

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.11

第40卷 第11期

目次

2018年中国长江三角洲地区气溶胶的垂直分布特征	沈吉, 曹念文(4743)
2018年石家庄市秋冬季典型霾污染特征	宿文康, 鲍晓磊, 倪爽英, 赵卫凤(4755)
武汉市PM _{2.5} 化学组分时空分布及聚类分析	张会涛, 田瑛泽, 刘保双, 杨佳美, 郁佳, 官攀, 吴建会, 张裕芬(4764)
郑州市某生活区大气PM _{2.5} 中重金属污染特征及生态、健康风险评估	何瑞东, 张轶舜, 陈永阳, 靳孟洁, 韩士杰, 赵金帅, 张瑞芹, 燕启社(4774)
厦门市降水中金属元素含量分布特征及来源解析	王珊珊, 程奕枫, 颜金培, 胡恭任(4783)
2015~2017年上海郊区大气新粒子生成特征	霍俊涛, 王新宁, 段玉森, 伏晴艳, 陈冰怡(4791)
太原市秋冬季大气污染特征和输送路径及潜在源区分析	闫世明, 王雁, 郭伟, 李莹, 张逢生(4801)
东北区域空气质量时空分布特征及重度污染成因分析	陈卫卫, 刘阳, 吴雪伟, 鲍秋阳, 高枳亭, 张学磊, 赵红梅, 张世春, 修艾军, 程天海(4810)
艾比湖流域气溶胶光学厚度时空演变及影响因素	陈香月, 丁建丽, 王敬哲, 葛翔宇, 梁静(4824)
中国住宅室内BTEX浓度水平及其影响因素	侯贝贝, 尹奕卉, 裴晶晶, 刘俊杰(4833)
石家庄地区芳香族化合物的污染特征及来源分析	杨阳, 李杏茹, 刘永桥, 杨玉磊, 赵清, 陈曦, 徐静(4841)
郑州市碳素行业无组织VOCs排放特征分析及健康风险评估	张轶舜, 王佳, 韩士杰, 何瑞东, 陈永阳, 靳孟洁, 赵庆炎, 张瑞芹, 燕启社(4847)
典型化工行业有害VOCs排放清单及长三角地区应用	鲁君, 黄奕玮, 黄成(4856)
2013~2017年江苏省人为源氨排放清单的建立及特征	侯新红, 于兴娜, 沈丽, 赵睿东, 王国祯, 张毓秀(4862)
焦化厂建构筑物和生产设施表面PAHs的赋存特征及健康风险	赵一澍, 廖晓勇, 李尤, 罗俊鹏, 龚雪刚, 侯艺璇(4870)
中国南海流沙湾中雄激素、糖皮质激素和孕激素的污染特征及其生态风险评价	杨雷, 张晋娜, 徐敏, 彭涛, 史文俊, 石义静, 应光国(4879)
岩溶流域洪水过程水化学动态变化及影响因素	原雅琼, 孙平安, 苏钊, 于爽, 钟丽华, 何师意, 徐茜(4889)
长江水体常量和微量元素的来源、分布与向海输送	吴文涛, 冉祥滨, 李景喜, 王昊, 李梦露, 刘军, 臧家业(4900)
望虞河西岸河网重金属污染特征及生态风险评价	徐晨, 王沛芳, 陈娟, 袁秋生, 胡斌(4914)
不同雨强对太湖河网河道入湖营养盐负荷影响	陈洁, 朱广伟, 许海, 詹旭, 朱梦圆, 宣文怡, 黄亚文(4924)
合肥市十八联圩湿地表层沉积物营养盐与重金属分布及污染评价	陈娜, 许凡, 谢三桃, 郭天星, 彭久赞, 雷琦, 张玮, 王丽卿(4932)
三峡库区不同河段支流丰水期叶绿素a和营养盐的空间分布特征	杨凡, 杨正健, 纪道斌, 苏青青, 龙良红, 刘心愿, 王耀耀, 赵冲(4944)
丹江口水库氮磷内源释放对比	王志齐, 刘新星, 姚志宏, 姚伦广, 常跃, 刘卓初, 曹连海(4953)
不同沉水植物净水能力与植株体细菌群落组成相关性	李琳, 岳春雷, 张华, 李贺鹏, 杨乐, 王琚(4962)
纳米氧化锌粒径对人工湿地性能及微生物群落的影响	王森, 任伶, 刘琳琳, 李颖, 张振, 孔范龙(4971)
水生植物生物炭去除水体中氮磷性能	刘舒蕾, 彭慧君, 杨佳怡, 肖琳(4980)
MgO改性莲蓬壳生物炭的制备及其磷吸附特性	王盛华, 朱丹晨, 邵敬爱, 向家涛, 杨海平, 易娟, 张世红, 陈汉平(4987)
微塑料对短流程膜工艺中膜污染的影响	王博东, 薛文静, 吕永涛, 苗瑞, 马百文(4996)
基于铁锰泥的除硝颗粒吸附剂制备及其比较	曾辉平, 于亚萍, 吕赛赛, 李冬, 张杰(5002)
氯氧铁非均相催化过氧化氢降解罗丹明B	张少朋, 陈瑞, 白淑琴, 刘锐平(5009)
天津市规模化奶牛养殖场废水中典型抗生素处理效果及生态风险评估	陈乾, 赵润, 牟美睿, 白鸽, 史宏伟, 刘海学, 吴惠惠(5015)
废水处理系统中抗生素抗性基因分布特征	姚鹏城, 陈嘉瑜, 张永明, 温东辉, 陈吕军(5024)
全程自养脱氮耦合反硝化除磷的启动及稳定运行	印雯, 陈亚, 张钰, 徐乐中, 吴鹏, 刘文如(5032)
FeCl ₃ -生化耦合技术调控未知诱因的污泥膨胀	魏东洋, 肖才林, 周雯, 李睿华, 曹茜(5040)
污泥龄对除磷亚硝化颗粒系统的影响	李冬, 刘博, 王文琪, 曹美忠, 李帅, 张杰(5048)
厌氧氨氧化耦合反硝化工艺的启动及微生物群落变化特征	宋壮壮, 吕爽, 刘哲, 时兴东, 潘傲, 张智(5057)
基质暴露水平对ANAMMOX微生物活性及生物量的影响	陈方敏, 高佳琦, 黄勇, 胡羽婷, 李祥, 顾澄伟, 谈新伟, 殷记强, 方文烨, 倪敏(5066)
太浦河流域农田土壤重金属污染特征与来源解析	李伟迪, 崔云霞, 曾撑撑, 朱永青, 彭月, 王凯, 李士俊(5073)
土壤重金属污染风险筛选值划分方法:以Cd为例	王锐, 张风雷, 徐姝姝, 张永文(5082)
半壁山金矿矿业活动区砷赋存的矿物特征及其对农田土壤砷累积的影响	温其谦, 阎秀兰, 申俊峰, 李鸣凤(5090)
土壤调理剂对镉污染稻田修复效果	周利军, 武琳, 林小兵, 王惠明, 刘晖, 张鸿燕, 胡敏, 石利萍, 张云, 黄欠如(5098)
改性蒙脱土对稻田土壤甲基汞的阻控修复	韩怡新, 何天容, 王祖波(5107)
铈锰改性生物炭对土壤As的固定效应	梁婷, 李莲芳, 朱昌雄, 叶婧(5114)
温和预氧化提高后续生物修复石油污染土壤	徐金兰, 王慧芳, 王荣, 章秋菊, 王杰(5124)
重金属污染农田生菜根际重金属固定细菌群落组成及其阻控效应	王铁军, 苏楠楠, 雷鹏, 邱明洋, 陈兆进, 姚伦广, 韩辉(5133)
双氰胺和3,4-二甲吡唑磷酸盐对蔬菜种植土壤氨氧化细菌和古菌的影响	郭俊丽, 刘毅, 魏文学, 葛体达, 王光军(5142)
不同再生水灌溉方式对土壤-辣椒系统中细菌群落多样性及病原菌丰度的影响	崔丙健, 高峰, 胡超, 李中阳, 樊向阳, 崔二革(5151)
黄土高原地区两种土地利用方式CO ₂ 和N ₂ O排放特征	韩佳乐, 郝珊, 刘振杰, 张曼, 张阿凤(5164)
生物炭对华北平原4种典型土壤N ₂ O排放的影响	张秀玲, 孙贇, 张水清, 岳克, 曹红亮, 林杉(5173)
优化施肥模式对我国热带地区水稻-豇豆轮作系统N ₂ O和CH ₄ 排放的影响	胡玉麟, 汤水荣, 陶凯, 何秋香, 田伟, 秦兴华, 伍延正, 孟磊(5182)
《环境科学》征订启事(4995)	
《环境科学》征稿简则(5039)	
信息(4782, 4979, 5056)	

2015 ~ 2017 年上海郊区大气新粒子生成特征

霍俊涛, 王新宁, 段玉森, 伏晴艳*, 陈冰怡

(上海市环境监测中心, 上海 200235)

摘要: 本研究利用扫描电迁移率粒径谱仪(SMPS)对上海郊区 2015 ~ 2017 年期间大气新粒子生成进行长期连续观测, 结合气象要素、气态污染物和 $PM_{2.5}$ 化学组分等数据, 分析上海郊区新粒子生成特征。结果表明, 上海郊区新粒子生成天(NPF)为 172 d, 占有效天数(942 d)的 18.3%; 其中典型新粒子生成天(Event)和新粒子增长-缩小天(Shrinkage)分别为 150 d 和 32 d; NPF 天占比春、夏季最高, 秋季次之, 冬季最低。高温低湿、太阳辐射强、风速大和降雨量少的气象条件有利于新粒子生成; 南风、西南风和西风期间 Event 天占比高, 气团主要来自环太湖流域植被覆盖和农业种植区, 而 Non-NPF 和 Shrinkage 天主导风向为东北、东到东南风。与非新粒子生成天(Non-NPF)相比, Event 天各季度 SO_2 和 O_3 均高, 表明气态硫酸和光化学反应为新粒子生成的关键因素; $PM_{2.5}$ 浓度并不均低于 Non-NPF 天, 但 PM_{10} 值均更高, 可能与多相光催化反应有关。Shrinkage 天除 O_3 外, 其他污染物浓度均最低, 较低的气态前体物导致新粒子增长程度有限。 $PM_{2.5}$ 化学组分显示, Event 天 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 无机组分秋季平均浓度高于 Non-NPF 天, 其他季节则相反; 有机碳各季节平均浓度均高于 Non-NPF 天; Shrinkage 天各组分浓度最低, 但春、夏、冬季有机碳占比均高于 Non-NPF 天; 因此有机物在上海郊区新粒子生成及增长过程中有重要贡献。

关键词: 新粒子生成(NPF); 新粒子增长-缩小; 上海郊区; 气象要素; 化学组分

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)11-4791-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201903090

First Long-Term Study of Atmospheric New Particle Formation in the Suburb of Shanghai from 2015 to 2017

HUO Jun-tao, WANG Xin-ning, DUAN Yu-sen, FU Qing-yan*, CHEN Bing-yi

(Shanghai Environmental Monitoring Center, Shanghai 200235, China)

Abstract: In this study, long-term continuous monitoring of atmospheric new particle formation was conducted from 2015 to 2017 in the Shanghai suburbs using a scanning mobility particle sizer (SMPS). Combined with meteorological parameters, gaseous pollutants, and $PM_{2.5}$ chemical composition data, the characterization of new particle formation was analyzed. The results of data analysis showed there were 172 new particle formation (NPF) days in the Shanghai suburbs, accounting for 18.3% of the total effective days (942 d). Typical new particle formation days (Event) and new particle growth-shrinkage (Shrinkage) days were 150 d and 32 d, respectively. The frequency of NPF occurrence was the highest in spring and summer, followed by autumn and winter. Compared with non-new particle formation (Non-NPF) days, Event and Shrinkage days had higher temperature and wind speed, lower humidity, less rainfall, and stronger solar radiation. The ratio of Event days was the highest when the prevailing wind was southerly, southwesterly, or westerly, and when the air masses were mainly from the vegetation cover and agricultural planting areas in the Taihu Lake Basin. The prevailing wind directions for Non-NPF and Shrinkage days were northeasterly and easterly to southeasterly. On the Event days, SO_2 and O_3 were higher than that on the Non-NPF days, indicating gaseous sulfuric acid and photochemical reactions were key contributors to new particle formation. Higher PM_{10} concentration was detected on the Event days than on the Non-NPF days, which may be attributed to the photocatalytic reaction. All the pollutant concentrations were the lowest on Shrinkage days, except that of O_3 . The average concentrations of inorganic components of $PM_{2.5}$, such as NH_4^+ , SO_4^{2-} , and NO_3^- were higher on Event than on Non-NPF days in fall, whereas the opposite results were observed in other seasons. The average concentration of organic carbon on Event days was higher than that on Non-NPF days in each season. The concentrations of $PM_{2.5}$ components on Shrinkage days were the lowest. However, the ratio of organic carbon on Shrinkage days was higher than that on Non-NPF days in spring, summer, and winter. The higher ratio of organic carbon on the NPF days than on the Non-NPF days suggested an important role of organic matter in the formation and growth of new particles in the suburbs of Shanghai.

Key words: new particle formation(NPF); shrinkage; Shanghai suburb; meteorological element; chemical composition

众多周知, 气溶胶对空气质量、气候变化、辐射强迫和公众健康有着重要影响, 而新粒子生成是气溶胶的重要来源之一, 特别对云凝结核(CCN)有重要贡献, 与城市细颗粒物的暴发式增长也有着重要关系^[1~3]。研究新粒子生成增长机制对研究全球气候、理解全球大气物理化学过程至关重要, 因此该领域成为大气科学的研究热点。国内外科研工作者在城市、森林、高山和沿海等各类地区观测到新粒子的

生成以及随后的增长过程, 开展烟雾箱模拟、外场观测等实验提出了硫酸-水二元成核、硫酸-氨-水三元成核、硫酸-有机胺-水三元成核、有机物成核、离子诱导成核和碘参与成核等新粒子成核机制^[1, 4~11],

收稿日期: 2019-03-11; 修订日期: 2019-06-12

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0209600)

作者简介: 霍俊涛(1986~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为大气复合污染监测, E-mail: 543396224@qq.com

* 通信作者, E-mail: qingyanf@sheemc.cn

并对新粒子生成后的增长阶段开展研究. 然而现有新粒子成核及增长机制仍然存在很大的不确定性, 特别是目前的成核机制无法完全解释中国城市地区在颗粒物污染(即高凝结汇)背景下频繁发生的新粒子成核现象及相应地成核速率和增长速率. 部分新粒子增长后有缩小过程, 但有关此类天的研究较少, 其具体发生条件和机制研究有限^[12~15].

虽然国内已有大量有关中国新粒子生成的研究, 但仍缺乏基于长期观测数据的分析结果^[16~19]. 目前上海只有 Yao 等^[11]在城区开展的长期新粒子生成研究, 尚无上海郊区的长期观测研究. 本研究基于上海市郊区站点 3 a 的颗粒物粒径谱数据, 通过比较新粒子生成天、非新粒子生成天和新粒子增长-缩小天各污染物浓度、气象要素的差异, 来分析上海郊区新粒子生成特征.

1 材料与方法

1.1 监测站点

淀山湖大气超级站(国家环境保护长三角区域大气复合污染上海淀山湖科学观测研究站), 位于上海市西部郊区(青浦区朱家角镇淀峰村), 如图 1 所示. 该站点距离上海外环约 37 km、青浦城区约 11 km, 紧邻农村居民区, 但人口稀少, 淀山湖东南岸边, 向南约 350 m 为国道沪青平公路, 向南约 1.2 km 为 G50 沪渝高速, 车流量较大. 该站点位于江浙沪交界处和长三角区域输送通道上, 有较强区域代表性. 监测仪器位于超级站南楼 3 楼, 楼高约 12 m, 采样管距离房顶 1.2 m 左右.

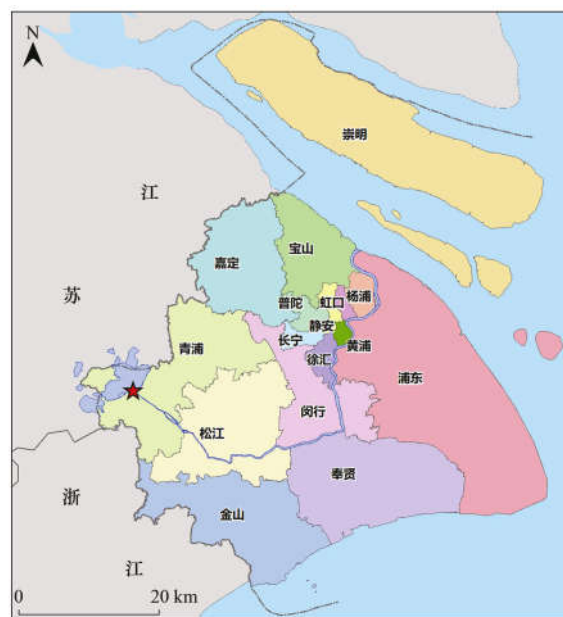
1.2 常规监测因子

常规污染物包括 SO_2 、 NO_x 、 CO 、 O_3 、 PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 等, 仪器分别采用赛默飞世尔 43i、42i、48i、49i、TEOM1405 和 TEOM1405F. 仪器质控质保及数据审核严格按照国家及上海市相关标准与规范执行.

1.3 颗粒物粒径分布

颗粒物粒径测量系统为一套扫描电迁移率粒径谱仪(厂商:美国 TSI; 型号:SMPS3080), 包括一套静电分级器(DMA3081)和一套凝结粒子计数器(CPC3787). 气溶胶样品首先通过放射性中和器(Kr-85), 然后进入 DMA. DMA 通过改变电压来筛选出不同粒径的颗粒物, 被筛选的颗粒物进入 CPC 吸湿长大后被计数.

本研究设置采样周期为 5 min, 粒径范围为 13.3 ~ 750 nm, 样气流速 $0.3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$, 鞘气流速 $3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$. 2015 年 1 月 1 日至 2017 年 12 月 31 日期间, 由于仪器运行维护、故障等原因导致有数据缺



红色五角星位置

图 1 监测点位置示意

Fig. 1 Location of monitoring site

失, 数据缺失的主要时段在 2015 年 11 月 ~ 2016 年 2 月.

1.4 颗粒物化学组分

颗粒物水溶性离子组分由气溶胶在线离子色谱(厂商:瑞士 Metrohm, 型号:MARGA-1S)监测, 其具体工作原理参见文献[20]. MARGA 可在线监测大气中气溶胶水溶性组分和气体, 样品以 $16.7 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ 的流速通过采样管路进入旋转式液膜气蚀器(WRD), 可溶性气体组分被定量吸收. 气溶胶通过 WRD 后被蒸气喷射气溶胶收集器(SJAC)捕获. 已被吸收的气体 and 颗粒物进入吸收液后进入液相色谱分析其各组分含量.

有机碳元素碳在线监测仪(厂商:美国 Sunset, 型号:Model-4)监测有机碳元素碳, 采用美国职业安全与卫生研究所(NIOSH)认可的热学-光学方法检测采集在石英滤膜上的有机碳(OC)与元素碳(EC). 用程序加温的方式, 依序燃烧 OC 与 EC, 经 MnO_2 催化定量转化为 CO_2 气体, 被非分散红外(NDIR)检测器测量; OC 与 EC 的浓度由激光信号值来分割. 具体原理请见相关研究.

1.5 其他仪器

太阳光度计厂商为 Kipp & Zone 公司, 型号为 CMP6; 气象参数主要由一套国产气象五参数监测, 包括风速、风向、温度、湿度和压力.

2 结果与讨论

2.1 新粒子生成天(NPF)判断标准与分类

本研究参考文献[21]的分类方法, 将所有天数

分为新粒子生成天(NPF)、非新粒子生成天(Non-NPF)和其他(Undefined). NPF 天需满足以下两个条件:①事件起始时,核模态(13.6 ~ 30 nm)明显有新的峰值,且持续 1 h 以上;②核模态颗粒物粒径在几个小时内持续增长至爱根模态(30 ~ 100 nm). Undefined 可分为两种:①核模态有新的峰值,持续 1 h 以上,但未增长至爱根模态;②核模态没有新的峰值,但爱根模态有峰值且持续增长. NPF 天可进一步分为典型新粒子生成天(Event)和新粒子增长-缩小天(Shrinkage); Shrinkage 天新粒子增长至爱根模态后存在粒径缩小过程; Event 天则无粒径缩小过程. 由于无法排除机动车早晚高峰影响,因此本研究不考虑夜间新粒子生成过程,除日变化特征和优良率统计外只分析白天(06:00 ~ 18:00)时段数据.

2.2 新粒子生成事件发生频率

2015 年 1 月 1 日至 2017 年 12 月 31 日,淀山

湖大气超级站 NPF、Non-NPF、Shrinkage 和 Undefined 天分别为 172、660、32 和 110 d,各占有效天数(942 d)的 18.3%、70.1%、3.4% 和 11.7%. 如表 1 所示, NPF 天在有效天中占比明显低于国内北京(约 40%)、上甸子(约 36%)、南京(44%)等城市的研究结果,与西安(19%)接近,高于 Yao 等^[11]在上海城区观测的强新粒子生成天的占比(15.6%). 2015 ~ 2017 年 NPF 天分别为 63、58 和 52 d,呈现逐年递减趋势. 随着政府空气污染控制措施逐年加强,与新粒子成核相关的气态前体污染物排放量逐年降低. SO₂ 是新粒子生成重要的气态前体物,3 a 均值分别为 16.8、12.2 和 12.5 μg·m⁻³,这可能是导致新粒子生成天数下降的原因之一,但需要更多地区更长时间的研究进一步验证. 2015 ~ 2017 年 Shrinkage 天分别为 6、20 和 6 d,2016 年明显较多. Undefined 天占比要明显高于南京(2%),但低于芬兰 Hyttialä(37.3%)^[18, 21].

表 1 部分城市的 NPF 天发生概率和气团来向汇总

Table 1 Summary of occurrence probability and air mass direction summary of NPF days in some cities				
地点	点位类型	研究时段(年-月)	Event 天概率	Event 天气团来向
北京	城区 ^[16]	2004-03 ~ 2005-02	平均约 40%, 春季最高、冬秋季次之、夏季最低	北到西北、南到西南
	区域 ^[17]	2008-03 ~ 2009-08	平均 36%, 春冬季最高、夏季最低	西北
上海	城区 ^[11]	2014-03 ~ 2016-02	平均约 15.6%, 春秋冬季高, 夏季最低	/
	城区 ^[22]	2008-10 ~ 2009-02	5.8(冬季)	/
	城区 ^[23]	2013-11 ~ 2014-01	21%(冬季)	/
嘉兴	城区 ^[24]	2015-05	48.4%(春季)	60% 为东到东南
南京	郊区 ^[18]	2012-12 ~ 2013-12	平均 44%, 春夏秋季高、冬季低	/
西安	郊区 ^[25]	2013-11 ~ 2014-12	平均 19%, 春秋季高, 夏冬季低	85% 为北到西北, 15% 为南北、西南
兰州	郊区 ^[26]	2006-06 ~ 2006-07	33.3%(夏季)	夏季西北风、秋冬季西南风、春季无规律
美国匹兹堡	市区 ^[27]	2001-07 ~ 2002-06	平均 30%, 秋季和春季最高、冬季最低	北到西北
芬兰 Hyttialä	森林 ^[21]	1996-01 ~ 2003-12	24.2%, 春季最高、秋夏季次之、冬季最低	

由四类天占比的月度分布可知(图 2), NPF 天月平均占比为 0 ~ 64.5%, 2016 年 7 月占比最高, 1 月和 12 月未监测到 NPF 天, 每年 6 月 NPF 天占比有所降低与江南梅雨季季节持续性降水有关. 淀山湖 NPF 天整体为春夏季发生概率最高, 秋季次之, 冬季最低. 不同地方新粒子生成概率的季节分布特征有显著差异(表 1), 与监测点位四季天气特点、前体物源排放等有关. 月度分布特征每年有所差异, 2015 年 9 月和 10 月 NPF 天占比相对偏高, 分别为 26.7% 和 20.0%, 7 月和 8 月占比相对偏低. 这可能与气候(气温、降水、太阳辐射强度等)年际变化有关, 南京也存在类似情况^[18]. Shrinkage 天月平均占比为 0 ~ 32.3%, 2016 年 8 月最高, 夏季发生概率高, 春秋季次之, 冬季最低, 2016 年夏季 Shrinkage 天占比明显偏高. Undefined 天月平均占比为 0 ~ 35.5%, 2017 年 8 月最高, 整体春夏季占

比高, 2017 年 Undefined 天占比明显高于 2015 年和 2016 年.

特别需要指出淀山湖冬季新粒子生成概率只有

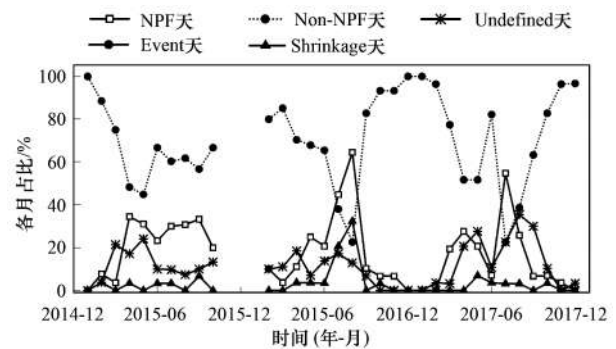


图 2 NPF、Non-NPF、Shrinkage 和 Undefined 天在有效天数中占比的月度分布

Fig. 2 Monthly time series of the fraction of NPF, Non-NPF, Shrinkage, and Undefined days

4.7%,与 Du 等^[22]的研究结果一致,但远低于复旦大学报道的 2013 年冬季上海城区观测结果(21%),也明显低于国内其他城市如北京、南京等站点冬季观测结果,甚至低于芬兰 Hyytiälä 森林地区(8%)^[16, 18, 21, 23].

从图 3 可以看出, NPF 天核模态出现时间在日出后 3h 左右,主要在 09:00~12:00 之间;增长结束时间大部分在日落之前,主要分布在 12:00~18:00 之间.核模态出现时间夏季早、冬季晚,受日出时间影响.部分 NPF 天叠加晚高峰机动尾气排放,平均粒径持续增长至第二天,由于无法排除机动车尾气排放所产生颗粒物的影响,在此认为其增长结束时间为 18:00. Event 天核模态峰值出现时间在 08:00~15:00 之间,主要集中在 09:00~12:00; Shrinkage 天出现时间在 09:00~13:00 之间,主要集中在 09:00~11:00(图 4). 此时段一般太阳辐射较强,光化学过程活跃,有利于气态硫酸等成核物质的生成. Shrinkage 与 Event 天月度占比、核模态峰值出现时间均有类似之处,说明 Shrinkage 天与 Event 天核模态颗粒物的生成有相似之处, Shrinkage 天核模态颗粒物不是源排放的烟羽,为二次气溶胶.

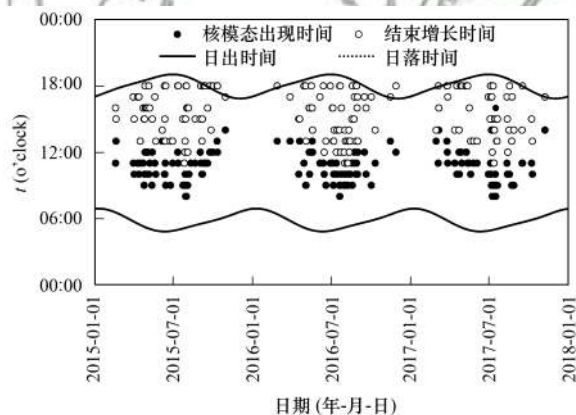


图 3 NPF 天开始时间、结束时间、日出时间与日落时间

Fig. 3 Time series of start time and end time of NPF days, sunrise time and sunset time

2.3 气象要素

Event、Non-NPF 和 Shrinkage 天的平均温度分别为 26.4、17.6 和 29.4℃, Shrinkage 天最高, Non-NPF 天最低(图 5);相对湿度则 Event 天最低(64.1%), Shrinkage 天次之(68.2%), Non-NPF 天最高(76.7%). 各季节的温湿对比结果与 3 a 均值一致. Event 天春季湿度最低,夏季最高;温度夏季最高,冬季最低. 新粒子生成速率与温度呈正相关、与湿度呈反相关,新粒子生成一般发生在晴朗的天气,气温高湿度低有利于新粒子生成^[16, 18, 24]. 春季太阳辐射强度最高,夏季次之,秋冬季最低,

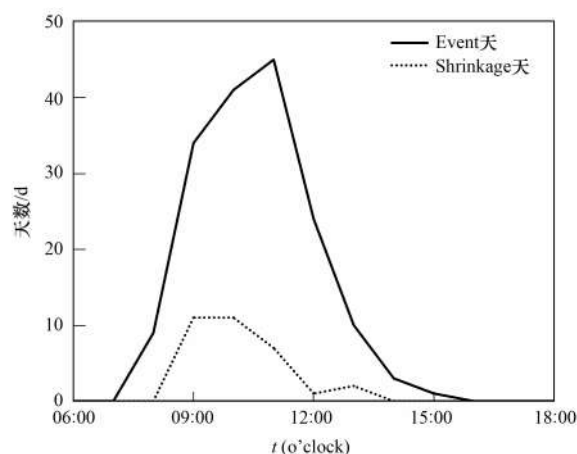


图 4 Event 天与 Shrinkage 天核模态峰值出现时间

Fig. 4 Start time of Event and Shrinkage days

各季节太阳辐射强度均为 Shrinkage 天最高, Event 天次之, Non-NPF 天最低. 太阳辐射强度高,则光化学反应强度大,大气氧化性强,光化学反应对新粒子成核和增长过程中起着关键的作用^[28]. 白天期间, Event 天 3.0% 有降雨量, Non-NPF 天有 15.1% 有降水, Shrinkage 天为 0.5%, 降水对新粒子生成有一定抑制作用,但仍有 19 个 Event 天和 1 个 Shrinkage 天出现过降水过程,小时降雨量在 0.1~10.2 mm, 72.7% 的降雨量小于 1 mm·h⁻¹. 根据已有研究结果,降水对各粒径段颗粒物的清除作用不同,对爱根模态颗粒物清除作用很有限,也就是说降水对新粒子增长过程影响有限^[24, 29]. 与淀山湖站点相距约 50 km 的嘉兴市 2015 年 5 月也有 3 个新粒子生成天存在降雨过程,其降水主要发生在夜间和下午,且 71.2% 的降水量小于 1 mm·h⁻¹^[24].

除冬季外, Event 天和 Shrinkage 天平均风速均大于 Non-NPF 天,其他研究也发现新粒子生成天风速比非新粒子生成天更大^[24]. 这可能是由于 Event 天和 Shrinkage 天温度高、太阳辐射强度高,加速近地大气水平运动. 另外风速加大有利于颗粒物消散、凝结汇降低,因此有助于新粒子生成及后续增长. 从风向分布来看(图 6),春季 Event 天以东南、西南和西风为主,夏季 Event 天以西到西南风为主,秋季以北到东北风和西到西南风为主,冬季以东北风和西南风为主; Non-NPF 天和 Shrinkage 天春夏季以东到东南风为主,秋季以东到东北风为主;冬季 Non-NPF 天以西北风和东北风为主, Shrinkage 天冬季以东风为主. 从各小时风向 Event 天占 3a 总和的占比来看[图 5(e)],西南风占比最高(39%),南风和西风次之(29% 和 28%),发生新粒子生成事件概率较高;东北风与东风占比最低(2% 和 3%). 综上,来自西到西南的气团是 Event 天的重要特征之一,与 Non-NPF 天和 Shrinkage 天有明显区

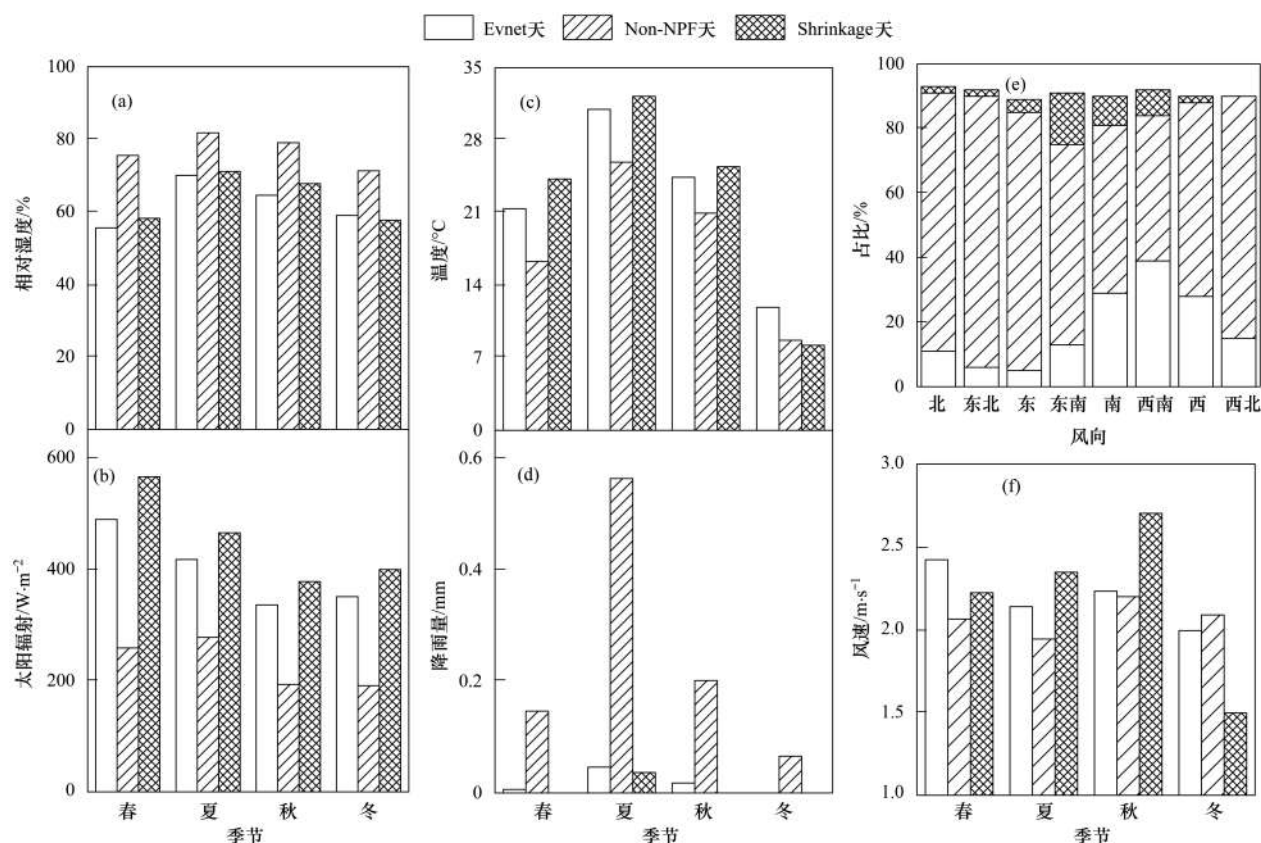


图5 Event、Non-NPF 和 Shrinkage 天温湿度、风速、降雨量、太阳辐射、风速的季节分布和风向分布

Fig. 5 Averaged seasonal variations in temperature, humidity, rainfall, solar radiation, wind speed, and averaged wind direction distribution on Event, Non-NPF, and Shrinkage days

别,由此推测其污染物来源有较大区别。淀山湖大气超级站西到西南面是环太湖流域、植被覆盖及农业种植区,其排放大量生物气溶胶及挥发性有机物(异戊二烯和萜烯等),可为新粒子成核及增长提供重要的前体物。已有大量研究表明新粒子生成天气团来向有明显倾向性,各地气团来向也有很大差异,部分结果如表1所示。Shrinkage 天气团主要来自东南海上气团,湿度相对较高,因此其湿度普遍高于 Event 天。Shrinkage 天虽然也有核模态新粒子生成,但其气团来向与 Event 天有明显差异。

2.4 常规污染物

Event 天的优良率为 49.3%,超标的 71d 里首要污染物为 $\text{PM}_{2.5}$ 占 15.5%、 O_3 占 84.5%。Non-NPF 天和 Shrinkage 天的优良率分别为 68.1% 和 78.1%。Shrinkage 天优良率明显高于 Event 天。3a 中 Event 天 SO_2 、 NO_2 、 NO 、 O_3 小时均值、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 和 CO 白天平均质量浓度分别为 $15.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $28.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $5.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $124.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $47.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $66.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.700 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$, Non-NPF 天分别为 $13.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $40.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $9.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $83.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $54.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $64.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.804 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$, Shrinkage 天分别为 9.1

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $17.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $4.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $110.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $27.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $40.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.546 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 。各季度 Event 天 SO_2 、 O_3 均高于 Non-NPF 天,与上海城区的研究结果一致,但 SO_2 与同属长三角区域的南京研究结果有所不同^[11, 18]; NO_2 均低于 Non-NPF 天; Shrinkage 天除 O_3 外,其他污染物浓度均最低(图 7)。一方面 Event 天和 Shrinkage 天太阳辐射强度和温度相对较高,光化学反应活跃,有利于臭氧生成,另一方面说明 SO_2 与 O_3 在淀山湖各季度新粒子生成及后续增长过程中有着重要作用。大气氧化剂(O_3 等)浓度高有助于 SO_2 氧化生成气态 H_2SO_4 ,进而成核生成新粒子, VOCs 氧化反应加剧,生成半/低挥发性有机物,进而生成二次有机气溶胶促使新粒子生成及后续增长。有研究表明高浓度 NO_x 抑制新粒子生成,降低二次有机气溶胶的产率^[30~32]。淀山湖 Event 天四季 NO_2 均低于 Non-NPF 天,春夏季 NO 略高于 Non-NPF 天,秋冬季则相反。春夏季 Event 天的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度低于 Non-NPF 天,秋冬季反之,而南京四季新粒子生成天 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度均低于非新粒子生成天^[18]。笔者发现淀山湖 Event 天四季 PM_{10} 浓度均高于 Event 天, $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ 值则低于 Non-NPF 天,上甸子 NPF 天也

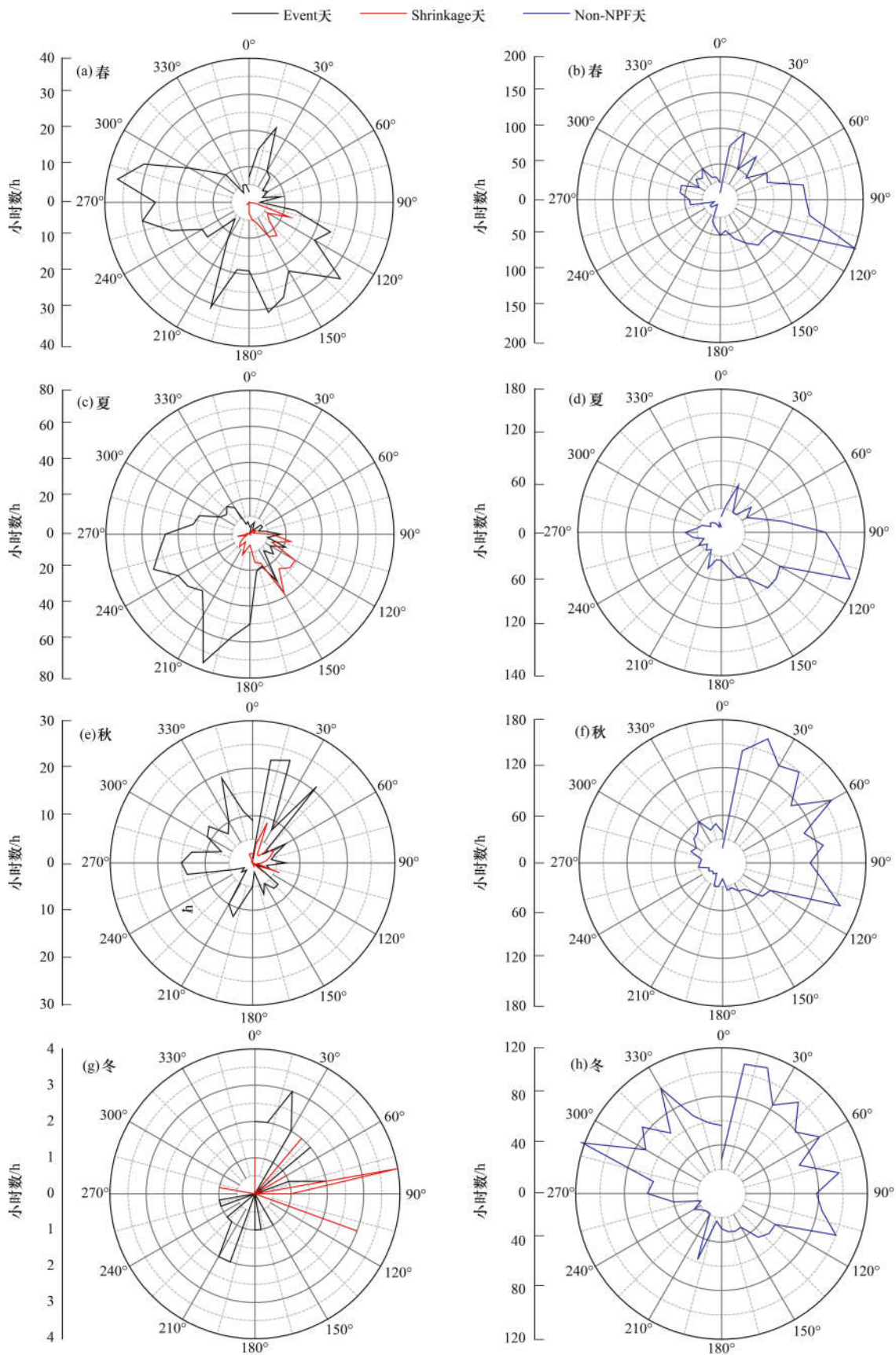


图 6 Event、Shrinkage 和 Non-NPF 天风向分布季节变化

Fig. 6 Seasonal variations in the wind direction distribution on Event, Shrinkage, and Non-NPF days

存在更高 PM_{10} 质量浓度的情况. 已有研究表明沙尘天多相光催化反应是新粒子生成与增长机理之一^[33], 那么 Event 天 $\text{PM}_{2.5-10}$ 浓度高也可能与此机理有关, 后续需要从重金属元素等方面做进一步分

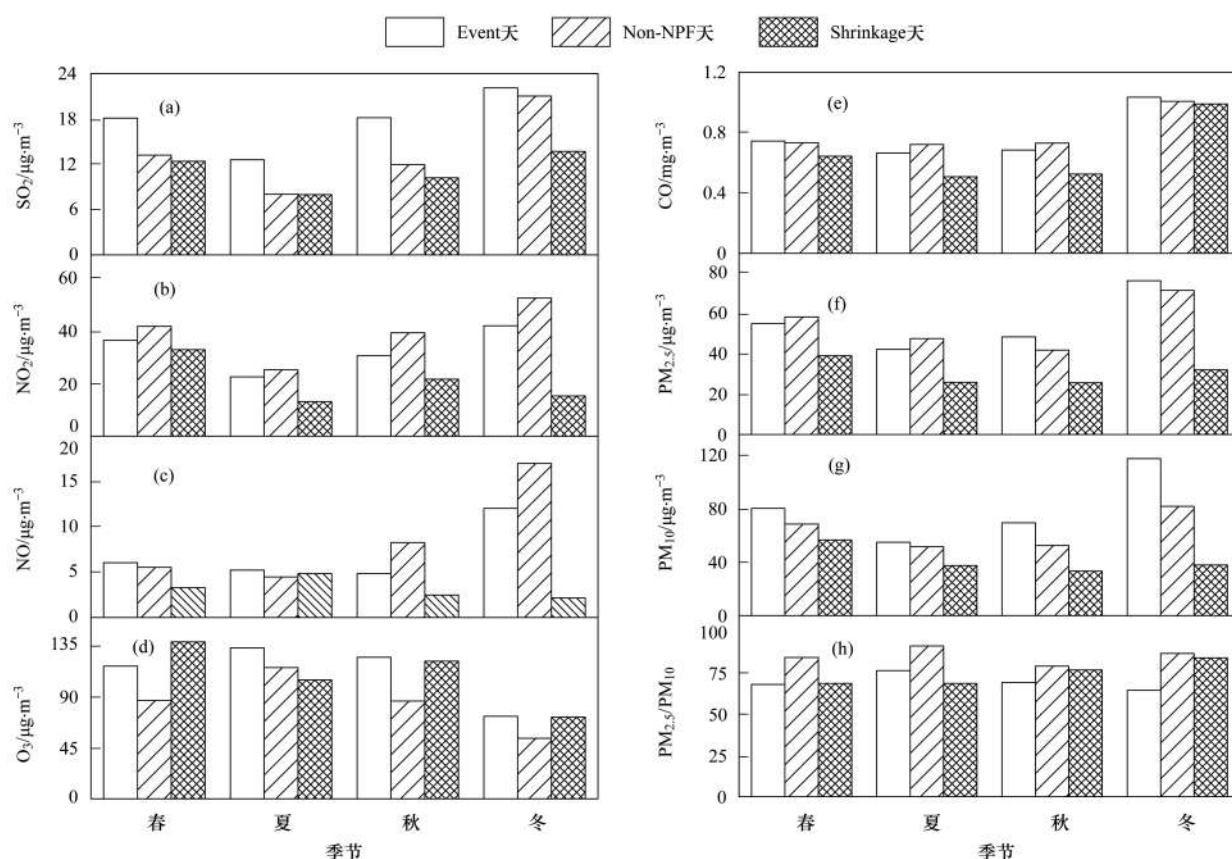


图7 Event、Non-NPF 和 Shrinkage 天 SO_2 、 NO_2 、 NO 、 O_3 、 CO 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 浓度与 $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ 值的季节变化

Fig. 7 Average seasonal variations in SO_2 , NO_2 , NO , O_3 , CO , $\text{PM}_{2.5}$, and PM_{10} concentrations, and $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ values on Event, Non-NPF, and Shrinkage days

析论证. Shrinkage 天 $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ 值也低于 Non-NPF 天. Shrinkage 天主要来自海上气团, 其各季度 SO_2 、 NO_2 、 CO 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 等污染物浓度均最低, 导致 Shrinkage 天新粒子生成后的增长程度有限. Shrinkage 天 O_3 浓度春夏秋冬均高于 Non-NPF 天, 只有夏天低, 而 NO 季节特征则相反.

常规污染物日变化特征(图8)显示 Event 天和 Non-NPF 天 SO_2 浓度晚上凌晨基本一样, 但 Event 天早上 SO_2 上升更快, 08:00 升至最高值, 峰值比 Non-NPF 天早 1 h, 12:00 后 Event 天 SO_2 浓度下降至略低于 Non-NPF 天. Shrinkage 天 SO_2 平均浓度全天均相对较低, 峰值出现最早(07:00). 三类天 O_3 平均浓度在晚上浓度接近, 在白天 14:00 达到峰值, Event 天峰值浓度最高 ($168.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), Shrinkage 天次之 ($147.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), Non-NPF 天最低 ($110.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). NO_2 和 NO 日变化受边界层变化和早晚高峰影响, 但 Event 天和 Shrinkage 天 NO 晚上峰值不明显. 与 Non-NPF 天相比, Event 天和 Shrinkage 天 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度在 12:00 后明显低于 12:00 前. PM_{10} 浓度的日变化呈现双峰态, Event 天和 Shrinkage 天第一个峰值出现在 07:00, 而 Non-NPF 天较晚(10:00). 三类天 $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ 比值在 18:00

前后降至最低点, Event 天和 Shrinkage 天在 06:00 ~ 11:00 之间有个峰值, 与新粒子生成的贡献可能有关.

2.5 $\text{PM}_{2.5}$ 化学组分变化特征

已有研究表明新粒子生成阶段硫酸盐、铵盐的贡献大, 有机物化学组分在增长阶段占主导.^[19, 34, 35] 有研究也表明半挥发性及难挥发性有机物为上海城区新粒子增长的主要贡献组分之一^[11]. $\text{PM}_{2.5}$ 化学组分虽然不能完全代表新粒子生成及增长阶段各化学组分变化, 但可以从整体上反映新粒子生成天的部分理化特性. 3a 的 $\text{PM}_{2.5}$ 化学组分显示, Event 天 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 OC 和 EC 白天平均浓度分别为 5.8 、 7.9 、 6.7 、 6.0 和 $2.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, Non-NPF 天分别为 8.1 、 9.4 、 11.3 、 5.4 和 $2.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, Shrinkage 天分别为 3.1 、 4.6 、 2.6 、 3.5 和 $1.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Shrinkage 天所有组分浓度均最低. Event 天 OC 平均浓度高于 Non-NPF 天, 其他组分则相反.

由三类天 $\text{PM}_{2.5}$ 化学组分季节变化可知(图9), 淀山湖秋季 Event 天 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 无机组分平均浓度高于 Non-NPF 天, 其他季节 Event 天无机组分平均浓度低于 Non-NPF 天. 四季 Event 天有机

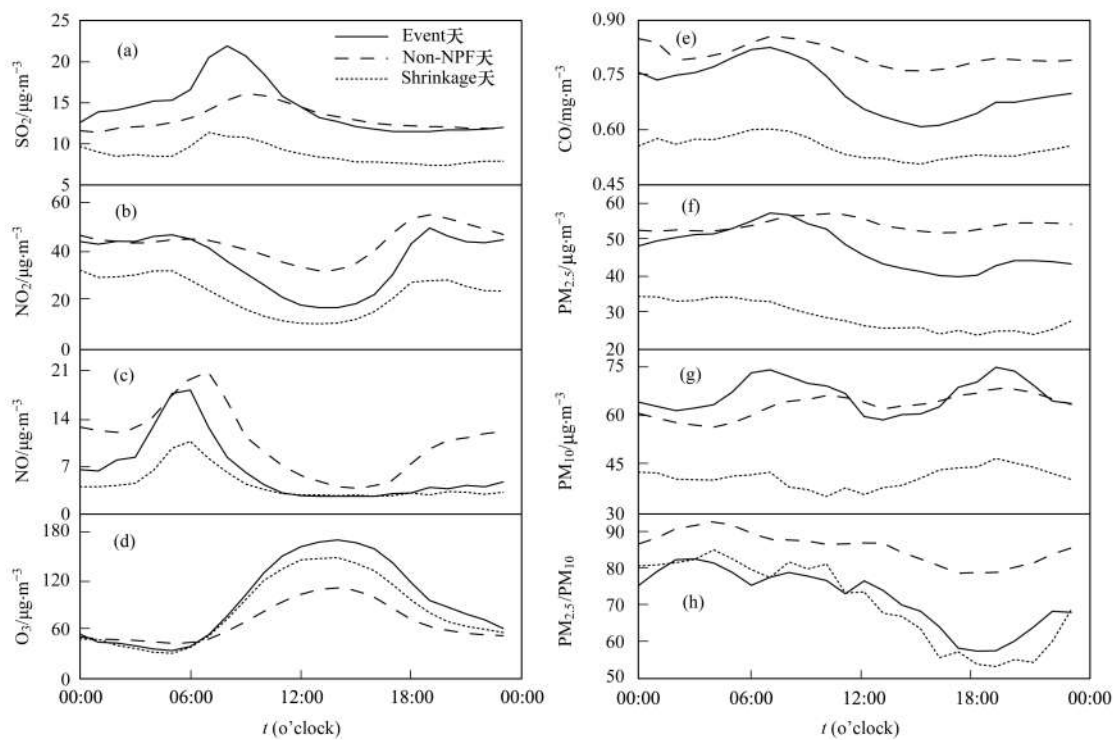


图 8 Event、Non-NPF 和 Shrinkage 天 SO_2 、 NO_2 、 NO 、 O_3 、 CO 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 浓度日变化
Fig. 8 Average diurnal variations in SO_2 , NO_2 , NO , O_3 , CO , $\text{PM}_{2.5}$, and PM_{10} concentrations, and $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ value on Event, Non-NPF, and Shrinkage days

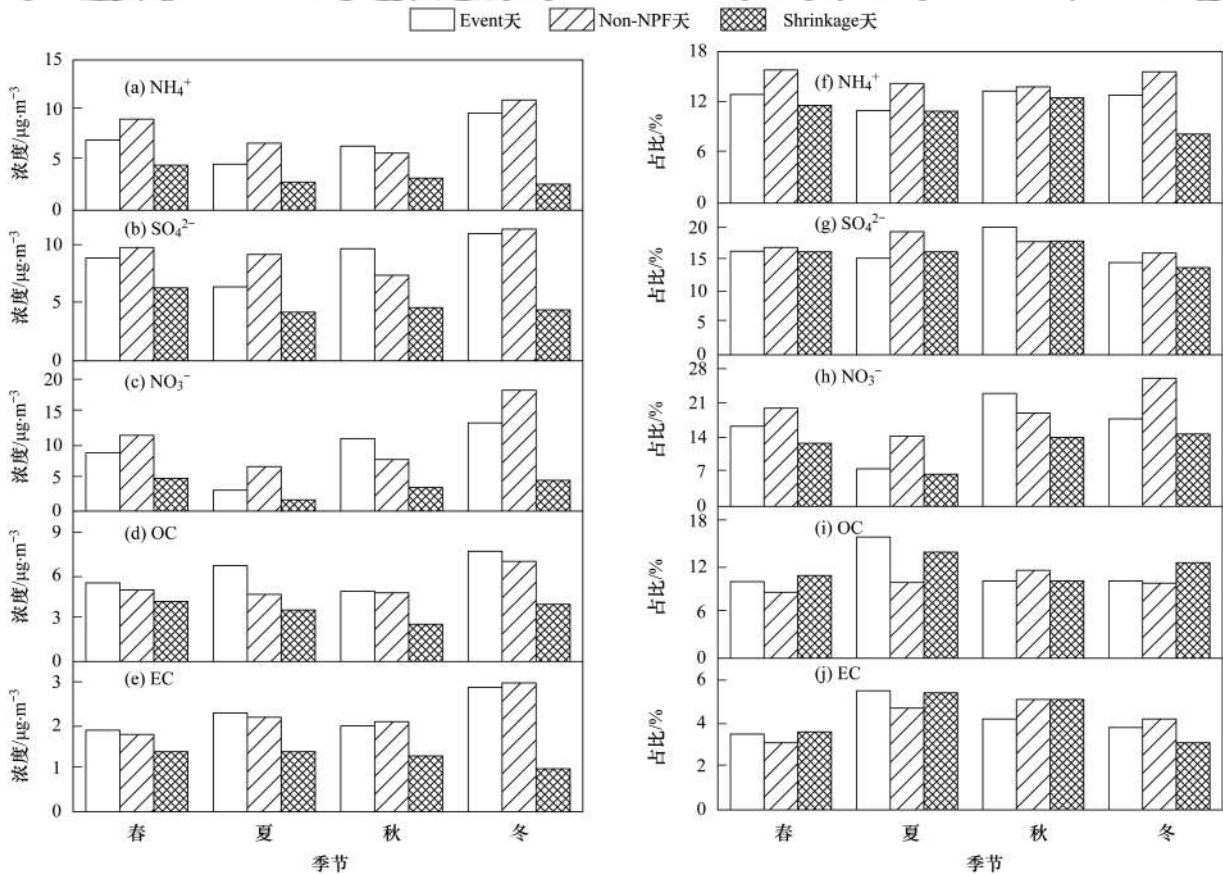


图 9 Event、Non-NPF 和 Shrinkage 天 $\text{PM}_{2.5}$ 化学组分浓度和占比的季节变化

Fig. 9 Average seasonal variations in $\text{PM}_{2.5}$ component concentrations and ratios on Event, Non-NPF, and Shrinkage days

碳平均浓度均高于 Non-NPF 天，因此有机物在淀山湖新粒子生成及增长过程中起着重要作用。Event

天一般温度高、光化学反应强烈, 挥发性或半挥发性有机物与大气氧化剂反应生成半挥发性及难挥发性有机物, 进而对新粒子生成及增长过程有重要贡献。

Event 天无机组分在 $PM_{2.5}$ 中占比秋季最高, 分别为 13.3%、20.2% 和 23.1%, 夏季最低 (图 9); 有机物占比夏季最高 (16%), 春秋冬季基本一样 (10.1%、10.2% 和 10.2%)。虽然 Shrinkage 天 $PM_{2.5}$ 各化学组分平均浓度四季均最低, 但有机碳在 $PM_{2.5}$ 中占比与 Non-NPF 相比, 春夏秋冬均较高 (图 9), 因此有机物在 Shrinkage 天新粒子增长过程中也有着重要作用。

$PM_{2.5}$ 化学组分日变化特征显示 (图 10), 受边界层高度和温度变化的影响, Event、Non-NPF 和 Shrinkage 天 NH_4^+ 、 NO_3^- 等易挥发组分浓度白天低, 晚上高; EC 呈现双峰态, 主要受早晚高峰时段机动车尾气排放影响。Non-NPF 天 SO_4^{2-} 白天浓度持续高, 晚上低, 峰值出现在 15:00; 而 Event 天 SO_4^{2-} 浓度在上午 08:00 达到峰值, 与 Non-NPF 天浓度最接近, OC 在 10:00 达到峰值, 较 SO_4^{2-} 峰值晚 2 h, 结合已有研究结果推测硫酸盐在上海郊区新粒子生成及增长初期贡献比较明显, 有机物则对新粒子后期增长阶段贡献明显^[11,19]。

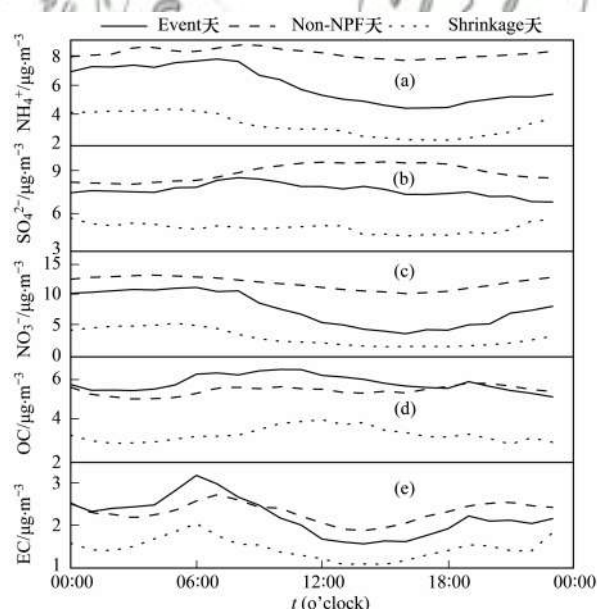


图 10 Event、Non-NPF 和 Shrinkage 天 $PM_{2.5}$ 化学组分浓度的日变化变化

Fig. 10 Average diurnal variations in $PM_{2.5}$ component concentrations on Event, Non-NPF, and Shrinkage days

3 结论

(1) 2015~2017 年上海郊区 NPF 天为 172 d, 占总有效天数 (942 d) 的 18.3%, 其中 Event 天和

Shrinkage 天分别为 140 d 和 32 d, 各占总有效天数 (942 d) 的 14.9% 和 3.4%。春夏季 NPF 天占比高, 秋季次之, 冬季最低。

(2) 气象条件分析结果显示, NPF 天高温低湿、降雨量小、风速大, 太阳辐射对新粒子生成有促进作用。来自西到西南、南风方向的气团发生 Event 天概率高。

(3) Event 天各季度 SO_2 、 O_3 和 $PM_{2.5}$ 有机碳组分平均浓度高于 Non-NPF 天, 表明光化学反应对新粒子生成有着重要促进作用, 气态硫酸和有机物为新粒子成核和增长的重要物种。

(4) Shrinkage 天各季度 SO_2 、 NO_x 、CO、 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 及其化学组分浓度均最低。从季节占比、核模态峰值出现时间、气象条件、常规污染物及有机碳浓度等各方面分析结果来看, Shrinkage 天与 Event 天均有相似之处, 但其气团来向有所差异, Shrinkage 天前体物浓度低导致新生成颗粒物的增长程度有限。

参考文献:

- [1] 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.
- [2] Guo S, Hu M, Zamora M L, *et al.* Elucidating severe urban haze formation in China[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2014, **111** (49): 17373-17378.
- [3] Kulmala M, Petäjä T, Kerminen V M, *et al.* On secondary new particle formation in China[J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2016, **10** (5): 8.
- [4] Kulmala M, Pirjola L, Mäkelä J M. Stable sulphate clusters as a source of new atmospheric particles[J]. *Nature*, 2000, **404** (6773): 66-69.
- [5] Zhang R Y, Suh I, Zhao J, *et al.* Atmospheric new particle formation enhanced by organic acids[J]. *Science*, 2004, **304** (5676): 1487-1490.
- [6] Sipilä M, Berndt T, Petäjä T, *et al.* The role of sulfuric acid in atmospheric nucleation[J]. *Science*, 2010, **327** (5970): 1243-1246.
- [7] Kirkby J, Curtius J, Almeida J, *et al.* Role of sulphuric acid, ammonia and galactic cosmic rays in atmospheric aerosol nucleation[J]. *Nature*, 2011, **476** (7361): 429-433.
- [8] 王志彬, 胡敏, 吴志军, 等. 大气新粒子生成机制的研究[J]. *化学学报*, 2013, **71** (4): 519-527.
- [9] Li Q, Jiang J K, Hao J M. A review of aerosol nanoparticle formation from Ions[J]. *KONA Powder and Particle Journal*, 2015, **32**: 57-74.
- [10] Hoffmann T, O'Dowd C D, Seinfeld J H. Iodine oxide homogeneous nucleation: an explanation for coastal new particle production[J]. *Geophysical Research Letters*, 2001, **28** (10): 1949-1952.
- [11] Yao L, Garmash O, Bianchi F, *et al.* Atmospheric new particle formation from sulfuric acid and amines in a Chinese megacity[J]. *Science*, 2018, **361** (6399): 278-281.
- [12] Yao X H, Choi M Y, Lau N T, *et al.* Growth and shrinkage of

- new particles in the Atmosphere in Hong Kong [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2010, **44**(8): 639-650.
- [13] Young L H, Lee S H, Kanawade V P, *et al.* New particle growth and shrinkage observed in subtropical environments [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(2): 547-564.
- [14] Alonso-Blanco E, Gómez-Moreno F J, Núñez L, *et al.* Aerosol particle shrinkage event phenomenology in a South European suburban area during 2009-2015 [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **160**: 154-164.
- [15] 岳珂利, 钟流举, 沈劲, 等. 珠三角地区大气新粒子增长-缩小过程特征 [J]. *环境污染与防治*, 2016, **38**(3): 1-7.
- [16] Wu Z J, Hu M, Liu S, *et al.* New particle formation in Beijing, China; Statistical analysis of a 1-year data set [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2007, **112** (D9): D09209, doi: 10.1029/2006JD007406.
- [17] Shen X J, Sun J Y, Zhang Y M, *et al.* First long-term study of particle number size distributions and new particle formation events of regional aerosol in the North China Plain [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11** (4): 1565-1580.
- [18] Qi X M, Ding A J, Nie W, *et al.* Aerosol size distribution and new particle formation in the western Yangtze River Delta of China; 2 years of measurements at the SORPES station [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15** (21): 12445-12464.
- [19] Chu B W, Kerminen V M, Bianchi F, *et al.* Atmospheric new particle formation in China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, **19**(1): 115-138.
- [20] Du H H, Kong L D, Cheng T T, *et al.* Insights into ammonium particle-to-gas conversion: Non-sulfate ammonium coupling with nitrate and chloride [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2010, **10**(6): 589-595.
- [21] dal Maso M, Kulmala M, Riipinen I, *et al.* Formation and growth of fresh atmospheric aerosols; Eight years of aerosol size distribution data from SMEAR II, Hyytiälä, Finland [J]. *Boreal Environment Research*, 2005, **10**(5): 323-336.
- [22] Du J F, Cheng T T, Zhang M, *et al.* Aerosol size spectra and particle formation events at urban Shanghai in Eastern China [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2012, **12**(6): 1362-1372.
- [23] Xiao S, Wang M Y, Yao L, *et al.* Strong atmospheric new particle formation in winter in urban Shanghai, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(4): 1769-1781.
- [24] 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.
- [25] Peng Y, Liu X D, Dai J, *et al.* Aerosol size distribution and new particle formation events in the suburb of Xi'an, northwest China [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **153**: 194-205.
- [26] Zhang X H, Zhang Y M, Sun J Y, *et al.* Characterization of particle number size distribution and new particle formation in an urban environment in Lanzhou, China [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2017, **103**: 53-66.
- [27] Stanier C O, Khlystov A Y, Pandis S N. Ambient aerosol size distributions and number concentrations measured during the pittsburgh air quality study (PAQS) [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**(20): 3275-3284.
- [28] Jokinen T, Kontkanen J, Lehtipalo K, *et al.* Solar eclipse demonstrating the importance of photochemistry in new particle formation [J]. *Scientific Reports*, 2017, **7**: 45707.
- [29] Andronache C. Estimated variability of below-cloud aerosol removal by rainfall for observed aerosol size distributions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2003, **3**(1): 131-143.
- [30] Lehtipalo K, Yan C, Dada L, *et al.* Multicomponent new particle formation from sulfuric acid, ammonia, and biogenic vapors [J]. *Science Advances*, 2018, **4**(12): eaau5363.
- [31] Presto A A, Huff Hartz K E, Donahue N M. Secondary organic aerosol production from terpene ozonolysis. 2. effect of NO_x concentration [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, **39**(18): 7046-7054.
- [32] Ng N L, Chhabra P S, Chan A W H, *et al.* Effect of NO_x level on secondary organic aerosol (SOA) formation from the photooxidation of terpenes [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2007, **7**(19): 5159-5174.
- [33] Nie W, Ding A J, Wang T, *et al.* Polluted dust promotes new particle formation and growth [J]. *Scientific Reports*, 2014, **4**: 6634.
- [34] Zhang Q, Stanier C O, Canagaratna M R, *et al.* Insights into the chemistry of new particle formation and growth events in Pittsburgh based on aerosol mass spectrometry [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38** (18): 4797-4809.
- [35] Creamean J M, Ault A P, Ten Hoeve J E, *et al.* Measurements of aerosol chemistry during new particle formation events at a remote rural mountain site [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(19): 8208-8216.

CONTENTS

Characteristics of Aerosol Vertical Distribution over the Yangtze River Delta Region of China in 2018	SHEN Ji, CAO Nian-wen (4743)
Characteristics of Haze Pollution Episodes During Autumn and Winter in 2018 in Shijiazhuang	SU Wen-kang, BAO Xiao-lei, NI Shuang-ying, <i>et al.</i> (4755)
Spatial Temporal Characteristics and Cluster Analysis of Chemical Components for Ambient PM _{2.5} in Wuhan	ZHANG Hui-tao, TIAN Ying-ze, LIU Bao-shuang, <i>et al.</i> (4764)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Ecological and Health Risk Assessment of Atmospheric PM _{2.5} in a Living Area of Zhengzhou City	HE Rui-dong, ZHANG Yi-shun, CHEN Yong-yang, <i>et al.</i> (4774)
Distribution Characteristics and Sources of Metal Elements in Rainwater in Xiamen	WANG Shan-shan, CHENG Yi-feng, YAN Jin-pei, <i>et al.</i> (4783)
First Long-Term Study of Atmospheric New Particle Formation in the Suburb of Shanghai from 2015 to 2017	HUO Jun-tao, WANG Xin-ning, DUAN Yu-sen, <i>et al.</i> (4791)
Characteristics, Transportation, Pathways, and Potential Sources of Air Pollution During Autumn and Winter in Taiyuan	YAN Shi-ming, WANG Yan, GUO Wei, <i>et al.</i> (4801)
Spatial and Temporal Characteristics of Air Quality and Cause Analysis of Heavy Pollution in Northeast China	CHEN Wei-wei, LIU Yang, WU Xue-wei, <i>et al.</i> (4810)
Spatiotemporal Evolution and Driving Mechanism of Aerosol Optical Depth in the Ebinur Lake Basin	CHEN Xiang-yue, DING Jian-li, WANG Jing-zhe, <i>et al.</i> (4824)
Concentration Levels and Impact Factors of Benzene Series in Chinese Residential Building	HOU Bei-bei, YIN Yi-hui, PEI Jing-jing, <i>et al.</i> (4833)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Aromatic Compounds in Shijiazhuang	YANG Yang, LI Xing-ru, LIU Shui-qiao, <i>et al.</i> (4841)
Emission Characteristics Analysis and Health Risk Assessment of Unorganized VOCs in the Carbon Industry, Zhengzhou	ZHANG Yi-shun, WANG Jia, HAN Shi-jie, <i>et al.</i> (4847)
Hazardous Volatile Organic Compound Emission Inventory Study and Its Application in a Typical Chemical Industry in the Yangtze River Delta	LU Jun, HUANG Yi-wei, HUANG Cheng (4856)
Establishment and Characteristics of an Artificial Ammonia Emissions Inventory in Jiangsu Province from 2013 to 2017	HOU Xin-hong, YU Xing-na, SHEN Li, <i>et al.</i> (4862)
Occurrence Characteristics and Health Risks of PAHs on the Surface of Buildings and Devices in the Coking Plant	ZHAO Yi-shu, LIAO Xiao-yong, LI You, <i>et al.</i> (4870)
Contamination Characteristics and Ecological Risk Assessment of Androgens, Glucocorticoids, and Progesterone in the Liusha Bay, South China Sea	YANG Lei, ZHANG Jin-na, XU Min, <i>et al.</i> (4879)
Dynamic Changes in Hydrochemical Characteristics and Influencing Factors in the Karst Watershed Flood Process	YUAN Ya-qiong, SUN Ping-an, SU Zhao, <i>et al.</i> (4889)
Sources, Distribution, and Fluxes of Major and Trace Elements in the Yangtze River	WU Wen-tao, RAN Xiang-bin, LI Jing-xi, <i>et al.</i> (4900)
Contaminant Characteristics and Ecological Risk Assessments of Heavy Metals from River Networks in the Western Area of the Wangyu River	XU Chen, WANG Pei-fang, CHEN Juan, <i>et al.</i> (4914)
Influence of Rainfall Intensity on the Nutrient Loading from an Inflowing River in the Plain River Network of the Taihu Catchment	CHEN Jie, ZHU Guang-wei, XU Hai, <i>et al.</i> (4924)
Distribution and Pollution Assessment of Nutrients and Heavy Metals in Surface Sediments from Shibalianwei Wetland in Hefei, Anhui Province, China	CHEN Shan, XU Fan, XIE San-tao, <i>et al.</i> (4932)
Spatial Distribution Characteristics of Chlorophyll-a and Nutrient Salts in Tributaries of Different River Sections in the Three Gorges Reservoir Area During the Flood Season	YANG Fan, YANG Zheng-jian, JI Dao-bin, <i>et al.</i> (4944)
Endogenous Release of Nitrogen and Phosphorus in the Danjiangkou Reservoir	WANG Zhi-qi, LIU Xin-xing, YAO Zhi-hong, <i>et al.</i> (4953)
Correlation Between Water Purification Capacity and Bacterial Community Composition of Different Submerged Macrophytes	LI Lin, YUE Chun-lei, ZHANG Hua, <i>et al.</i> (4962)
Size-dependent Effects of Zinc Oxide Nanoparticles on Performance and Microbial Community Structure of a Constructed Wetland	WANG Sen, REN Ling, LIU Lin-lin, <i>et al.</i> (4971)
Removal of Nitrogen and Phosphorus from Water by Biomass Carbon of Aquatic Plants	LIU Shu-lei, PENG Hui-jun, YANG Jia-yi, <i>et al.</i> (4980)
Preparation of MgO Modified Lotus Shell Biochar and Its Phosphorus Adsorption Characteristics	WANG Sheng-hua, ZHU Dan-chen, SHAO Jing-ai, <i>et al.</i> (4987)
Effects of Microplastics on Membrane Fouling During a Shortened Ultrafiltration Membrane Process	WANG Bo-dong, XUE Wen-jing, LÜ Yong-tao, <i>et al.</i> (4996)
Preparation and Comparison of Arsenic Removal Granular Adsorbent Based on Iron-Manganese Sludge	ZENG Hui-ping, YU Ya-ping, LÜ Sai-sai, <i>et al.</i> (5002)
Catalytic Degradation of Rhodamine B by FeOCl Activated Hydrogen Peroxide	ZHANG Shao-peng, CHEN Yu, BAI Shu-qin, <i>et al.</i> (5009)
Treatment Effect and Ecological Risk Assessment of Typical Antibiotics in Wastewater from Large-scale Dairy Farms in Tianjin	CHEN Qian, ZHAO Run, MOU Mei-rui, <i>et al.</i> (5015)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in Wastewater Treatment Plants	YAO Peng-cheng, CHEN Jia-yu, ZHANG Yong-ming, <i>et al.</i> (5024)
Start-up and Stable Operation of CANON Coupled with Denitrifying Phosphorus Removal	YIN Wen, CHEN Ya, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (5032)
Control of Sludge Bulking Caused by Unknown Reason Through FeCl ₃ Coupled with Biochemical Methods	WEI Dong-yang, XIAO Cai-lin, ZHOU Wen, <i>et al.</i> (5040)
Effects of Solid Retention Time on the Phosphorus Removal and Nitrosation Granules System	LI Dong, LIU Bo, WANG Wen-qi, <i>et al.</i> (5048)
Start-up of Simultaneous ANAMMOX and Denitrification Process and Changes in Microbial Community Characteristics	SONG Zhuang-zhuang, LÜ Shuang, LIU Zhe, <i>et al.</i> (5057)
Influence of Substrate Exposure Level on ANAMMOX Microbial Activity and Biomass	CHEN Fang-min, GAO Jia-qi, HUANG Yong, <i>et al.</i> (5066)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Heavy Metals in Farmland Soils in the Taige Canal Valley	LI Wei-di, CUI Yun-xia, ZENG Cheng-cheng, <i>et al.</i> (5073)
Method of Dividing the Value of Soil Heavy Metal Pollution Risk Screening: Using Cd as an Example	WANG Rui, ZHANG Feng-lei, XU Shu-shu, <i>et al.</i> (5082)
Mineral Characteristics of Arsenic in the Active Area of the Banbishan Gold Mine and Its Effect on Arsenic Accumulation in Farmland Soil	WEN Qi-qian, YAN Xiu-lan, SHEN Jun-feng, <i>et al.</i> (5090)
Remediation of Cadmium Contaminated Paddy Fields Using Soil Conditioners	ZHOU Li-jun, WU Lin, LIN Xiao-bing, <i>et al.</i> (5098)
Inhibition and Remediation of Methylmercury Contaminated Soil by Use of Modified Montmorillonite	HAN Yi-xin, HE Tian-rong, WANG Zu-bo (5107)
Cerium-manganese Modified Biochar Immobilizes Arsenic in Farmland Soils	LIANG Ting, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, <i>et al.</i> (5114)
Improving Bioremediation of Crude Oil-contaminated Soil by Mild Pre-oxidation	XU Jin-lan, WANG Hui-fang, WANG Rong, <i>et al.</i> (5124)
Community Structure of Heavy Metal Immobilized Bacteria in the Lettuce (<i>Lactuca sativa</i> L.) Rhizosphere in Soil Polluted by Heavy Metals and Its Effects on Reducing Heavy Metal Accumulation in Lettuce	WANG Tie-jun, SU Nan-nan, LEI Peng, <i>et al.</i> (5133)
Impact of Dicyandiamide (DCD) and 3,4-Dimethylpyrazole Phosphate (DMPP) on Ammonia-oxidizing Bacteria and Archaea in a Vegetable Planting Soil	GUO Jun-li, LIU Yi, WEI Wen-xue, <i>et al.</i> (5142)
Effect of Different Reclaimed Water Irrigation Methods on Bacterial Community Diversity and Pathogen Abundance in the Soil-Pepper Ecosystem	CUI Bing-jian, GAO Feng, HU Chao, <i>et al.</i> (5151)
Characteristics of CO ₂ and N ₂ O Emissions Under Two Land Use Types in the Loess Plateau of China	HAN Jia-le, HAO Shan, LIU Zhen-jie, <i>et al.</i> (5164)
Effects of Biochar on N ₂ O Emission from Four Typical Soils in the North China Plain	ZHANG Xiu-ling, SUN Yun, ZHANG Shui-qing, <i>et al.</i> (5173)
Effects of Optimizing Fertilization on N ₂ O and CH ₄ Emissions in a Paddy-Cowpea Rotation System in the Tropical Region of China	HU Yu-lin, TANG Shui-rong, TAO Kai, <i>et al.</i> (5182)