W(n_{ij})$$

(2)

$$W(n_{ij}) = \begin{cases} 1.00 & 80 < n_{ij} \\ 0.70 & 20 < n_{ij} \leq 80 \\ 0.42 & 10 < n_{ij} \leq 20 \\ 0.05 & n_{ij} \leq 10 \end{cases}$$

(3)

式中, PSCF_{ij} 代表潜在源区贡献(无量纲), m_{ij} 代表经过网格 (i, j) 的轨迹数(条), n_{ij} 代表总轨迹数(条), $W(n_{ij})$ 代表网格权重系数(无量纲), 目的是避免 n_{ij} 较小的网格出现 PSCF_{ij} 高值.

1.4 模型设置与传输通量计算

空气质量模拟采用美国 ENVIRON 公司在 UAM-V 模式基础上开发的 CAMx v6.3.0 模式, 气象场模拟采用 WRF v3.5.1 模式, 用来开展 PM_{2.5} 浓度的时空变化特征研究以及跨界传输通量的计算. 两种模型在模拟区域内垂直方向共设置 28 层, 其对应的 δ 坐标分别为 1.000、0.994、0.988、0.981、0.969、0.956、0.944、0.926、0.902、0.881、0.852、0.828、0.796、0.754、0.704、0.648、0.589、0.546、0.495、0.445、0.387、0.287、0.187、0.136、0.091、0.061、0.020 和 0.000. 模拟时段为 2016 年 10 月 15 日至 11 月 15 日, 模拟时间间隔为 1 h; CAMx 模拟区域采用 Lambert 投影坐标系, 设置两层嵌套网格(图 1), 分辨率为 $36\text{ km} \times 36\text{ km}$, $12\text{ km} \times 12\text{ km}$; 中心经纬度坐标为 116.47°E , 45.00°N . 外层(Domain1)覆盖中国东部和中部大部分区域, 内层(Domain2)覆盖京津冀地区、山东、山西、河南以及部分内蒙古、辽宁、陕西、湖北、安徽、江苏、浙江和上海地区. 输入 WRF 中的初始背景边界条件采用美国国家环境预报中心(NCEP)提供的 $6\text{ h } 1^\circ \times 1^\circ$ 分辨率的全球对流层 FNL 数据集. 京津冀区域范围内采用本研究团队通过自下而上的方法建立的高分辨率大气污染源排放清单^[18], 京津冀区域外采用清华大学 MEIC 排放清单(<http://www.meicmodel.org/>), 包含的物种有 SO₂、CO、NO_x、NH₃、VOCs、PM_{2.5}、PM₁₀ 等. 此外, 本研究基于北京、承德、石家庄以及保定空气质量发布平台公布的 PM_{2.5} 监测数据以及各气象站点的气温(T2)、相对湿度(RH)和风速(WS)等气象数据, 参考 EPA (Environmental Protection

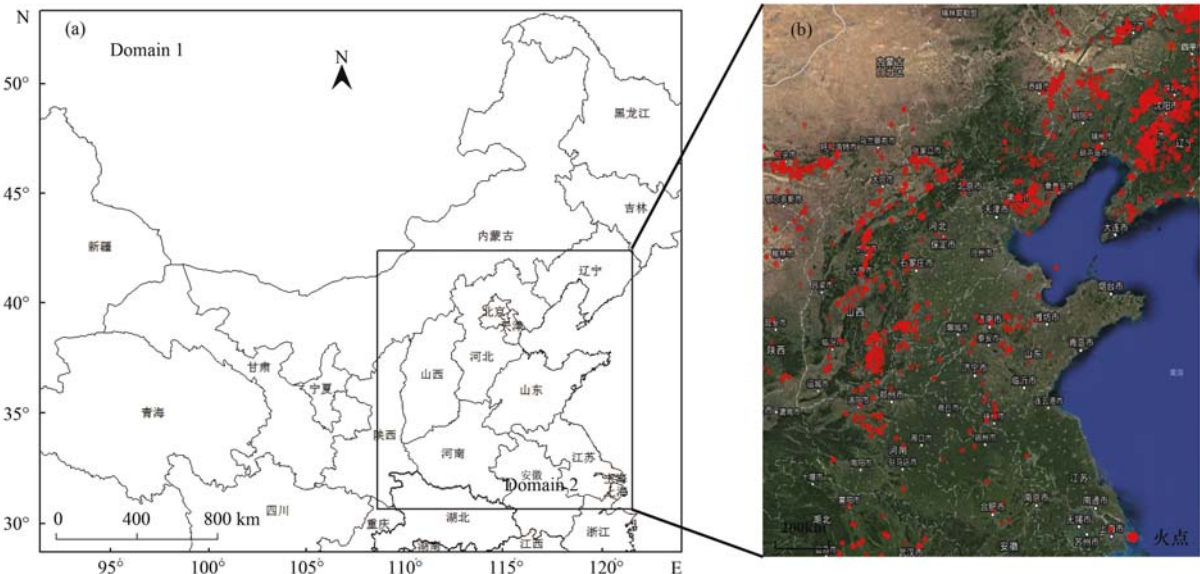


图 1 CAMx 模型双重嵌套区域及火点分布示意

Fig. 1 Modeling domains in the CAMx model and the distribution of emission points during the study period

Agency) 评价标准, 引入标准化平均偏差(NMB)、标准化平均误差(NME)和相关系数(COR)等3个统计指标^[19], 验证模式模拟的性能.

PM_{2.5}传输通量是指在特定时间内通过某一垂直截面上PM_{2.5}的质量^[20]. 本文采用WRF-CAMx模型模拟研究区域内的气象场与空气质量, 并在垂直方向上设置成相同的层数(28层), 将垂直截面离散化为多个网格单元, 选取地表以上10层高度(约1300 m)作为垂直空间传输通量研究范围, 通过提取北京接壤区域对应高度层PM_{2.5}浓度和风场, 研究1300 m以内不同海拔高度PM_{2.5}传输通量的垂直分布特征. 传输通量计算如下:

$$\text{Flux} = \sum_{k=1}^h \sum_l L \cdot H_k \cdot c \cdot v \cdot n \cdot 8.64 \times 10^{-8} \quad (4)$$

式中, Flux为PM_{2.5}传输通量(t·d⁻¹), h 为垂直方向研究的最高层, l 为两个毗邻城市的边界线(无量纲), L 为模拟网格分辨率(km), H_k 为在 k 和 $k+1$ 层之间的高度差(m), c 为PM_{2.5}浓度($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), v 为风向(°)和风速($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), n 为通过垂直截面的法向量(无量纲). 本研究将北京作为目标城市, 所有行政边界线上与北京接壤的城市作为研究城市, 包括保定、廊坊(南)、廊坊(北)、天津、承德和张家口. PM_{2.5}从周边城市传输至北京的通量为正值, 即流入通量; PM_{2.5}从北京传输到周边城市的通量为负值, 即流出通量; 流入通量与流出通量的矢量和代表PM_{2.5}净传输通量.

2 结果与讨论

2.1 大气颗粒物浓度变化特征

图2展示了观测期间NR-PM₁及各化学组分浓度、PM_{2.5}及气态前体物浓度及气象要素的逐日变化情况. 整个观测期间, PM_{2.5}的平均质量浓度为(89.82 ± 66.66) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 超过我国环境空气质量标准(GB 3095-2012)的日均质量浓度限值(75 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)的天数为14d, 超标率高达43.75%, 说明在秋高气爽的秋季北京地区的空气质量仍不容乐观. NR-PM₁与PM_{2.5}的演变趋势基本一致, 二者的相关性高达0.96. NR-PM₁/PM_{2.5}平均值为(70.31 ± 22.28)%, 表明NR-PM₁是PM_{2.5}的重要组成部分. NR-PM₁平均质量浓度为(59.16 ± 57.05) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 高于Hu等^[21]在2012年秋季观测获取的北京NR-PM₁的质量浓度. 同时, 与其他国家和地区相比, 本研究观测到的NR-PM₁是长江三角洲地区^[22]和珠江三角洲地区^[23]浓度的2倍左右, 是美

国和欧洲等^[24]大城市浓度的2~10倍. 根据中分辨率卫星高温点分布(<http://satsee.radi.ac.cn:8080/index.html>)可知; 秋季北京及周边省市火点分布较为密集, 因此可以推断北京秋季大气颗粒物污染可能是由于露天大面积焚烧农作物残余(如: 秸秆燃烧)造成大量污染物排放.

本研究期间, NR-PM₁质量浓度呈显著的锯齿型变化, 小时浓度浮动范围介于1.70~241.78 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间, 既经历了高浓度NR-PM₁的重污染时段(NR-PM₁ ≥ 120 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), 也展示了多个低浓度NR-PM₁的清洁时段(NR-PM₁ ≤ 20 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). 如图2(h)~2(j)所示, 重污染时段NR-PM₁的平均浓度为(174.58 ± 34.15) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 是整个观测时段浓度的近3倍, 在PM_{2.5}中的比例显著升高至(82.70 ± 15.27)%; 清洁时段NR-PM₁的平均浓度为(9.91 ± 5.34) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 远低于整个时段浓度水平, 在PM_{2.5}中的比例也降低至(68.76 ± 38.77)%. 有研究表明^[25], 在排放源不变的条件下, 气象条件是影响区域大气污染的主导因素. 例如, 重污染时段呈现出较为稳定的气象条件, 伴随着风速较低(< 1.5 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)、主导风向为偏南风以及较高的相对湿度($> 85\%$); 相反, 清洁时段风速较大(> 3.7 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)、主导风向为偏北风以及较低的相对湿度($< 50\%$). 通过分析气态前体物发现, 重污染时段NO₂、SO₂和CO平均质量浓度为(90.23 ± 20.21) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、(9.89 ± 4.95) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和(2.80 ± 0.71) $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$, 远高于清洁时段[对应值: (34.93 ± 16.73) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、(3.85 ± 2.99) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和(0.54 ± 0.29) $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$]. 整个观测期间, NR-PM₁与NO₂、NR-PM₁与CO之间的相关性均高于0.75, 并且重污染时段NO₂和CO的质量浓度高达(90.23 ± 20.21) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和(2.80 ± 0.71) $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$, 表明NO₂和CO等气态前体物对北京市重污染期间NR-PM₁的形成密切相关.

2.2 NR-PM₁化学组分分析

如图2(f)所示, 整个观测期间NR-PM₁各化学组分质量浓度变化剧烈. 总体来看, Org、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺和Chl小时平均浓度为(22.16 ± 19.43)、(12.02 ± 14.58)、(14.14 ± 14.45)、(7.82 ± 7.99)和(3.03 ± 3.37) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 图2(h)为整个观测时段各组分在NR-PM₁中占比情况, 表明Org贡献比例最高, 平均达到(42.75 ± 11.35)%, 可能是由于华北平原及周边地区是秸秆燃烧聚集区, 燃烧过程会产生大量的有机物^[26]. 同时还发现, 二次水溶性离子(SIA, NO₃⁻ + SO₄²⁻ + NH₄⁺)也

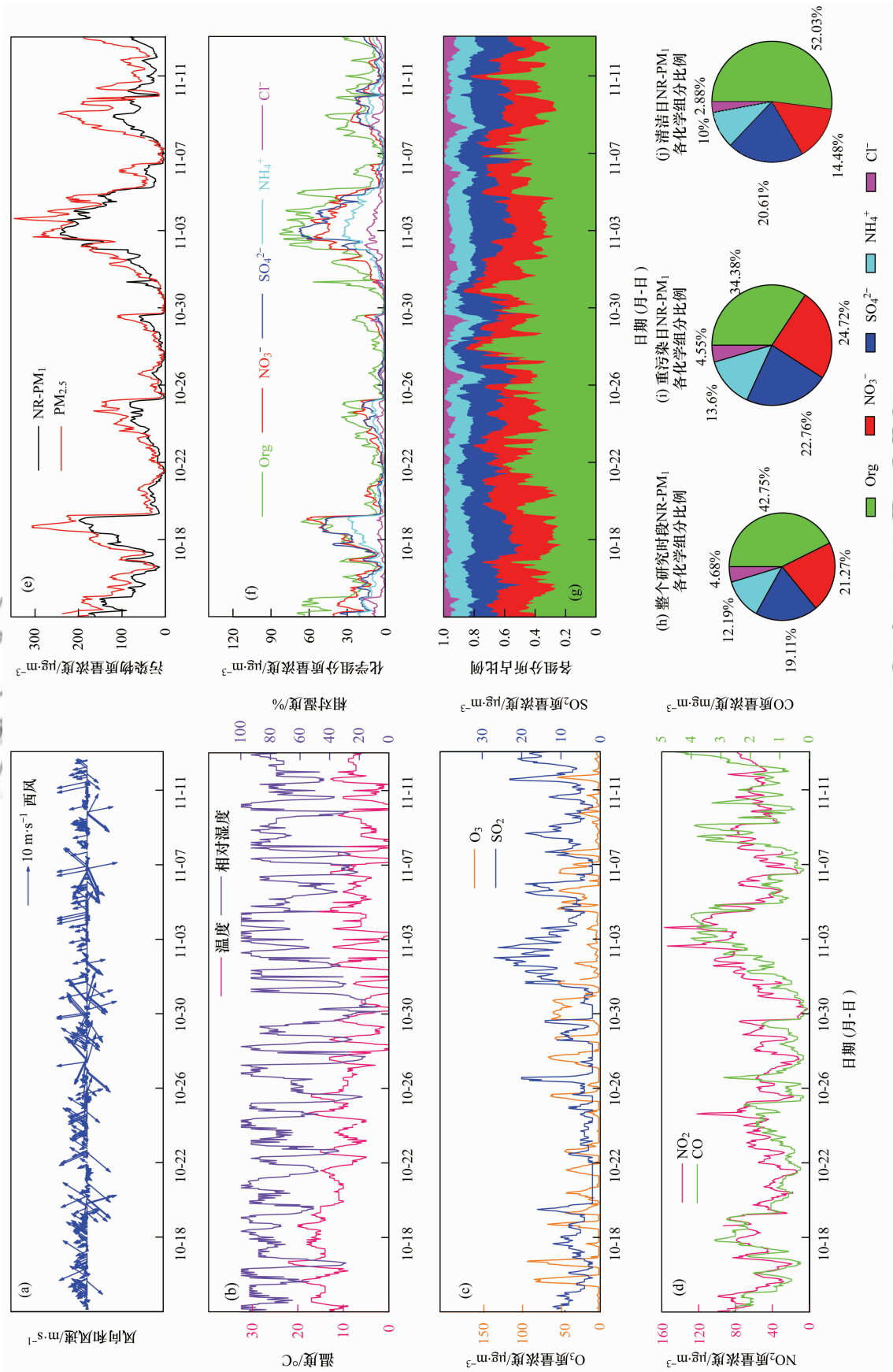


图 2 整个观测期间气象与污染物各要素变化的时间序列

Fig. 2 Time series of various meteorological factors and pollutants during the observation period

是 NR-PM₁ 的主要化学组分, 主要包括 NO₃⁻、SO₄²⁻ 和 NH₄⁺; 其中 NO₃⁻ 占比最高, 达 (21.27 ± 7.72)%, 其次为 SO₄²⁻ 和 NH₄⁺, 所占比例分别为 (19.11 ± 7.08)% 和 (12.19 ± 2.64)%. 在监测出 NR-PM₁ 的 5 种化学组分中, Chl 占比最低, 平均为 (4.68 ± 3.24)%. 研究发现 Chl 与 NH₄⁺ 之间的相关性高达 0.83, 表明 NH₄⁺ 可与 Chl 反应形成 NH₄Cl.

此外, NR-PM₁ 中的化学组分贡献比例在重污染日[图 2(i)]和清洁日[图 2(j)]也有显著的差异, 重污染时段 SIA 对 NR-PM₁ 贡献高达 61.07%, Org 贡献 34.38%; 相比之下, 清洁时段 Org 对 NR-PM₁ 贡献最大, 高达 52.03%, SIA 贡献值为 45.09%. 这表明 SIA 对重污染的形成发挥着主导作用. 而 Chl 在不同的研究时段对 NR-PM₁ 的贡献比例变化较小. 经计算, 整个时段 SIA 与相对湿度的相关性达到 0.67, 与 O_x (NO₂ + O₃) 相关性高达 0.78, 表明大气中液相反应和光化学氧化反应可有效促进 SIA 的形成, 并且光化学氧化反应对 SIA 的影响更大. 研究表明^[27], NO₃⁻ 和 SO₄²⁻ 的质量浓度比可有效反映固定源和移动源对 PM 的相对重要性. 研究时段, NO₃⁻/SO₄²⁻ 日均值为 1.33 ± 0.48, 表明北京秋季机动车排放较固定源排放对 NR-PM₁ 贡献更明显, 这与北京市环保局 2018 年最新公布的 PM_{2.5} 来源解析结果相一致 (<http://www.bjepb.gov.cn/>).

受气溶胶前体物、气象条件、排放源以及光化学反应能力等多方面的影响, 北京秋季 NR-PM₁ 中不同化学组分的日变化特征有所不同(图 3). Org 表现出明显的双峰型日变化特征, 从凌晨 00:00 开始浓度持续下降, 直至中午 (12:00 ~ 13:00) 浓度回升, 达到第一个峰值, 随后浓度有所下降, 在 15:00 之后浓度又持续上升, 并在傍晚 20:00 前后达到第二个峰值. 这两个峰值恰好对应人们的用餐时间, 可能与北京餐馆烹饪排放有关. 此外, Org 和 CO 的日变化趋势较为一致, 并且第二个峰值与交通晚高峰出现时间一致, 进一步揭示了机动车尾气对 NR-PM₁ 的影响. 以上研究结果与 Xu 等^[28] 的研究结果一致. 此外, 下午较高的边界层高度和较大的风速也为有机气溶胶提供了有利的扩散条件^[28]. 与 Org 相比, NO₃⁻ 表现出完全不同的日变化特征. NO₃⁻ 浓度从早上 07:00 开始随着交通早高峰排放以及光化学反应的增强, 呈现出浓度逐渐增加的趋势, 在中午达到峰值之后略有下降, 但夜间仍保持较高的浓度水平, 这可能是由于夜间的非均相反应促进了 NO₃⁻ 浓度保持较高水平. 通常来讲, 中午较高的气

温会因硝酸盐的挥发而浓度降低, 而本研究中 NO₃⁻ 在中午达到浓度顶峰, 这表明午间较强的光化学反应可能是驱动硝酸盐形成的主要反应机制. 与 Org 和 NO₃⁻ 不同, SO₄²⁻ 的日变化较为平坦, 表明硫酸盐区域传输的特性. 从图 3(a) 可以明显发现, SO₄²⁻ 浓度从早晨 06:00 开始总体呈现持续上升的趋势, 直至傍晚 18:00 达到最高值, 并保持较高的浓度水平, 表明白天发生的光化学反应对 SO₄²⁻ 的形成发挥着重要的作用. NH₄⁺ 在 NR-PM₁ 中主要以 (NH₄)₂SO₄、NH₄NO₃ 和 NH₄Cl 的形式存在, 并且 NH₄⁺ 与 NO₃⁻ 和 SO₄²⁻ 的相关性均高于 0.87. 因此可以发现 NH₄⁺ 的日变化特征充分结合了 NO₃⁻ 和 SO₄²⁻ 二者的日变化特征. Chl 是 5 种化学组分中浓度最低的, 但仍呈现出明显的日变化特征. Chl 浓度从早上 07:00 开始持续降低, 直至下午 15:00 降至最低值, 之后浓度持续升高, 在晚上 21:00 达到峰值.

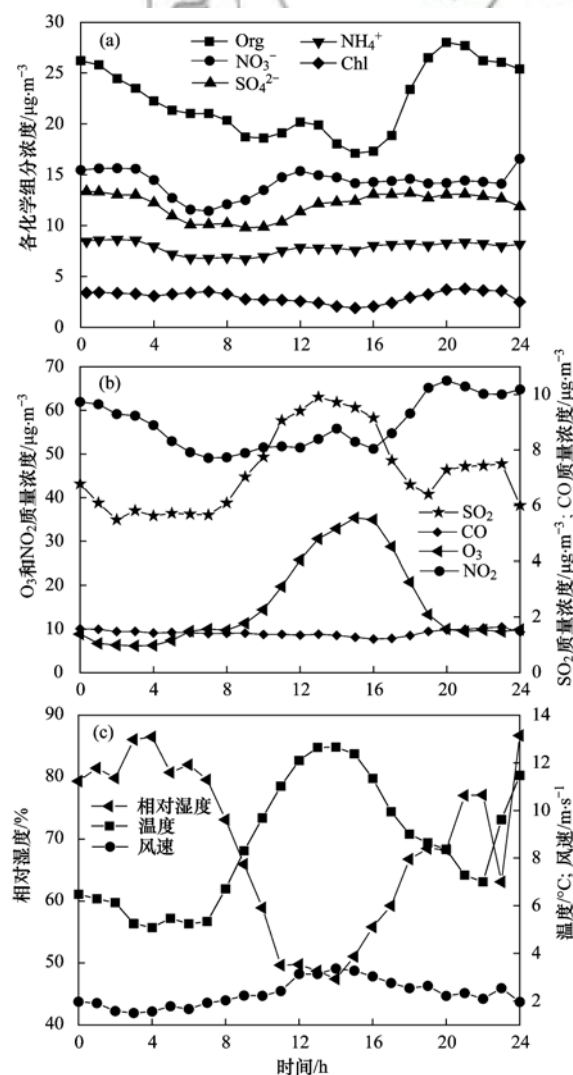


图 3 整个观测期间化学组分、气态前体物气象要素的日变化特征

Fig. 3 Diurnal variations of chemical species, gaseous pollutants and meteorological parameters during the study period

2.3 PSCF 分析

本研究采用 PSCF 方法对影响北京地区 $\text{PM}_{2.5}$ 潜在污染源区和传输路径展开分析. 通过对目标区域进行网格化处理, 并利用公式(2)和(3)对网格化的 PSCF 值进行权重分析, 研究得到了北京地区整个观测时段和一次重污染时段(11 月 2 ~ 5 日)NR- PM_{10} 的潜在污染区域和传输路径, 如图 4 和 5 所示.

由图 4 可知, NR- PM_{10} 与其化学组分的 PSCF 值空间分布较为相似. 在北京西南和东南输送通道附近, NR- PM_{10} 及其化学组分的 PSCF 值多数高于

0.6, PSCF 高值主要集中在河北南部地区(如保定、石家庄、沧州、衡水、邯郸)、河南东北部地区、山东西部地区, 上述区域人口密集、工业水平发达、污染物排放量大^[29], 因此在传输的效应下对北京地区空气质量的影响较大, 这与王燕丽等^[30]的研究结果保持一致. 此外, 我国西北地区对北京 NR- PM_{10} 污染也有一定贡献, 主要包括内蒙古自治区、山西、陕西以及新疆东北部地区, 其 PSCF 值一般低于 0.4. 以上研究结果表明北京秋季 NR- PM_{10} 污染受本地排放和外来源传输的共同影响.

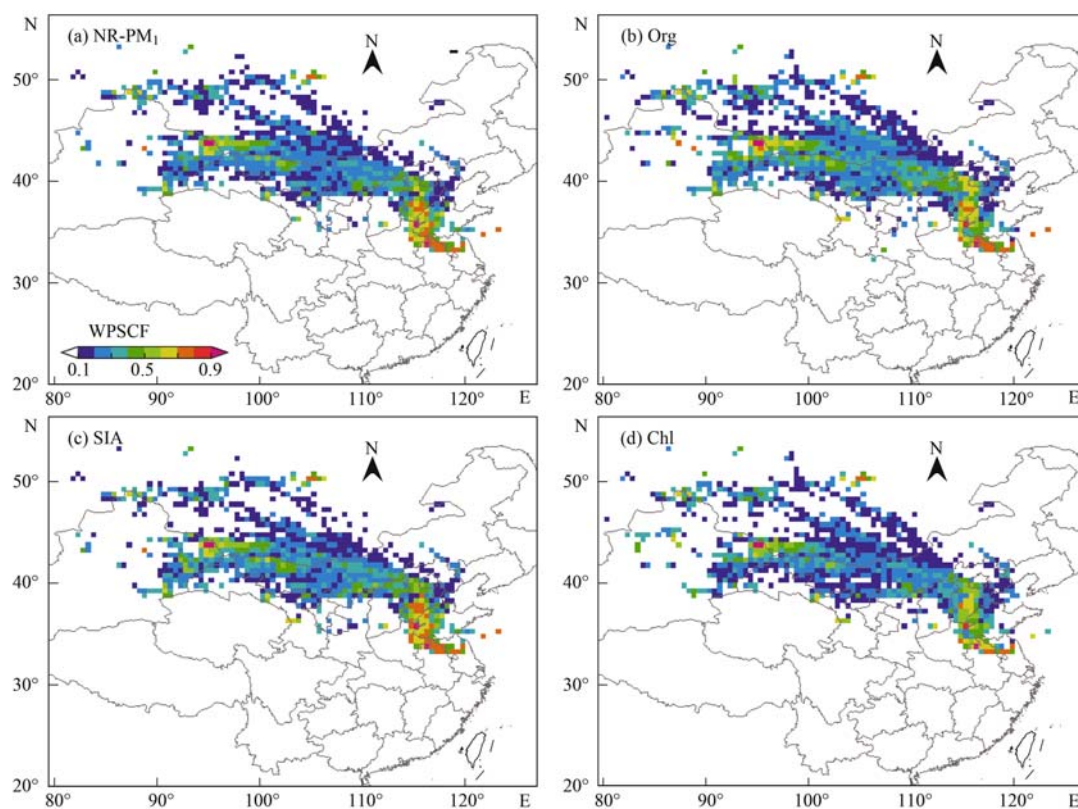


图 4 整个研究期间北京 NR- PM_{10} 及其化学组分的 PSCF 分布

Fig. 4 PSCF map for NR- PM_{10} and its chemical components in Beijing during the study period

图 5 表明, 此次重污染期间北京 NR- PM_{10} 及其各化学组分较大 PSCF 值主要集中在北京市周边城市, 其中保定、北京南部和廊坊较高, 这些地区 PSCF 值均在 0.6 以上; 西北延伸至内蒙古地区贡献较小, PSCF 值低于 0.5. Org、 NO_3^- 和 NH_4^+ 和 Chl 的 PSCF 值空间分布较为一致, 而 SO_4^{2-} 的 PSCF 值分布较其它组分有明显的差异, 较高的 PSCF 值沿着内蒙古中部-山西东北部-保定-北京南部的方向分布, 这可能是由于 SO_4^{2-} 具有区域性分布特征, 其气态前体物 SO_2 可通过气相氧化反应或者云处理形成 SO_4^{2-} ^[31]. 而 NO_3^- 的潜在源区主要分布在北京本地或近周边地区, 这可能是由于 NO_3^- 易受到气温的影响, 在长距离传输的过程中因挥发而造成 NO_3^- 浓度的降低. 因此, 北京大气污染治理

应充分考虑本地污染源和外来源传输贡献, 尤其针对高潜在源区(如河北省南部城市)更应强化减排措施, 为构建京津冀地区大气污染协作机制提供支撑.

2.4 模型验证

由表 1 可知, WRF 能较好地再现 3 种气象要素的时间演变特征, 模拟值与观测值有较好的相关性, COR 均高于 0.61. T2 模拟效果最好, COR 均在 0.84 以上, NMB 介于 -0.49% ~ 0.69% 之间, NME 介于 0.46% ~ 0.92% 之间; RH 模拟值普遍低于观测值, 存在小范围低估, 且其 NMB 和 NME 反映出模拟偏差较 T2 大; WS 的 COR 介于 0.63 ~ 0.66 之间, NMB 和 NME 介于 20.58% ~ 56.60% 之间, 模拟值高于观测值, 但二者的变化趋势表现出

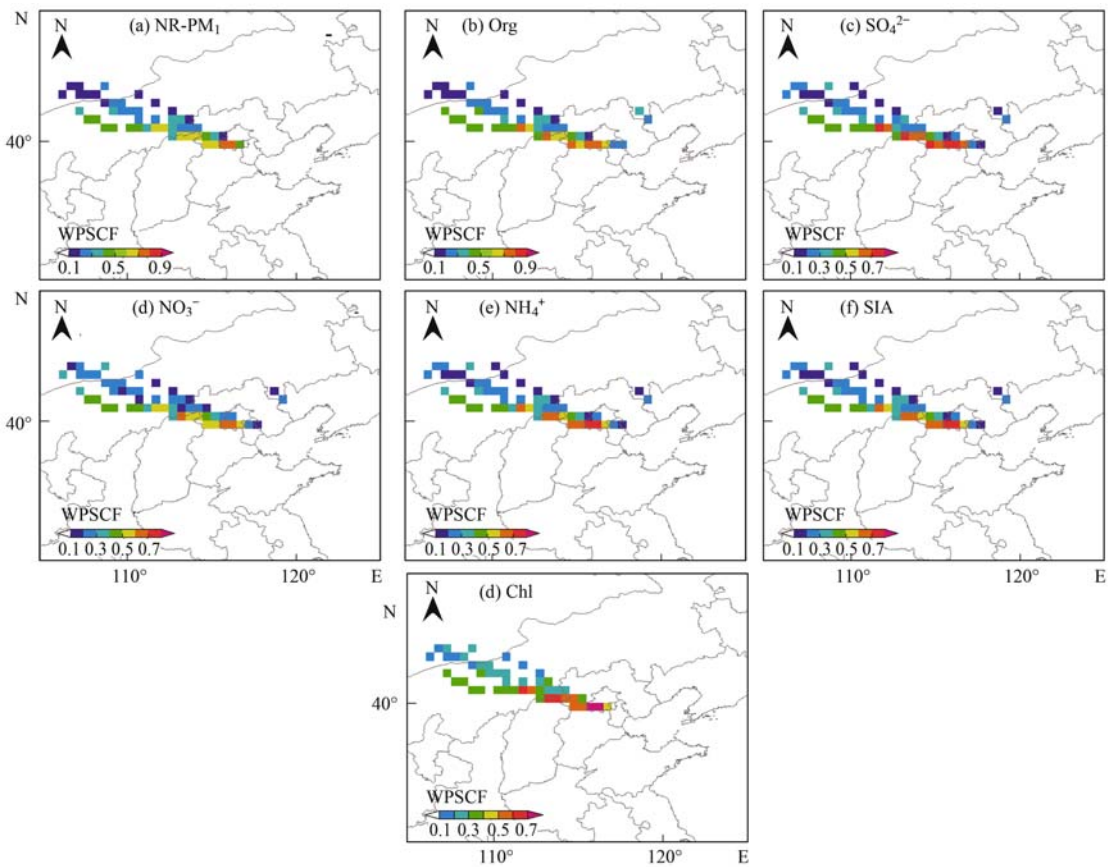


图5 重污染时段北京 NR-PM₁ 及其化学组分 PSCF 分布

Fig. 5 PSCF map for NR-PM₁ and its chemical components in Beijing during the heavy pollution period

较好的一致性. 从 PM_{2.5} 的模拟效果分析可知, 2 个城市 PM_{2.5} 模拟值与观测值有较好的一致性, COR 均在 0.72 以上, NMB 介于 -24.80% ~ -16.92% 之间, NME 在 35.00% 左右. 但分析发现 PM_{2.5} 均存在不同程度的低估, 尤其是在重污染时段, 这可能是由于大气污染源排放清单的不确定性、模型内部

针对重污染期间颗粒物的二次转化机制欠缺、水平及垂直分辨率的影响以及气象要素的模拟误差等多方面因素带来的影响^[32]. 总体而言, 本研究中 WRF-CAMx 能够准确模拟 PM_{2.5} 浓度以及各气象要素演变特征, 模拟结果误差属于可接受范围内, 可进一步用于 PM_{2.5} 传输规律的研究.

表 1 模拟值与监测值统计指标对比

Table 1 Comparison of statistical indicators between monitored and simulated data

变量	统计指标	指标单位	北京	承德	石家庄	保定
PM _{2.5}	NMB	%	-26.58	-23.79	-16.92	-24.80
	NME	%	36.53	33.15	35.64	37.13
	COR	/	0.85	0.75	0.72	0.77
T2	NMB	%	-0.49	0.18	-0.19	0.69
	NME	%	0.76	0.46	0.57	0.92
	COR	/	0.85	0.97	0.84	0.84
RH	NMB	%	-4.14	-4.87	-7.75	-3.53
	NME	%	16.67	12.74	12.41	10.50
	COR	/	0.67	0.82	0.61	0.62
WS	NMB	%	40.33	48.26	25.71	20.58
	NME	%	44.77	56.60	33.75	35.99
	COR	/	0.66	0.64	0.63	0.64

2.5 PM_{2.5}垂直通量特征分析

图 6 展示了整个观测期间和一次重污染过程 (2016 年 11 月 1 ~ 7 日) PM_{2.5} 净传输通量随海拔高

度的垂直分布特征. 从图 6 可知, PM_{2.5} 净通量随着海拔高度的不同而不同. 整个研究期间, 不同高度 PM_{2.5} 总的净通量表现为正值, 在海拔 600 ~ 1 000 m

处总的净通量较高, 达到 $49.42 \sim 60.68 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$, 表明毗邻城市向北京地区输入 $\text{PM}_{2.5}$ 的质量高于北京向毗邻城市输出 $\text{PM}_{2.5}$ 的质量, 并且 $\text{PM}_{2.5}$ 高空传输对大气污染的贡献也不容忽视[图 6(a)]. 值得注意的是, 整个研究期间北京总的净通量为 $339.36 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$, 最大的输入净通量和最大的输出净通量强度分别来自保定($437.14 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$)和承德($-693.88 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$), 因此可以推断出一条关键的 $\text{PM}_{2.5}$ 污染传输通道, 即西南-东北传输通道(保定→北京→承德). 此外, 廊坊(北)和天津在 400 m 以下持续输送 $\text{PM}_{2.5}$ 至北京, 而在 400 m 以上转变为接受来自北京的 $\text{PM}_{2.5}$, 这是由于随着海拔高度的增加, 风向发生了转变所致.

2016 年 11 月 1 日至 7 日, 北京发生了一次典

型的重污染过程, 本研究采用 $\text{PM}_{2.5}$ 传输通量的方法对此次重污染过程进行了分析[图 6(b)~6(h)]. 11 月 1 日北京 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度处于较低水平, 日均值为 $42 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 总的净通量为 $333.10 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$, 与整个研究期间平均值相当, $\text{PM}_{2.5}$ 主要由保定和廊坊(南)向北京输送, 而北京始终处于向承德输出的状态. 从 11 月 2 日开始, $\text{PM}_{2.5}$ 浓度逐渐累积上升, $\text{PM}_{2.5}$ 的传输方向没有发生明显变化, 但海拔 400 m 以下 $\text{PM}_{2.5}$ 总的净通量明显增加, 介于 $42.84 \sim 80.32 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$ 之间, 这是 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度和风速共同升高的原因所致. 11 月 3~5 日为重污染日, $\text{PM}_{2.5}$ 日均浓度变化范围为 $188.58 \sim 255.58 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 图 6(d) 显示 11 月 3 日在海拔 $250 \sim 600 \text{ m}$ 之间 $\text{PM}_{2.5}$ 传输较为强烈, 总的净通量高达 $461.54 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$. 直至 11

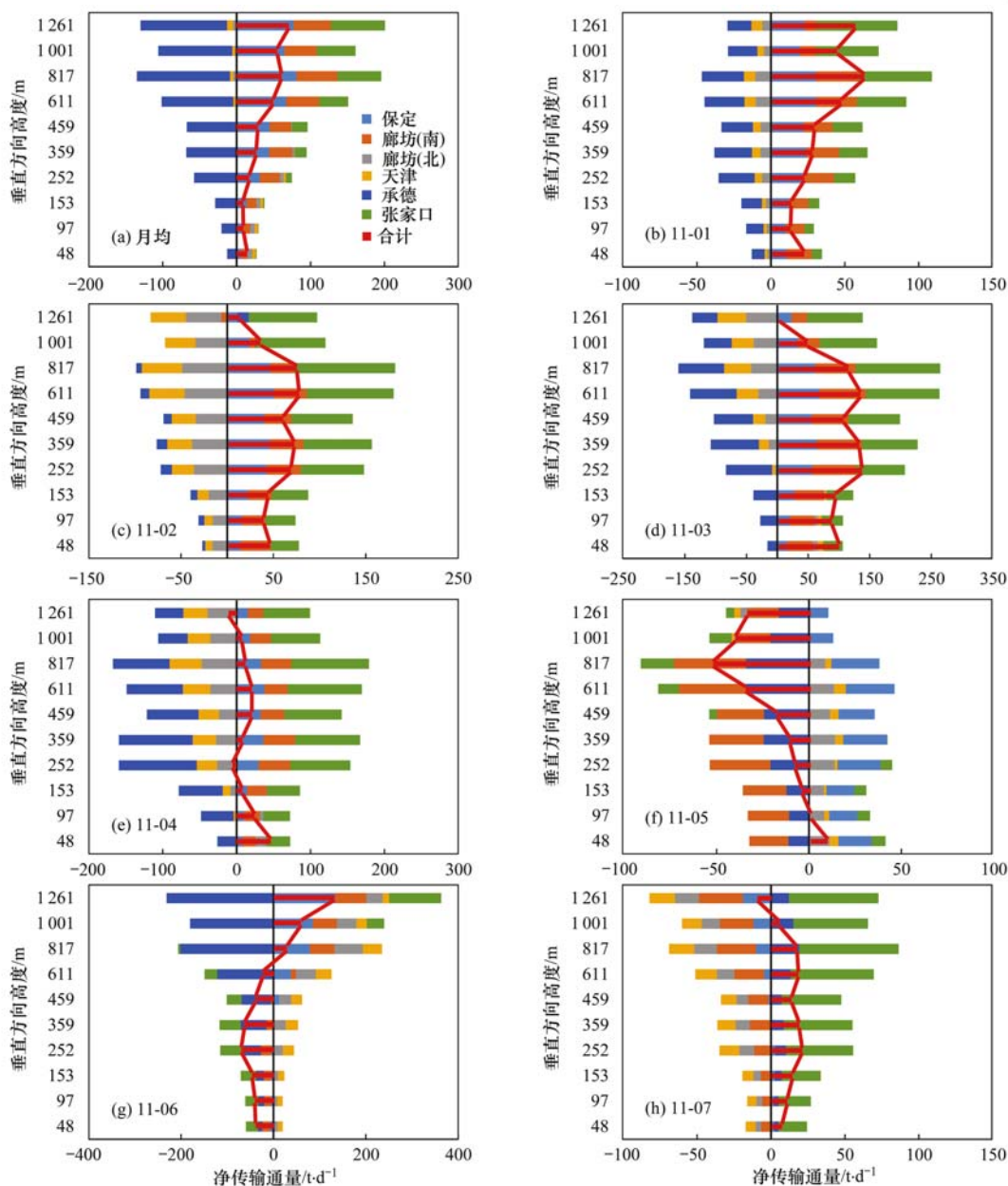


图 6 整个观测期间和一次重污染过程 $\text{PM}_{2.5}$ 传输通量垂直分布特征

Fig. 6 Vertical distribution of $\text{PM}_{2.5}$ net fluxes during the study period and a typical heavy pollution event

月4日 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度达到此次重污染过程的峰值, 总的净通量在海拔 100 m 以下最大, 说明此次重污染峰值当日区域传输影响主要发生在近地面. 总的净通量为 $129.00 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$, 这是由于虽然 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度较高, 但 11 月 4 日北京地区平均风速低于 $1.2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 这是因为静稳的气象条件抑制了 $\text{PM}_{2.5}$ 的扩散, 导致了 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度逐渐累积. 另外, 从 11 月 1 日~4 日 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度逐渐抬升至峰值的过程中, 北京主要作为 $\text{PM}_{2.5}$ “受体”, 同时鉴别到了两种主要的传输通道, 即西南-东北方向(保定→北京→承德)和西北-东南方向(张家口→北京→廊坊北→天津), 这与 Gao 等^[32]的研究结果一致. 11 月 5 日 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度开始下降, 但仍然保持较高的浓度. 从图 6(f) 可知, 海拔 50 m 以上 $\text{PM}_{2.5}$ 总的净通量均为负值, 说明此时北京主要作为“源体”向外输送 $\text{PM}_{2.5}$, 在海拔 800 m 左右总的净通量达到最大值 $-52.89 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$. 在海拔 400 m 以下主要有两条传输通道, 即西北-廊坊方向(张家口→北京→廊坊)和东北-西南方向(承德→北京→保定), 而在海拔 400 m 以上, 北京西北边界风向发生转变, 张家口由向北京输送转变为接受来自北京的污染物. 截至 11 月 6~7 日, 北京输入通量和输出通量仍较高, 这是由于风速较高, 均值高达 $4.08 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 而较大的输入通量和输出通量二者相互抵消, 也使得 $\text{PM}_{2.5}$ 总的净通量较低 ($-106 \sim 117.05 \text{ t} \cdot \text{d}^{-1}$). 最终北京 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度显著下降, 此次重污染事件结束.

3 结论

(1) 2016 年 10~11 月北京大气颗粒物污染严重, NR-PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度分别高达 $(59.16 \pm 57.05) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(89.82 \pm 66.66) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, NO_2 和 CO 等气态前体物对重污染期间 NR-PM_{10} 的形成密切相关.

(2) Org、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 和 Chl 是 NR-PM_{10} 的主要化学组分, 整个观测期间、重污染日和清洁日等不同污染等级时段 5 种组分在 NR-PM_{10} 中所占比例不同, 并且其日变化特征也存在明显差异.

(3) PSCF 分析发现, 整个观测期间, 河北南部、河南东北部及山东西部成为影响北京 NR-PM_{10} 浓度的主要区域, 而重污染期间潜在贡献较大的区域主要分布在北京及周边地区, 如保定、北京南部及廊坊等.

(4) $\text{PM}_{2.5}$ 净通量呈现出显著的垂直分布特征, 不同时段北京与毗邻城市间发生的 $\text{PM}_{2.5}$ 传输通量流入与流出特征也不同, 北京 $\text{PM}_{2.5}$ 污染受高空和近地面传输的共同影响.

(5) 重污染时段主要鉴别出了两种传输路径, 即西南-东北方向(保定→北京→承德)和西北-东南方向(张家口→北京→廊坊北→天津).

参考文献:

- [1] Lang J L, Zhou Y, Chen D S, *et al.* Investigating the contribution of shipping emissions to atmospheric $\text{PM}_{2.5}$ using a combined source apportionment approach [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **229**: 557-566.
- [2] Zheng G J, Duan F K, Su H, *et al.* Exploring the severe winter haze in Beijing: the impact of synoptic weather, regional transport and heterogeneous reactions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(6): 2969-2983.
- [3] Qi M, Zhu X, Du W, *et al.* Exposure and health impact evaluation based on simultaneous measurement of indoor and ambient $\text{PM}_{2.5}$ in Haidian, Beijing [J]. *Environmental Pollution*, 2016, **220**: 704-712.
- [4] Song S K, Shon Z H, Park Y H. Diurnal and seasonal characteristics of the optical properties and direct radiative forcing of different aerosol components in Seoul megacity[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **599-600**: 400-412.
- [5] 薛文博, 付飞, 王金南, 等. 中国 $\text{PM}_{2.5}$ 跨区域传输特征数值模拟研究[J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(6): 1361-1368.
Xue W B, Fu F, Wang J N, *et al.* Numerical study on the characteristics of regional transport of $\text{PM}_{2.5}$ in China[J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(6): 1361-1368.
- [6] Sun Y L, Wang Z F, Du W, *et al.* Long-term real-time measurements of aerosol particle composition in Beijing, China: seasonal variations, meteorological effects, and source analysis [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(17): 10149-10165.
- [7] 韩力慧, 向欣, 张海亮, 等. 北京市开发区 PM_{10} 污染特征及影响霾形成的因素[J]. *中国环境科学*, 2018, **38**(8): 2846-2856.
Han L H, Xiang X, Zhang H L, *et al.* Pollution characteristics of PM_{10} and factors affecting the formation of haze pollution at a developed zone in Beijing [J]. *China Environmental Science*, 2018, **38**(8): 2846-2856.
- [8] 李璇, 聂滕, 齐珺, 等. 2013 年 1 月北京市 $\text{PM}_{2.5}$ 区域来源解析[J]. *环境科学*, 2015, **36**(4): 1148-1153.
Li X, Nie T, Qi J, *et al.* Regional source apportionment of $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing in January 2013 [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(4): 1148-1153.
- [9] 何心河, 马建中, 徐敬, 等. 2014 年 10 月京津冀地区一次 $\text{PM}_{2.5}$ 污染过程的数值模拟[J]. *气象*, 2016, **42**(7): 827-837.
He X H, Ma J Z, Xu J, *et al.* Simulation of a heavy $\text{PM}_{2.5}$ pollutant event over Beijing-Tianjin-Hebei region in October 2014 [J]. *Meteorological Monthly*, 2016, **42**(7): 827-837.
- [10] 张晗宇, 郎建垒, 温维, 等. 唐山 $\text{PM}_{2.5}$ 污染特征及区域传输的贡献[J]. *北京工业大学学报*, 2017, **43**(8): 1252-1262.
Zhang H Y, Lang J L, Wen W, *et al.* Pollution characteristics and regional transmission of $\text{PM}_{2.5}$ in Tangshan [J]. *Journal of Beijing University of Technology*, 2017, **43**(8): 1252-1262.
- [11] 花丛, 刘超, 张恒德, 等. 京津冀地区冬半年污染传输特征及传输指数的改进[J]. *气象*, 2017, **43**(7): 813-822.
Hua C, Liu C, Zhang H D, *et al.* Characteristics of air pollutant transport over Beijing-Tianjin-Hebei region during winter months and improvement of transport weather index [J]. *Meteorological Monthly*, 2017, **43**(7): 813-822.
- [12] 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.
- [13] Zhang Y J, Tang L L, Yu H X, *et al.* Chemical composition, sources and evolution processes of aerosol at an urban site in Yangtze River Delta, China during wintertime [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **123**: 339-349.
- [14] Li H Y, Zhang Q, Zhang Q, *et al.* Wintertime aerosol chemistry and haze evolution in an extremely polluted city of the North China Plain: significant contribution from coal and biomass combustion [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(7): 4751-4768.
- [15] Sun Y L, Wang Z F, Dong H B, *et al.* Characterization of summer organic and inorganic aerosols in Beijing, China with an Aerosol Chemical Speciation Monitor [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **51**(5): 250-259.
- [16] 王郭臣, 王珏, 信玉洁, 等. 天津 PM₁₀ 和 NO₂ 输送路径及潜在源区研究 [J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(12): 3009-3016. Wang G C, Wang Y, Xin Y J, *et al.* Transportation pathways and potential source areas of PM₁₀ and NO₂ in Tianjin [J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(12): 3009-3016.
- [17] Li D P, Liu J G, Zhang J S, *et al.* Identification of long-range transport pathways and potential sources of PM_{2.5} and PM₁₀ in Beijing from 2014 to 2015 [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2017, **56**: 214-229.
- [18] Zhou Y, Xing X F, Lang J L, *et al.* A comprehensive biomass burning emission inventory with high spatial and temporal resolution in China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(4): 2839-2864.
- [19] Chen D S, Zhao N, Lang J L, *et al.* Contribution of ship emissions to the concentration of PM_{2.5}: a comprehensive study using AIS data and WRF/Chem model in Bohai Rim Region, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **610-611**: 1476-1486.
- [20] Chang X, Wang S X, Zhao B, *et al.* Assessment of inter-city transport of particulate matter in the Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(7): 4843-4858.
- [21] Hu W, Hu M, Hu W W, *et al.* Seasonal variations in high time-resolved chemical compositions, sources, and evolution of atmospheric submicron aerosols in the megacity Beijing [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(16): 9979-10000.
- [22] Zhang Y J, Tang L L, Wang Z, *et al.* Insights into characteristics, sources, and evolution of submicron aerosols during harvest seasons in the Yangtze River Delta region, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(3): 1331-1349.
- [23] Gong Z H, Lan Z J, Xue L, *et al.* Characterization of submicron aerosols in the urban outflow of the central Pearl River Delta region of China [J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2012, **6**(5): 725-733.
- [24] Hu W W, Hu M, Hu W, *et al.* Chemical composition, sources, and aging process of submicron aerosols in Beijing: Contrast between summer and winter [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2016, **121**(4): 1955-1977.
- [25] 杨孝文, 周颖, 程水源, 等. 北京冬季一次重污染过程的污染特征及成因分析 [J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(3): 679-686. Yang X W, Zhou Y, Cheng S Y, *et al.* Characteristics and formation mechanism of a heavy winter air pollution event in Beijing [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(3): 679-686.
- [26] 江琪, 王飞, 孙业乐. 河北香河亚微米气溶胶组分特性、来源及其演变规律分析 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(7): 3022-3032. Jiang Q, Wang F, Sun Y L. Analysis of chemical composition, source and evolution of submicron particles in Xianghe, Hebei province [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(7): 3022-3032.
- [27] Yang X W, Cheng S Y, Li J B, *et al.* Characterization of chemical composition in PM_{2.5} in Beijing before, during, and after a large-scale international event [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2017, **17**(4): 896-907.
- [28] Xu P, Zhang J K, Ji D S, *et al.* Characterization of submicron particles during autumn in Beijing, China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **63**: 16-27.
- [29] Lang J L, Cheng S Y, Wen W, *et al.* Development and application of a new PM_{2.5} source apportionment approach [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2017, **17**(1): 340-350.
- [30] 王燕丽, 薛文博, 雷宇, 等. 京津冀区域 PM_{2.5} 污染相互输送特征 [J]. *环境科学*, 2017, **38**(12): 4897-4904. Wang Y L, Xue W B, Lei Y, *et al.* Regional transport matrix study of PM_{2.5} in Jingjinji region, 2015 [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(12): 4897-4904.
- [31] Ji D S, Li L, Wang Y S, *et al.* The heaviest particulate air-pollution episodes occurred in northern China in January, 2013: insights gained from observation [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **92**: 546-556.
- [32] Gao M, Carmichael G R, Wang Y, *et al.* Modeling study of the 2010 regional haze event in the North China Plain [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(3): 1673-1691.

CONTENTS

Pollution Characteristics and Regional Transport of Atmospheric Particulate Matter in Beijing from October to November, 2016	ZHANG Han-yu, CHENG Shui-yuan, YAO Sen, <i>et al.</i> (1999)
Chemical Compositions, Mass Concentrations, and Emission Factors of Particulate Organic Matters Emitted from Catering	WANG Hong-li, JING Sheng-ao, QIAO Li-ping (2010)
Size Distributions of Aerosol During the Summer at the Summit of Mountain Taishan (1534 m) in Central East China	SHEN Li-juan, WANG Hong-lei, YIN Yan, <i>et al.</i> (2019)
Concentration Characteristics and Source Analysis of PM _{2.5} During Wintertime in Zhengzhou-Xinxiang	YAN Guang-xuan, ZHANG Pu-zhen, HUANG Hai-yan, <i>et al.</i> (2027)
Scenario Analysis of PM _{2.5} Concentration Targets and Milestones in China	HE Jin-yu, YAN Li, WANG Yan-chao, <i>et al.</i> (2036)
PM _{2.5} Emission Characteristics and Estimation of Emission Reduction Potential from Typical Industrial Sources in Anyang	DU Xiao-shen, YAN Li, HE Jin-yu, <i>et al.</i> (2043)
Emission Characteristics and List of Inorganic Elements in Fine Particles of Typical Industrial Kilns in Zhengzhou City	ZHAO Qing-yan, HAN Shi-jie, ZHANG Yi-shun, <i>et al.</i> (2052)
Composition and Atmospheric Reactivity of Ambient Volatile Organic Compounds(VOCs) in the Urban Area of Nanjing, China	QIAO Yue-zhen, CHEN Feng, ZHAO Qiu-yue, <i>et al.</i> (2062)
Formation Potential of Ozone and Secondary Organic Aerosol of VOCs from Fossil Fuel Combustion in Lanzhou City	LIU Zhen, ZHU Yu-fan, GUO Wen-kai, <i>et al.</i> (2069)
Inventory and Characteristics of Biogenic Volatile Organic Compounds (BVOCs) for 12 Deciduous Fruit Trees	LI Shuang-jiang, YUAN Xiang-yang, LI Qi, <i>et al.</i> (2078)
Ion Concentrations and Their Spatial Variability in Underground Water and Surface Water in Typical Terrestrial Ecosystems in China	HUANG Li, ZHANG Xin-yu, YUAN Guo-fu, <i>et al.</i> (2086)
Status of Antibiotic Contamination and Ecological Risks Assessment of Several Typical Chinese Surface-Water Environments	LIU Xi, WANG Zhi, WANG Xue-lei, <i>et al.</i> (2094)
Distribution and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Water Bodies in Seven Basins of China	FAN Bo, WANG Xiao-nan, HUANG Yun, <i>et al.</i> (2101)
Occurrence, Input, and Seasonal Variations of Poly- and Perfluoroalkyl Substances (PFASs) in Rivers and Drain Outlets from the Dalian Coastal Area, China	CHEN Hong, HAN Jian-bo, ZHANG Can, <i>et al.</i> (2115)
Space-time Characteristics and Environmental Significance of Stable Isotopes in Precipitation at an Arid Inland River Basin	YUAN Rui-feng, LI Zong-xing, CAI Yu-qin, <i>et al.</i> (2122)
Regional Evolution and Control Factors of Karst Groundwater in Liulin Spring Catchment	HUNAG Qi-bo, QIN Xiao-qun, LIU Peng-yu, <i>et al.</i> (2132)
Major Ionic Characteristics and Controlling Factors of Karst Groundwater at Xiangshui, Chongzuo	ZHOU Jin-mei, JIANG Zhong-cheng, XU Guang-li, <i>et al.</i> (2143)
Analysis of Transport and Transformation Characteristics Between Dissolved Phosphorus and Particulate Phosphorus in Water of the Three Gorges Reservoir	QIN Yan-wen, HAN Chao-nan, ZHENG Bing-hui, <i>et al.</i> (2152)
Vertical Distribution Profiles and Release Potential of Mainstream Column Sediments in the Three Gorges Reservoir After Impoundment to 175 m	LI Rui, PAN Chan-juan, TANG Xian-qiang, <i>et al.</i> (2160)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Phosphorus in the Dongting Lake at Different Water Periods	LI Ying-jie, WANG Li-jing, LI Hong, <i>et al.</i> (2170)
Effects of Exogenous Carbon Addition on Equilibrium Phosphate Concentration and Risk of Phosphorus Release from Sediments in the Shiwuli River, Chaohu Lake Basin	LI Ru-zhong, BAO Qin, DAI Yuan (2178)
Spatial Distribution of Organic Phosphorus in Sediment and Its Environmental Implication in the Upper Stream of Minjiang River	XU Jian, YUAN Xu-yin, YE Hong-meng, <i>et al.</i> (2186)
Nitrogen and Phosphorus Removal by Integrated Ecological Engineering Treatment System in a Small Agricultural Watershed	JIANG Qian-wen, LIU Feng, PENG Ying-xiang, <i>et al.</i> (2194)
Spatial Distribution and Pollution Assessment of Heavy Metals in River Sediments from Lake Taihu Basin	ZHANG Jie, GUO Xi-ya, ZENG Ye, <i>et al.</i> (2202)
Temporal and Spatial Variation of Mercury in the Water of the Ruxi River Estuary, a Typical Tributary of the Three Gorges Reservoir Area	MA Wei-bin, CHEN Qiu-yu, YIN De-liang, <i>et al.</i> (2211)
Mercury Distribution Characteristics and Its Mass Balance in a Multifunctional Urban Wetland	LIU Wei-hao, WANG Yong-min, FAN Yu-fei, <i>et al.</i> (2219)
Distribution Characteristics of Mercury in Different Urban Constructed Wetlands	FAN Yu-fei, LIU Wei-hao, SUN Tao, <i>et al.</i> (2226)
Effects of Microplastics on Antibiotic Resistance Genes in Estuarine Sediments	HUANG Fu-yi, YANG Kai, ZHANG Zi-xing, <i>et al.</i> (2234)
Comparison and Source Apportionment of PAHs Pollution of Runoff from Roads in Suburb and Urban Areas of Shanghai	WU Jie, XIONG Li-jun, WU Jian, <i>et al.</i> (2240)
Characteristics of Phytoplankton Community and Its Relationship with Environmental Factors in Different Regions of Yilong Lake, Yunnan Province, China	WANG Zhen-fang, ZHANG Wei, YANG Li, <i>et al.</i> (2249)
Algal Bloom and Mechanism of Hypoxia in the Metalimnion of the Lijiahe Reservoir During Thermal Stratification	LIU Xue-qing, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2258)
Allelopathic Effects and Allelochemicals of <i>Myriophyllum elatinoide</i> s on <i>Microcystis aeruginosa</i> and <i>Selenastrum capricornutum</i>	BI Ye-liang, WU Shi-min, ZHOU Si-ning, <i>et al.</i> (2265)
Removal Efficiency of Trichloroacetamide by UV/Sodium Sulfite	FU Zhi-xuan, GUO Ying-qing, CHU Wen-hai (2271)
Influencing Factors and Transformation Mechanism of Venlafaxine Degradation by UV	LÜ Juan, XU Zhi-wei, WANG Yan (2278)
Mechanism of Synergistic Adsorption of Arsenic and Cadmium by Aluminium-substituted Ferrihydrites	HUANG Bo, GUO Zhao-hui, XIAO Xi-yuan, <i>et al.</i> (2287)
Fluoride Removal Efficiency of Novel Material: Magnetite Core/Zirconia Shell Nanocomposite	FANG Wen-can, LI Xiao-di, FANG Jing, <i>et al.</i> (2295)
Impact Mechanisms of Carboxyl Group Modified Cathode on Acetate Production in Microbial Electrosynthesis Systems	QI Jia-xin, ZENG Cui-ping, LUO Hai-ping, <i>et al.</i> (2302)
Partial Nitrification and Denitrification of Low C/N Ratio Sewage Based on Zoning Oxygen and Dissolved Oxygen Control	WU Chun-lei, RONG Yi, LIU Xiao-peng, <i>et al.</i> (2310)
Start-up Performance of Low-substrate Anaerobic Ammonium Oxidation Under Different COD Concentrations	MA Yan-hong, ZHAO Zhi-chao, AN Fang-jiao, <i>et al.</i> (2317)
Partial Nitrification Fast Start-up and Stable Performance of 15°C SBBR	SUN Yi-qi, BIAN Wei, LI Jun, <i>et al.</i> (2326)
Effects of Long-term Poly-P Deficiency on the Metabolic Properties of <i>Accumulibacter</i> in AO-SBR System	WANG Shao-po, LI Zhu, ZHAO Le-dan, <i>et al.</i> (2333)
Extracellular Polymeric Substances of ANAMMOX Granular Sludge and Its Effects on Sludge Surface Characteristics	YANG Ming-ming, LIU Zi-han, ZHOU Yang, <i>et al.</i> (2341)
Treatment of Piggery Biogas Slurry by Enhanced Biological Contact Oxidation with HN-AD Bacteria	LIU Xiang-yang, ZHANG Qian, WU Heng, <i>et al.</i> (2349)
Effect of Different Temperatures on the Performance of Autotrophic Nitrogen Removal and Microbial Community from Swine Wastewater	HUANG Fang-yu, DENG Liang-wei, YANG Hong-nan, <i>et al.</i> (2357)
Characteristics and Regional Heterogeneity of Eukaryotic Microbial Community in Wastewater Treatment Plants	QIN Wen-tao, ZHANG Bing, SUN Chen-xiang, <i>et al.</i> (2368)
Effects of Wetland Reclamation on Soil Microbial Community Structure in the Sanjiang Plain	WANG Na, GAO Jie, WEI Jing, <i>et al.</i> (2375)
Distribution Pattern and Diversity Maintenance Mechanisms of Fungal Community in Subalpine Lakes	LIU Jin-xian, LI Cui, LUO Zheng-ming, <i>et al.</i> (2382)
Influence of Biochar Amendment on Soil Denitrifying Microorganisms in Double Rice Cropping System	LIU Jie-yun, QIU Hu-sen, WANG Cong, <i>et al.</i> (2394)
Effects of Plastic Film Mulching and Nitrogen Fertilizer Application on CH ₄ Emissions from a Vegetable Field	NI Xue, JIANG Chang-sheng, CHEN Shi-jie, <i>et al.</i> (2404)
Effects of Water Deficit on Greenhouse Gas Emission in Wheat Field in Different Periods	WANG Xiao-yun, CAI Huan-jie, LI Liang, <i>et al.</i> (2413)
Effects of Different Fertilization Modes on Greenhouse Gas Emission Characteristics of Paddy Fields in Hot Areas	TIAN Wei, WU Yan-zheng, TANG Shui-rong, <i>et al.</i> (2426)
Effects of Cyclical Temperature Fluctuations on Organic Carbon Mineralization in Purple Soil	ZENG Man-man, CI En, FAN Jing-jing, <i>et al.</i> (2435)
Cd Content Characteristics and Ecological Risk Assessment of Paddy Soil in High Cadmium Anomaly Area of Guangxi	SONG Bo, WANG Fo-peng, ZHOU Lang, <i>et al.</i> (2443)
Remediation Potential of <i>Ageratum conyzoides</i> L. on Cadmium Contaminated Farmland	ZHANG Yun-xia, SONG Bo, BIN Juan, <i>et al.</i> (2453)
Evaluation of the Potential Agricultural Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Contaminated Soil by Planting <i>Lactuca sativa</i> L.	JIAO Hai-hua, GUO Jia-jia, ZHANG Jing-min, <i>et al.</i> (2460)
Impacts of Land Use and Landscape Patterns on Heavy Metal Accumulation in Soil	SHU Xin, LI Yan, LI Feng, <i>et al.</i> (2471)
Pollution Characteristics and Evaluation of Heavy Metal Pollution in Surface Soil Around a Municipal Solid Waste Incineration Power Plant	LÜ Zhan-lu, ZHANG Jin-liang, LU Shao-you, <i>et al.</i> (2483)