

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



2020

Vol.41 No.1
第41卷 第1期

目次

近20年来中国PM _{2.5} 污染演变的时空过程	时燕, 刘瑞梅, 罗毅, 杨昆 (1)
2007~2016年上海颗粒物浓度特征与气候背景异同分析	郑庆峰, 史军, 谈建国, 段玉森, 林燕芬, 徐卫忠 (14)
夏季大气PM _{2.5} 中元素特征及源解析:以华中地区平顶山-随州-武汉为例	刘威杰, 石明明, 程敏, 黎莹, 朱戈昊, 邢新丽, 孔少飞, 张家泉, 祁士华 (23)
呼包鄂地区冬季、夏季PM _{2.5} 污染特征	李伊明, 刘佳媛, 史国良, 皇甫延琦, 张昕, 杨奕, 冯银厂 (31)
2019年元旦前后石家庄市重污染过程PM _{2.5} 污染特征及来源解析	周静博, 段青春, 王建国, 杨鹏, 刘煥武, 李梅, 靳伟 (39)
基于模型模拟的成都市PM _{2.5} 污染来源解析	许艳玲, 易爱华, 薛文博 (50)
北京市PM _{2.5} 中砷污染特征	石绍萱, 杨艳蓉, 秦娟娟, 周雪明, 段青春, 谭吉华, 陈荣志 (57)
夏秋季宁波市气态元素汞(GEM)污染特征及潜在源区贡献分析	易辉, 林佳梅, 蔡秋亮, 王克强, 陈进生, 佟磊, 李建荣, 肖航 (65)
安阳市大气PM _{2.5} 中水溶性离子季节特征及来源解析	孙有昌, 姜楠, 王申博, 段时光, 张瑞芹 (75)
新乡市夏冬季节PM _{2.5} 稳定碳同位素特征分析	闫广轩, 宋鑫, 张靖雯, 张朴真, 王力鹏, 张佳羽, 杨争, 曹治国, 樊静, 王跃思, 刘子锐 (82)
基于颗粒物化学组分粒径分布特征的源解析方法构建与评估	梁永莉, 田瑛泽, 刘童, 冯银厂 (90)
超低排放改造后燃煤电厂细颗粒物排放特征	王润芳, 马大卫, 姜少毅, 朱仁斌, 何军, 张本耀 (98)
京津冀地区城市臭氧污染趋势及原因探讨	余益军, 孟晓艳, 王振, 周崑, 于红霞 (106)
安阳市近地面臭氧污染特征及气象影响因素分析	杨健, 尹沙沙, 于世杰, 王丽娟, 张瑞芹, 郝建尤, 苏方成, 齐艳杰 (115)
长江三角洲2017年机动车IVOCs排放清单构建及其对SOA的生成影响	王倩, 黄凌, 王杨君, 殷司佳, 张琪, 易鑫, 李莉 (125)
华东典型城市非道路移动机械排气烟度	鲁君, 胡馨遥, 杨强, 唐伟, 夏阳, 井宝莉, 陈昀, 黄成 (133)
国内外储油库VOCs排放现状与标准分析	胡玮, 任碧琪, 黄玉虎, 秦建平, 卞吉玮, 吴清柱 (139)
四乙基愈创木酚液相·OH氧化SOA产率及特征分析:初始浓度的影响	庄雨, 陈彦彤, 李旭东, 马帅帅, 赵竹子, 叶招莲, 盖鑫磊 (146)
乌鞘岭南、北坡降水稳定同位素特征及水汽来源对比	徐秀婷, 贾文雄, 朱国锋, 马兴刚, 张显, 袁瑞丰, 张志远, 石阳 (155)
长江源多年冻土区地下水氢氧稳定同位素特征及其影响因素	汪少勇, 何晓波, 丁永建, 常福宣, 吴锦奎, 胡召富, 王利辉, 杨贵森, 邓明珊 (166)
巴尔喀什湖流域水化学和同位素空间分布及环境特征	沈贝贝, 吴敬禄, 吉力力·阿不都外力, A. S. Saparov, Gulnura Isanova (173)
城市湖泊水环境整治对改善水质的影响:以蠡湖近30年水质变化为例	田伟, 杨周生, 邵克强, 潘辉, 胡洋, 白承荣, 姜星宇, 高光, 汤祥明 (183)
典型药物及个人护理品在黄东海海域水体中的检测、分布规律及其风险评估	陈贤, 张彩杰, 杨桂朋, 张婧, 刘梦 (194)
长江南京段水源水中有机磷酸酯的污染特征与风险评估	李栋, 张圣虎, 张芹, 王博, 卜元卿, 赵欣, 李辉, 宋宁慧, 郭瑞昕 (205)
雄安新区-白洋淀冬季冰封期水体溶解性有机物的空间分布、光谱特征及来源解析	周石磊, 孙悦, 张艺冉, 蒋永丰, 尹璐, 黄廷林, 李再兴, 罗晓, 战江, 王函 (213)
白洋淀表层沉积物元素的空间特征、风险评价及来源分析	汪敬忠, 刘卓, 魏浩, 吴玉会, 占水娥, 朱迟, 张益森 (224)
松花江表层沉积物PAEs分布特征及生态风险评价	王欢, 杨永哲, 王海燕, 董伟丰, 闫国凯, 常洋, 李泽文, 赵远哲, 凌宇 (232)
鄱阳湖湖口-长江段沉积物中微塑料与重金属污染物的赋存关系	李文华, 简敏菲, 刘淑丽, 江玉梅, 邓艳彬, 朱琳 (242)
臭氧对生物活性炭中微生物及出水消毒副产物的影响	刘宝明, 王夕希, 张晓夏, 顾艳芳, 李雨平, 阮文权, 缪恒峰, 潘杨 (253)
兰州市西固区儿童饮水重金属暴露与健康风险精细化评估	陈月芳, 孙善伟, 段小丽, 许锦荣, 王娟, 康艺瑾, 梁为纲, 曹素珍 (262)
镁铁层状双金属氢氧化物对磷酸盐的吸附作用及对内源磷释放的控制效果及机制	吴俊麟, 林建伟, 詹艳慧, 程永前, 柏晓云, 辛慧敏, 常明玥 (273)
一硫代磷酸盐在介质上的吸附特征及机制	廖丹雪, 单慧媚, 彭三曦, 潘敖然, 黄健, 陈辉, 赵超然 (284)
酸碱复合改性海泡石亚结构特征及其对Cd(II)吸附性能	谢厦, 徐应明, 闫翠侠, 罗文文, 孙约兵 (293)
脱氮菌剂在低溶解性黑臭水体中氮代谢特征	赵志瑞, 刘硕, 李铎, 李海萍, 李方红, 张佳瑶, 白志辉 (304)
宏基因组方法分析医药化工废水厂中抗生素耐药菌及耐药基因	陈红玲, 张兴桃, 王晴, 姚沛琳 (313)
淀粉废水处理系统中活性污泥的微生物群落结构及多样性分析	赵婷婷, 乔凯, 王蕾, 张伟, 竺建荣, 唐一, 胡滨, 王香莲, 杨静, 景在涛 (321)
基于SBR-ABR实现PN-SAD耦合工艺的运行与优化调控	陈重军, 张敏, 姜滢, 郭萌蕾, 谢嘉玮, 谢军祥, 沈耀良 (330)
基于间歇饥饿的SNAD工艺运行	李冬, 刘志诚, 徐贵达, 王玉颖, 张杰 (337)
反硝化-高效部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺处理老龄垃圾渗滤液	陈小珍, 汪晓军, Karasuta Chayangkun, 周松伟, 钟中, 陈振国, 陈晓坤 (345)
硝化微颗粒污泥快速培养及其亚硝化功能快速实现	刘文如, 宋家俊, 王建芳, 沈耀良 (353)
高频曝停下曝时间对亚硝化颗粒污泥性能的影响	张杰, 劳会妹, 李冬, 魏子清 (360)
中国东北沈抚地区土壤中PBDEs的残留、来源及风险评价	向鑫鑫, 鲁垠涛, 阮起扬, 赖偲, 孙绍斌, 姚宏, 张战胜 (368)
某焦化场地非均质包气带中多环芳烃(PAHs)来源及垂向分布特征	孟祥帅, 吴萌萌, 陈鸿汉, 岳希, 陶抒远 (377)
北京蔬菜地土壤中抗生素抗性基因与可移动元件的分布特征	张汝凤, 宋渊, 高浩泽, 程首涛, 孙艳梅, 王旭明 (385)
长期施肥和耕作下紫色土坡耕地土壤C、N、P和K化学计量特征	杜映妮, 李天阳, 何丙辉, 贺小容, 付适 (394)
亚热带稻田土壤碳氮磷生态化学计量学特征	宋佳龄, 盛浩, 周萍, 段良霞, 周清, 张杨珠 (403)
宛山荡农田土壤氮迁移过程反硝化与厌氧氨氧化	陈志浩, 覃云斌, 丁帮琛, 胡优优, 陈湜, 李正魁 (412)
秸秆炭化还田对滴灌棉田土壤微生物代谢功能及细菌群落组成的影响	王晶, 马丽娟, 刘泽华, 陆伟, 侯振安 (420)
基于PMF模型的九龙江流域农田土壤重金属来源解析	黄华斌, 林承奇, 胡恭任, 于瑞莲, 郝春莉, 陈枫桦 (430)
塔里木盆地东南缘绿洲区土壤砷空间分布及农作物砷富集特征	陈云飞, 周金龙, 曾妍妍, 王松涛, 杜江岩, 孙英, 顾思博 (438)
广西典型碳酸盐岩区农田土壤-作物系统重金属生物有效性及迁移富集特征	马宏宏, 彭敏, 刘飞, 郭飞, 唐世琪, 刘秀金, 周亚龙, 杨柯, 李括, 杨峥, 成杭新 (449)
不同钝化剂对微碱性土壤镉、镍形态及小麦吸收的影响	张静静, 朱爽阁, 朱利楠, 柳海涛, 杨金康, 化党领 (460)
不同钝化剂对鸡粪堆肥重金属钝化效果及其腐熟度指标的影响	栾润宇, 高珊, 徐应明, 纪艺凝, 闫翠侠, 孙约兵 (469)
黄土丘陵区退耕草地土壤呼吸及其组分对氮磷添加的响应	周俊杰, 陈志飞, 杨全, 赖帅彬, 王智, 徐炳成 (479)
炉渣与生物炭施加对福州平原水稻田温室气体排放的后续影响	蓝兴福, 王晓彤, 周雅心, 金强, 许旭萍, 王维奇 (489)
《环境科学》征订启事(89)	
《环境科学》征稿简则(97)	
信息(303, 329, 344)	

2019 年元旦前后石家庄市重污染过程 $\text{PM}_{2.5}$ 污染特征及来源解析

周静博¹, 段菁春^{2,3}, 王建国¹, 杨鹏⁴, 刘焕武⁵, 李梅⁶, 靳伟^{1*}

(1. 河北省石家庄环境监测中心, 石家庄 050022; 2. 中国环境科学研究院, 北京 100012; 3. 国家大气污染防治攻关联合中心, 北京 100012; 4. 石家庄市气象局, 石家庄 050081; 5. 西安市环境监测站, 西安 710119; 6. 暨南大学质谱仪器与大气环境研究所, 广州 510632)

摘要: 2018 年 12 月 30 日至 2019 年 1 月 15 日石家庄市发生了连续的灰霾天气, 出现 12 个重污染天, 首要污染物均为 $\text{PM}_{2.5}$ 。本文从污染演变、时空分布、组分分析、污染来源和气象因素等多方面展开分析探讨污染成因。结果表明, $\text{PM}_{2.5}$ 主要成分为二次无机离子 (65.4%), 主要来源为燃煤 (24.4%) 和工业工艺源 (23.7%)。随污染加剧 SO_4^{2-} 占比和二次无机源贡献均大幅增加。先后受来自偏南-东南和偏西-西南方向低空气团及特殊地形、静稳高湿、近地逆温等不利气象条件影响, 燃煤、工业和机动车尾气等一次源产生的污染物在太行山前快速积累, 气态污染物二次转化和颗粒物吸湿增长推高 $\text{PM}_{2.5}$, 硫酸盐暴式增长加剧污染发生。建议重污染应急响应期间在确保各项减排措施落实到位情况下, 加强二次无机组分前体物 SO_2 、 NO_x 及 NH_3 排放源的管控, 并重点关注 SO_2 排放源 (散煤等), 同时加强市区东北方向新乐、无极、深泽、晋州和行唐区县大气排放源管理, 减少局地传输影响。

关键词: 重污染; $\text{PM}_{2.5}$; 污染特征; 成因; 来源解析; 石家庄市

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)01-0039-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.201906085

Analysis of Pollution Characteristics and Sources of $\text{PM}_{2.5}$ During Heavy Pollution in Shijiazhuang City Around New Year's Day 2019

ZHOU Jing-bo¹, DUAN Jing-chun^{2,3}, WANG Jian-guo¹, YANG Peng⁴, LIU Huan-wu⁵, LI Mei⁶, JIN Wei^{1*}

(1. Shijiazhuang Environmental Monitoring Station of Hebei Province, Shijiazhuang 050022, China; 2. Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China; 3. National Joint Research Center for Tackling Key Problems in Air Pollution Control, Beijing 100012, China; 4. Shijiazhuang Meteorological Bureau, Shijiazhuang 050081, China; 5. Xi'an Environmental Monitoring Station, Xi'an 710119, China; 6. Institute of Mass Spectrometer and Atmospheric Environment, Jinan University, Guangzhou 510632, China)

Abstract: We report on successive haze weather that occurred in Shijiazhuang City, China, from December 30, 2018 to January 15, 2019. There were 12 days of heavy atmospheric pollution during this period, which primarily involved aerosol fine particulate matter ($\text{PM}_{2.5}$). This study analyzes the causes of the pollution using component analysis and by assessing pollution evolution, spatial and temporal distributions of $\text{PM}_{2.5}$, pollution sources, and meteorological factors. The results showed that $\text{PM}_{2.5}$ was mainly composed of secondary inorganic ions (65.4%) that were mainly sourced from coal combustion (24.4%) and industrial sources (23.7%). The contributions of sulfate and secondary inorganic sources increased significantly with increasing pollution. Pollution was affected by unfavorable meteorological conditions (e.g., a low air mass) and by the particular local terrain, static stability, high humidity, and near-ground reverse temperatures from the south-southeast and west-southwest directions. Contaminants from primary sources including coal combustion, industry, and motor vehicle exhausts accumulated quickly in front of the Taihang Mountains. Secondary transformation of gaseous pollutants and increasing moisture absorption of particulate matter increased $\text{PM}_{2.5}$ concentrations. Sulfate explosion also increased pollution. We recommend that as part of emergency responses to heavy pollution events, emissions reduction measures should be implemented to strengthen the control of SO_2 , NO_x , and NH_3 emission sources of secondary inorganic precursors, especially SO_2 emission sources (i.e., coal etc.). We further propose a strengthen of the management of atmospheric emission sources in Xinle, Wujia, Shenze, Jinzhou, and Xingtang counties in the northeast of the city to reduce the impact of local transmission.

Key words: heavy pollution; $\text{PM}_{2.5}$; pollution characteristics; pollution cause; source resolution; Shijiazhuang City

近年来,京津冀地区经济快速发展,环境问题日趋严重,空气污染问题尤为突出。特别是 2013 年以来,区域大范围重污染天气过程频发,引起社会各界关注^[1,2]。石家庄市作为河北省省会,地处河北省中南部,是京津冀经济圈重要城市之一,同时也是全国空气污染最为严重城市之一。2013 年后空气质量标

准和评价体系发生了新的变化^[3],石家庄市政府加大了对空气污染的治理力度,空气质量状况取得明

收稿日期: 2019-06-11; 修订日期: 2019-07-23

基金项目: 国家重点研发计划项目 (2016YFC0208900); 大气重污染成因与治理攻关项目 (DQGG0303)

作者简介: 周静博 (1985~), 女, 硕士研究生, 高级工程师, 主要研究方向为环境监测, E-mail: 616570625@qq.com

* 通信作者, E-mail: jiwei65815@126.com

显改善. 2018 年中国生态环境状况公报^[4]显示, 石家庄市 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度为 $72 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 比 2013 年 ($126 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 改善 42.9%, 比 2017 年 ($86 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 改善 16.3%, 但仍超出国家环境空气质量二级标准年均限值 ($35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 1.06 倍, 空气质量在全国 169 个城市中排名位居倒数第二. 文献^[5]中指出, 2018~2019 年秋冬季石家庄市 $\text{PM}_{2.5}$ 平均浓度为 $100 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 重污染天数为 38 d, 均为“2+26”城市中最高 3 个城市之一, 大气污染问题仍较为突出. 目前已有众多学者从天气背景及气象条件^[6~8]、 $\text{PM}_{2.5}$ 时空分布及污染特征^[9~12]、大气颗粒物化学组分特征及来源解析^[13~16]等多个方面对石家庄市空气重污染过程进行研究, 但多侧重于单一因素的影响探讨, 较少涉及从区域污染演变、组分特征、污染特征雷达、在线源解析和气团传输等多方面及多指标耦合研究重污染成因.

2019 年元旦前后, 京津冀及周边地区经历了一次大范围、长时间、较复杂的区域性大气重污染过程. 石家庄作为污染较重的城市之一, 在本轮过程中共出现 12 个重污染天, 部分国控站点甚至出现小时空气质量指数 (AQI) “爆表”现象, 为整个秋冬季细颗粒物污染最重、污染时间最长的一次重污染过程. 本文从污染演变、 $\text{PM}_{2.5}$ 时空分布、成分特征、来源解析、气象因素等多方面对本次重污染过程展开分析, 探讨重污染过程成因, 以期对石家庄市大气污染治理提供参考依据.

1 材料与方法

1.1 资料来源

本研究时段为 2018 年 12 月 30 日至 2019 年 1 月 15 日, 将石家庄市的污染过程划分为两个阶段 (2018 年 12 月 30 日至 2019 年 1 月 9 日、1 月 10 日至 15 日) 进行分析. 气象监测数据 (风速、风向和相对湿度) 来自中国气象局的国家气象信息中心平台 (<http://data.cma.cn/site/index.html>), 常规污染物 ($\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 SO_2 、 NO_2 、 CO 和 O_3) 实时监测数据来自中国环境监测总站的全国城市空气质量实时发布平台 (<http://106.37.208.233:20035>) 和河北省环境空气质量实时自动发布系统 (<http://121.28.49.85:8080/>), $\text{PM}_{2.5}$ 主要组分 (EC、OC、元素、水溶性离子) 浓度、在线源解析实时数据及激光雷达数据均来自中国环境监测总站的京津冀及周边综合立体观测数据共享平台 (<http://123.127.175.60:8765/siteui/index>), 天气形势分析图来自中国气象局 (<http://m.nmc.cn/publish/observations>), 气团

后向轨迹图来自美国国家海洋和大气管理局 (NOAA) 发布的用于计算和分析大气污染物输送、扩散轨迹的后向轨迹模式系统 HYSPLIT (http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php).

1.2 研究方法

1.2.1 污染特征雷达图

区域污染特征雷达图是一种在常规监测数据基础上, 通过数学算法扣除平均浓度和成分谱等共性特征, 所获得的一种有效反映区域多站点在空间上污染特征差异性的分析方法. 其包含的污染物因子包括 SO_2 、 NO_2 、 CO 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和粗颗粒 (PM_{10} 中扣除 $\text{PM}_{2.5}$ 的部分), 设计思路、数据前处理算法和划分污染类型的定量指标可参见段菁春^[17]等对于雷达图的设计及应用. 区域污染雷达图包括如下 6 种类型: 偏综合型 (污染由污染物累积和混合造成)、偏二次型 (二次转化是污染形成的主要原因)、偏粗颗粒型 (沙尘和扬尘是造成污染出现的主要原因)、偏机动车型 (污染主要由机动车排放造成)、偏燃煤型 (污染主要来自燃煤影响) 及其他类型.

1.2.2 硫酸化速率和氮氧化速率

硫酸化速率 (SOR) 和氮氧化速率 (NOR) 可用来反映 SO_2 和 NO_x 等气态污染物转化为二次气溶胶的程度^[18]. 其值越高, 表明气态污染物的氧化程度越高, 计算公式^[19]分别为:

$$\text{SOR} = \frac{n(\text{SO}_4^{2-})}{n(\text{SO}_4^{2-}) + n(\text{SO}_2)} \quad (1)$$

$$\text{NOR} = \frac{n(\text{NO}_3^-)}{n(\text{NO}_3^-) + n(\text{NO}_2)} \quad (2)$$

式中, n 指对应成分的物质的量 (mol).

1.2.3 $\text{PM}_{2.5}$ 来源解析方法

利用单颗粒气溶胶质谱仪 (SPAMS)^[20] 分析了 $\text{PM}_{2.5}$ 实时来源解析. 参照文献^[21], 结合本地的能源和产业结构, 将石家庄市大气细颗粒物污染来源归结为 7 类, 分别为: 燃煤、工业工艺 (非燃烧产生的颗粒)、机动车尾气、扬尘、生物质燃烧、纯二次无机源及其它. 其中, 燃煤源包含燃煤电厂、锅炉等排放的颗粒; 工业工艺源包含化工、金属冶炼等工艺过程排放的颗粒; 扬尘源包含建筑扬尘、道路扬尘、土壤尘等; 生物质燃烧源主要是秸秆、野草等的焚烧及生物燃料燃烧产生的颗粒; 机动车尾气源包含柴油车、汽油车等交通工具排放的颗粒; 二次无机源是指质谱图中只含有硫酸盐、硝酸盐、铵盐等二次离子成分的颗粒物, 这类型颗粒可以在一定程度上反映大气二次反应的强度; 未包含在上述源类以及未被识别的颗粒物归于其它源^[22].

2 结果与讨论

2.1 区域污染演变过程

2019 年元旦前后,京津冀及周边地区经历了一次区域性大气重污染过程,污染范围包括京津冀中南部、山西南部、山东中西部、河南北部城市(图

1),时间跨度从 2018 年 12 月 30 日到 2019 年 1 月 15 日,历时 17 d,区域大部分城市小时 AQI 均达到严重污染级别. 石家庄共出现 8 个重度污染天、4 个严重污染天,首要污染物均为 $\text{PM}_{2.5}$. 与“2+26”城市 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度平均值相比(图 2),在污染初期,石家庄市处于区域平均水平,污染后期处于偏高水平.

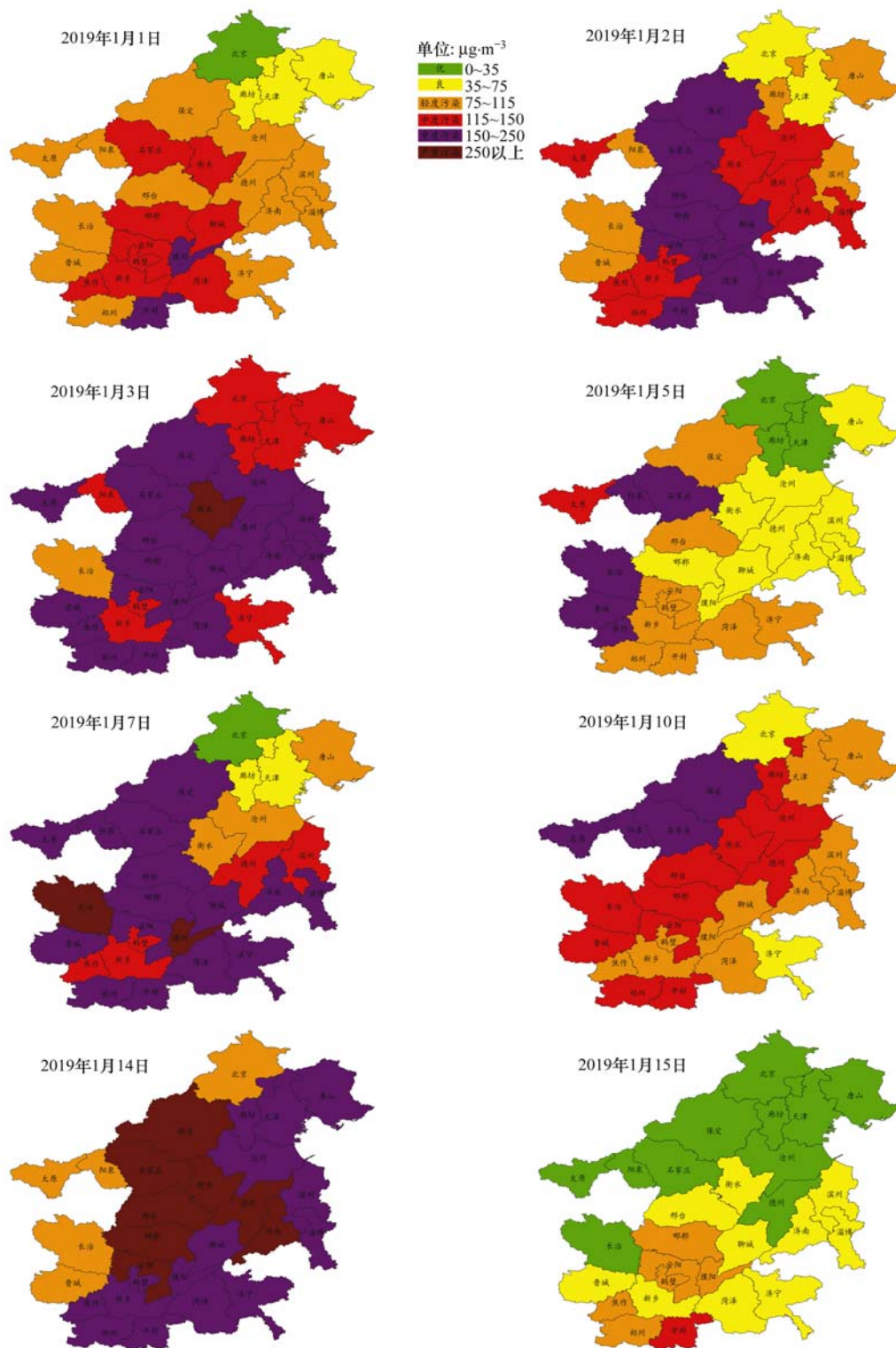


图1 “2+26”城市 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度空间分布(00:00~23:00)

Fig. 1 $\text{PM}_{2.5}$ concentration spatial distribution map of “2+26” urban(00:00-23:00)

区域共经历了3次从污染加重到清除的过程,第1次出现在2018年12月30日至2019年1月5日,重污染主要集中在区域中南部,尤其是南部的安阳、濮阳、菏泽、开封等地均达到严重污染.石家庄市于12月31日转为重度污染,率先成为 $PM_{2.5}$ 浓度高值区.1月5日区域污染基本得到清除,但位于区域西部(阳泉、太原、石家庄)和西南部(长治、晋城、焦作)的少数城市仍处于重度污染,未得到有效清除;第2次出现在1月6~9日,重污染波及范

围相对较小且污染时间短,只在1月7日区域西部、南部的部分城市达到重污染,1月9日区域污染全部得到清除;第3次出现在1月10~15日,与前两次相比,本次污染程度最重、持续时间最长、涉及范围最广.污染从区域的西北部开始,并逐渐向东南部扩展,中部的保定、石家庄、邢台、邯郸、安阳等城市污染最重,多地出现AQI“爆表”.1月15日随着冷空气到来,区域空气质量基本降为优良水平,重污染过程结束.



图2 “2+26”城市 $PM_{2.5}$ 浓度时间序列

Fig. 2 $PM_{2.5}$ concentration time series of “2+26” urban

2.2 石家庄市污染特征分析

2.2.1 时间分布特征

第一阶段污染持续时间较长,重污染日长达8 d,但各项污染物浓度攀升较为缓慢(图3). $PM_{2.5}$ 浓度维持在 $200 \sim 250 \mu g \cdot m^{-3}$ 间, $PM_{2.5}/PM_{10}$ 值在 $0.6 \sim 0.7$ 间,细颗粒物污染严重. SO_2 浓度在污染前期相对较高,且比 NO_2 更早到达峰值. NO_2/SO_2 值在 $1.00 \sim 5.36$ 间,均值为2.73.与污染前期相比,在污染逐渐加重中 NO_2/SO_2 值呈现升高趋势,可见随污染加重 NO_2 累积明显,而 SO_2 更易发生转化.1月8日污染开始逐渐减轻, SO_2 浓度在1月9日达到整个重污染时段峰值($122 \mu g \cdot m^{-3}$),为下一阶段污染累积了前体物.

第二阶段污染程度较重,连续出现4个严重污染日和1个重度污染日.各项污染物浓度均出现较大幅度增加,尤其是颗粒物在数小时内出现数十倍飙升, $PM_{2.5}$ 在1月12日达到整个污染时段峰值浓度($512 \mu g \cdot m^{-3}$),出现“爆表”. $PM_{2.5}/PM_{10}$ 值在 $0.7 \sim 0.8$ 间,较第一阶段增加,细颗粒物污染加剧. SO_2 浓度一直处于 $30 \mu g \cdot m^{-3}$ 以下,最低仅为 $7 \mu g \cdot m^{-3}$.而 NO_2 累积更为明显,浓度在 $120 \sim 150 \mu g \cdot m^{-3}$ 间.与第一阶段相比, NO_2/SO_2 值($6.04 \sim$

11.1)大幅增加, SO_2 发生强烈二次转化.

特征雷达图显示(图4),在第一阶段污染以偏综合性为主,说明污染由各类源排放的污染物通过累积和混合等综合因素造成;在第二阶段污染特征发生变化,呈现明显的偏二次型,说明来自一次排放源污染物的二次转化反应较为明显.

2.2.2 $PM_{2.5}$ 空间分布特征

污染期间市区空气质量整体优于周边区县,重污染地区较为集中,并存在明显的污染扩散与转移.石家庄东北部污染较重,其中无极和新乐最重.西部地区空气质量相对较好.每次污染过程均从东北部开始,并逐渐向西部扩散与推移(图5).

第一个阶段污染从东部的无极、晋州和深泽开始,并逐渐扩散至东北部、东南部,后期污染呈现从东部向西部传输的趋势,西部空气质量整体较重.随冷空气到来,1月8~9日各区县污染逐步清除,但西部的井陉、平山仍处于重度污染水平.

第二阶段污染演变过程及污染程度与第一阶段均有所不同.污染先从北部的新乐、行唐和正定开始并快速加剧,1月11日~14日各区县均处于严重污染水平,多地多次出现小时AQI“爆表”.后期污染严重区域由中部扩散至整个中东部,其中新乐

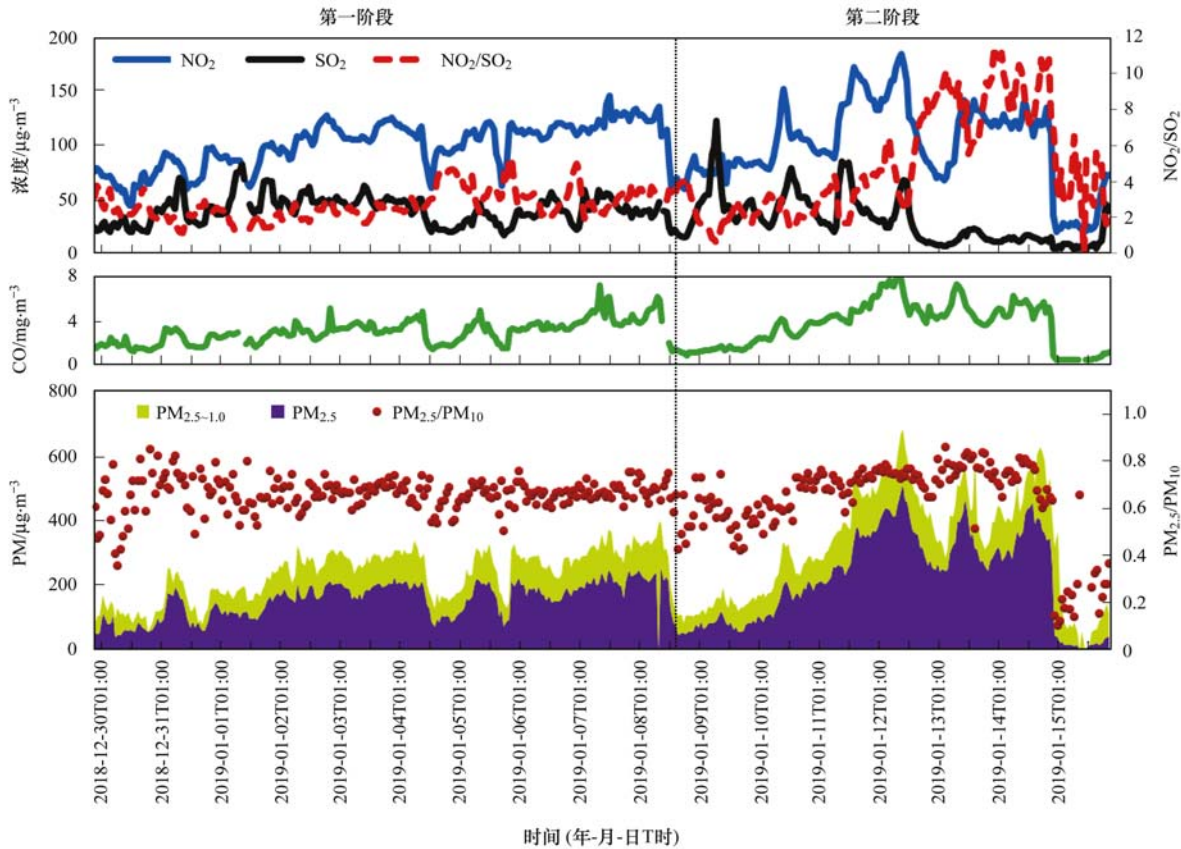


图3 石家庄市常规污染物浓度逐时变化
Fig. 3 Changes in the hourly concentrations of six contaminants in Shijiazhuang City

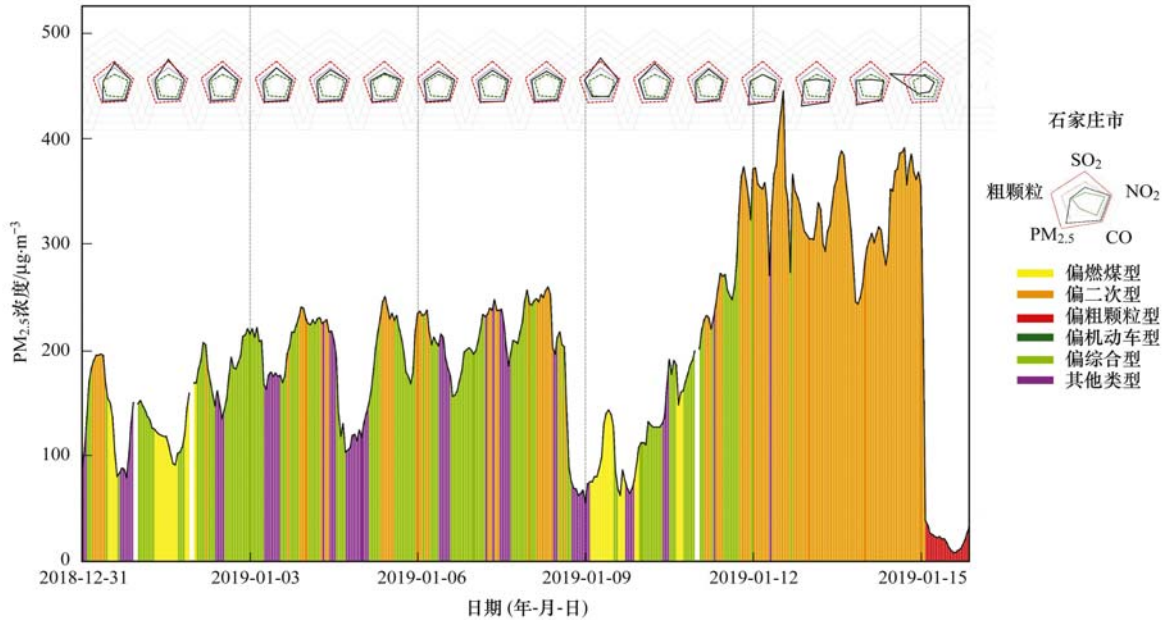


图4 石家庄污染特征时序
Fig. 4 Time series of pollution characteristics in Shijiazhuang City

污染最重,PM_{2.5}日均值在 370 ~ 400 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 间。1 月 15 日随着冷空气到来,市区及区县 PM_{2.5} 浓度均降至 60 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以下,污染全部得到清除。

2.3 PM_{2.5} 组分特征及污染来源解析

2.3.1 化学组分特征

观测期间石家庄市细颗粒物中 NO₃⁻ 占比最高

(25.9%), 其次为 NH₄⁺ (20.8%), SO₄²⁻ (18.7%) 和颗粒态有机物 (OM, 等于 OC × 1.8, 17.6%)^[23] 位居第三,二次无机组分占比之和达到 65.4%。

污染过程中 NO₃⁻ 一直处于较高水平 (20 ~ 50 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), SO₄²⁻ (0.63 ~ 86.9 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 和 NH₄⁺ (0.58 ~ 64.2 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 波动较大,碳组分和金属元素较为

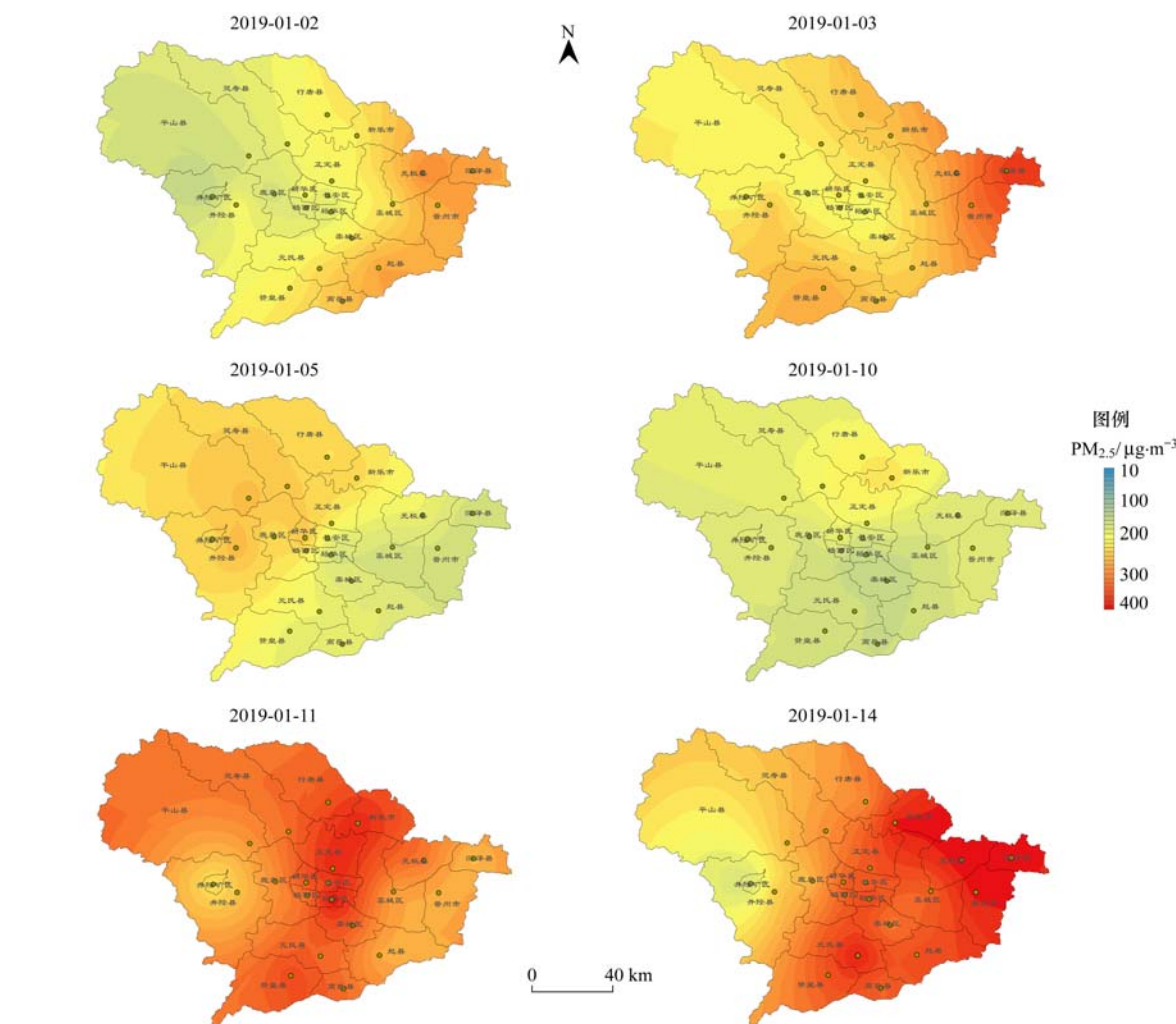


图5 部分时段石家庄市PM_{2.5}浓度空间分布

Fig. 5 Spatial distribution of PM_{2.5} concentrations in Shijiazhuang City

稳定(图6). 随PM_{2.5}浓度不断抬升,SO₄²⁻上升幅度比NO₃⁻高30%,出峰时间与PM_{2.5}、NH₄⁺一致,比NO₃⁻稍早;EC和金属元素未出现明显增加,OM出现小幅增加,但幅度较小. 对比不同污染级别下各组分占比及相对湿度(表1),优良天气下OM占比最高. 随污染不断加重,SO₄²⁻浓度与相对湿度均明显上升,NH₄⁺小幅增加,NO₃⁻基本不变,OM逐渐下降. 严重污染时,NO₃⁻占比最高,与优良天气比,SO₄²⁻上升207%,OM下降49.7%,相对湿度增加1.42倍,达到78.7%.

SOR和NOR均值分别为0.29和0.18,SO₂的转化程度明显高于NO_x. 随着PM_{2.5}浓度每次攀升,SOR值波动较大,尤其在严重污染时段,SOR值出现跳跃式增加,达到0.6左右(NOR的3倍),远高于北京^[24]、天津^[25]和聊城^[26]等地. 颗粒物中SO₄²⁻和NO₃⁻主要是由大气中SO₂和NO_x在颗粒物表面或内部,经过复杂光化学或吸湿反应生成,并与大气中NH₃进一步反应生成NH₄HSO₄、(NH₄)₂SO₄和

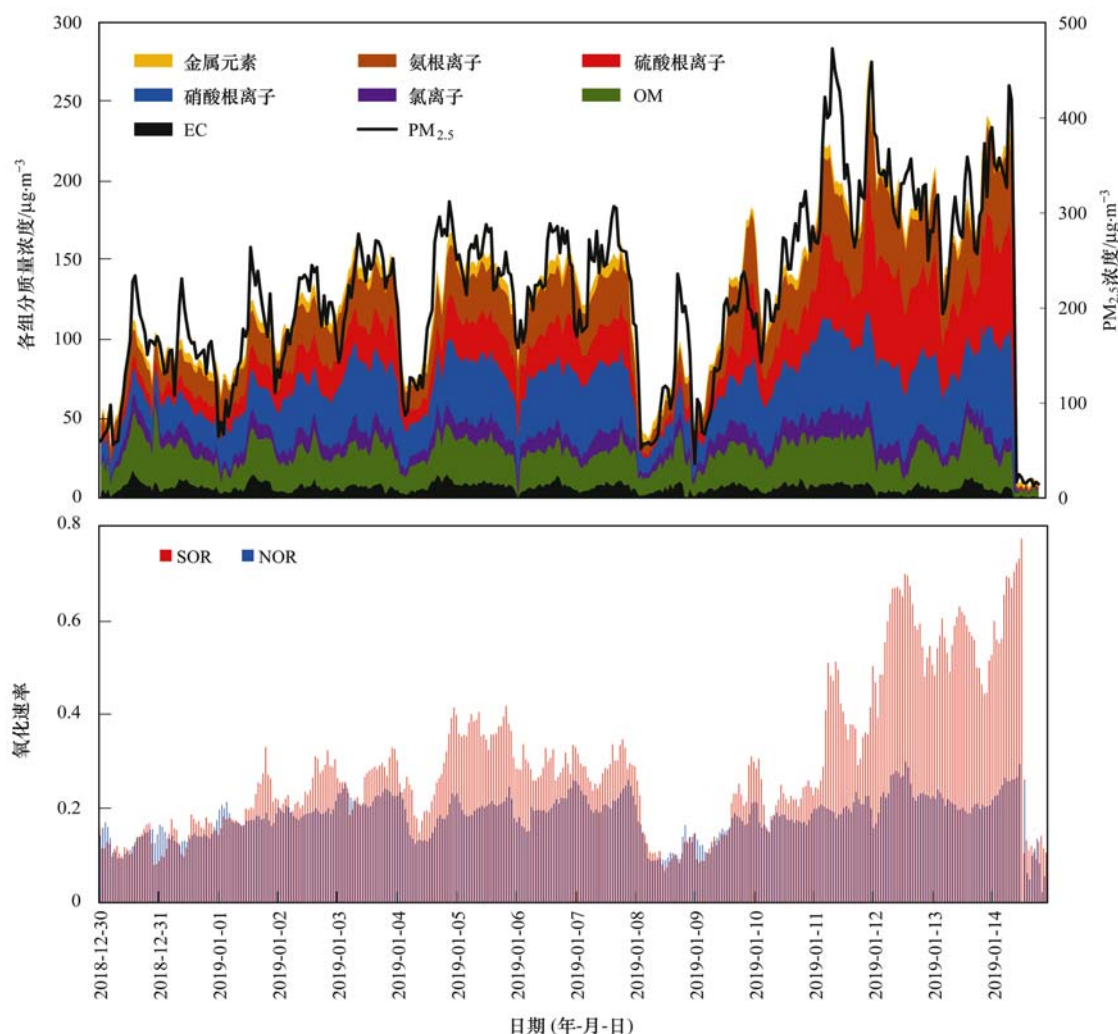
NH₄NO₃等^[27]. 可见污染期间SO₂、NO_x和NH₃等气态污染物发生了强烈的二次转化,其中SO₂在高湿条件下快速转化为SO₄²⁻是不断推高PM_{2.5}浓度的重要原因.

表1 不同空气污染级别下PM_{2.5}化学组分占比及相对湿度/%

Table 1 Proportion of PM_{2.5} chemical components and relative humidity under different air pollution levels/%

项目	优-良	轻度-中度	重度污染	严重污染
EC	6.84	6.56	6.17	4.44
OM	28.8	22.5	17.2	14.5
Cl ⁻	8.01	9.65	7.33	7.87
NO ₃ ⁻	23.7	25.6	27.7	25.7
SO ₄ ²⁻	7.29	10.9	16.5	22.4
NH ₄ ⁺	17.9	19.4	20.2	21.4
金属元素	7.46	5.52	5.01	3.75
相对湿度	32.5	45.6	57.7	78.7

OC/EC值可用以表征大气中二次有机污染的程度^[28],若OC/EC超过2.0,表明存在气态前体物VOCs向颗粒态有机物的二次转化^[29]. 观测期间石家庄市OC/EC均值为2.29,有机物二次转化过程

图6 $\text{PM}_{2.5}$ 化学成分及 SOR 和 NOR 逐时变化Fig. 6 Chemical composition of $\text{PM}_{2.5}$ and hourly changes of SOR and NOR

并不明显. 一般冬季光照强度和光照时间不足, 且重污染发生时大气能见度整体较差, 导致二次有机碳的生成过程会被显著抑制^[30].

2.3.2 污染来源解析

$\text{PM}_{2.5}$ 首要污染来源为燃煤 (24.4%) 和工业工艺源 (23.7%), 其次为机动车尾气 (19.3%), 第三为二次无机源 (16.5%). 污染演变中工业工艺源贡献较为稳定, 燃煤、机动车尾气和二次无机源波动较大 (图 7).

第一个阶段燃煤 (15% ~ 25%)、工业工艺 (25% 左右) 和机动车尾气源 (18% ~ 25%) 的贡献较为稳定. 第二个阶段, 随污染持续加重燃煤源贡献出现大幅波动, 污染高值时段在 40% 左右, 最高达到 51.6%, 但工业工艺和机动车尾气源贡献均下降, 尤其是机动车尾气在部分时段降至 10% 以下. 在两个污染阶段随 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度上升, 二次无机源贡献均增加至 20% ~ 25% 间, 最高达到 29.8%.

不同污染级别下, 细颗粒物来源均以燃煤和工

业工艺源为主, 二次无机源在重污染时占比显著较高 (表 2). 轻度、中度污染时, 燃煤和机动车尾气等一次排放源贡献增加较为明显, 分别较优良时上升 27.8% 和 42.6%; 重度及以上污染时, 二次无机源贡献大幅增加, 较轻度污染上升 75.4%.

石家庄市于 2019 年 1 月 3 日 00:00 启动重污染天气 II 级应急响应, 1 月 7 日 00:00 启动 I 级强化减排措施. 启动 II 级应急响应后, 来自燃煤源和工业工艺源的细颗粒浓度均下降, 其中燃煤源下降快且降幅较大, 1 月 3 ~ 6 日分别较 1 月 2 日下降 15.9%、20.2%、23.4% 和 22.5%, 燃煤源更快速有效地得到控制. 启动 I 级强化减排措施后, 工业源颗粒浓度在 1 月 8 ~ 10 日较 1 月 7 日分别下降 19.8%、50.5% 和 25.5%, 降幅较燃煤源高. 1 月 11 日 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度回升, 工业源上升幅度在 19.9% ~ 78.6% 间, 比燃煤源低, 工业工艺源控制效果更为明显.

2.4 气象形势和污染输送分析

2018 年 12 月 31 日, 石家庄 500 hPa 高空受位

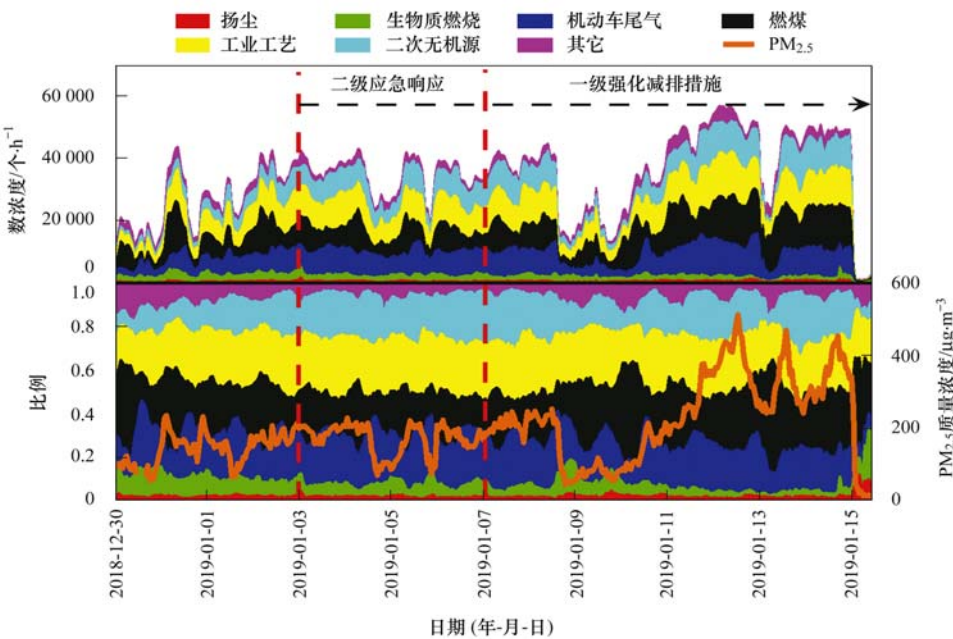
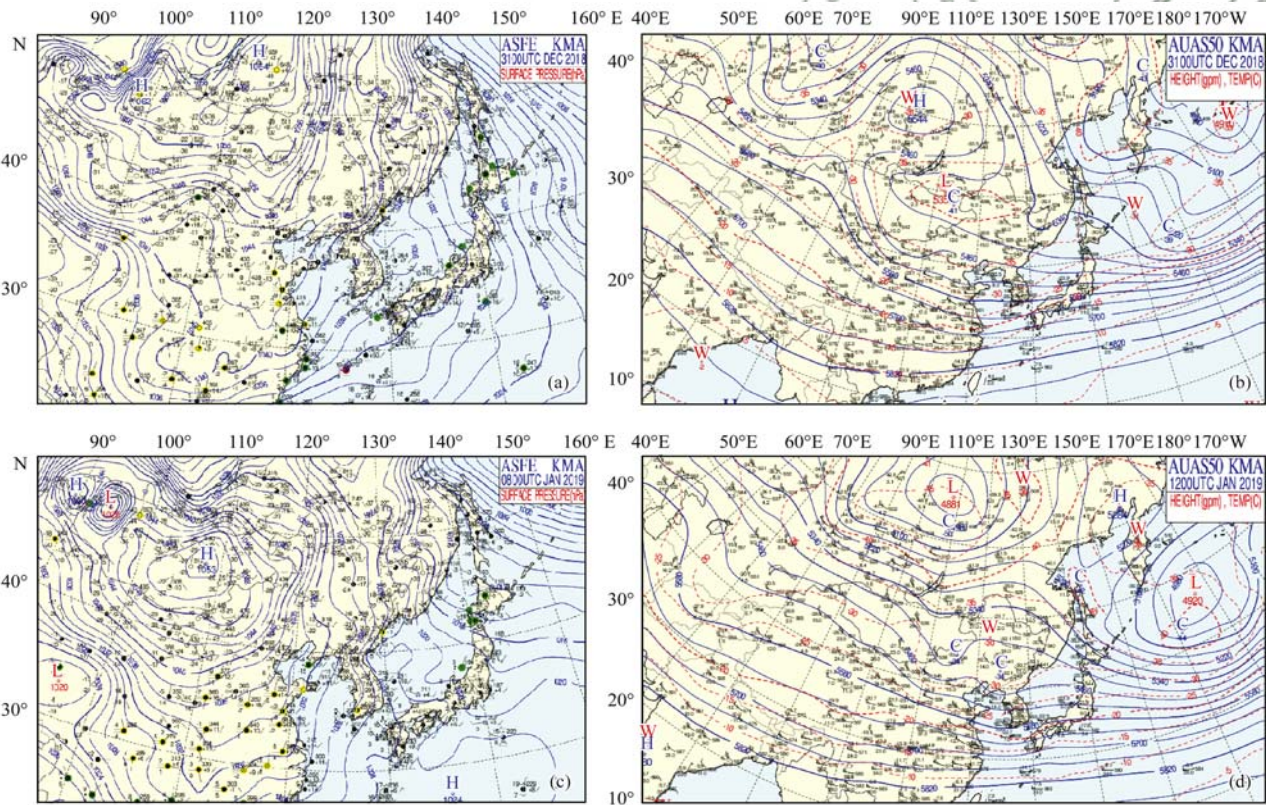


图7 细颗粒物污染源数浓度、贡献率和PM_{2.5}小时质量浓度随时间的变化堆叠

Fig. 7 Stack map of source concentrations, contribution rates, and hourly mass concentrations of PM_{2.5}



(a)2018 年 12 月 31 日 08:00 海平面气压场 ;(b)2018 年 12 月 31 日 08:00 500 hPa 高度场;
(c)2019 年 1 月 8 日 08:00 海平面气压场 ;(d)2019 年 1 月 12 日 08:00 500 hPa 高度场

图 8 部分时段地面及高空形势

Fig. 8 Atmospheric circulation of upper and surface layer for select hours

于河套西部高空槽前西南气流影响,东部高空槽东移到东北,在低层 850 hPa 以东北路径回流影响河北,地面受回流冷锋影响为弱气压场控制,大气扩散条件较差,风速降至 $1.0\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 以下,小风频率在 60% 以上,污染开始迅速累积;2019 年 1 月的 4 日

和 8 日部分时段转为槽后西北气流控制,受冷空气影响,污染得到短时清除;1 月 9 日起,石家庄高空气流以纬向环流为主,受多短波槽影响,地面为均压场或弱气压场,受较强暖湿气流影响,偏南风盛行,频率为 85%,高频的偏南暖湿气流造成湿度增加,

表 2 不同污染级别下细颗粒物来源占比/%

Table 2 Percentage share of sources of PM _{2.5} under different pollution levels/%							
项目	扬尘	生物质燃烧	机动车尾气	燃煤	工业工艺	二次无机源	其它
优良	3.35	14.2	15.5	22.7	22.1	11.7	10.4
轻度污染	2.51	8.03	14.7	29.0	23.7	11.1	11.0
中度污染	1.94	7.17	20.8	22.2	23.8	15.8	8.26
重度污染	2.07	6.79	18.5	25.6	23.8	15.9	7.45
严重污染	1.62	2.98	19.6	26.6	23.4	19.4	6.40

特别是夜间随温度逐渐降低,大气近地面相对湿度迅速升高(80%以上),最高达到 93.1%。1 月 15 日地面受强冷高压影响,冷锋过境,风力加大,污染全部清除。

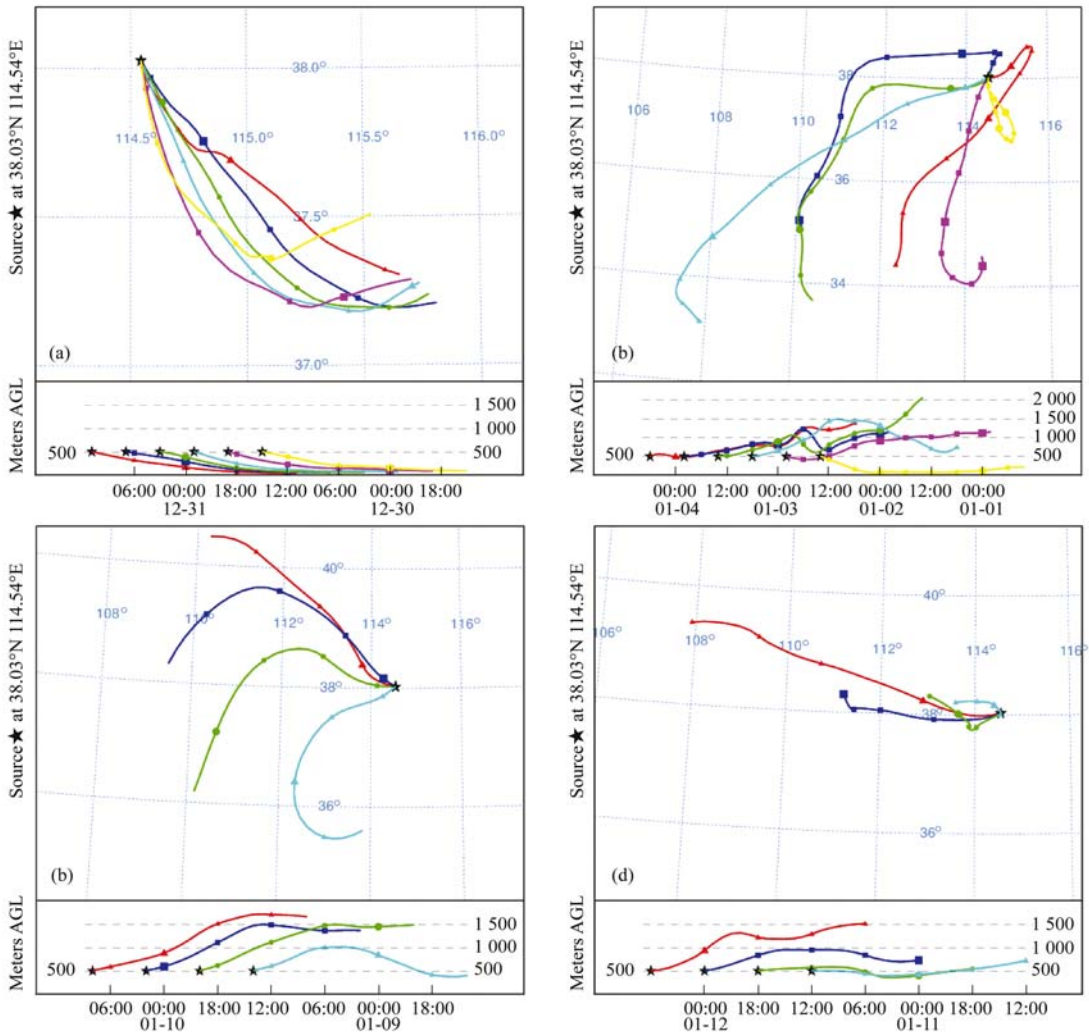
激光雷达观测显示本次污染过程石家庄市扩散条件极差,重污染时段边界层高度始终在 500 m 以下,1 月 10 日午后进一步下降到 200~300 m 左右,石家庄市上空气溶胶在几个小时内被快速压缩,造成 PM_{2.5} 浓度飙升。

气团后向轨迹(图 9)显示。第一次污染过程以偏南、东南和西南方向的低空输送为主,第二次污染过程低空以偏西、西南方向的低空输送为主。两次过程污染物的轨迹线基本在 1000 m 以下。随着西北方向高空长距离气团到来,重污染结束。

2.5 污染成因分析

石家庄本次大气重污染成因归结为以下 4 个方面。

(1)特殊地理位置导致污染易汇聚难扩散。石



(a)2018 年 12 月 31 日 24 h 后向轨迹;(b)2019 年 1 月 4 日 48 h 后向轨迹;
(c)2019 年 1 月 10 日 24 h 后向轨迹;(d)2019 年 1 月 12 日 24 h 后向轨迹

图 9 石家庄市污染物后向轨迹

Fig. 9 Pollutant transport backward trajectory for Shijiazhuang City

家庄地处太行山东麓的低洼地区,地势西高东低,三面环山,西南方到西北方均被太行山环抱,地形呈典型“簸箕状”^[31]。一方面,偏西和西北方向来的冷空气易受太行山的阻挡,导致风速下降,同时较弱的偏西气流越过太行山后易与平原地区的偏东或偏南风形成辐合线,使污染物在辐合线附近汇聚^[32]。另一方面,低洼的地形容易形成地形逆温^[7],加剧逆温强度,使静稳天气延长,如果没有强烈的冷空气,污染物很难扩散。

(2)高湿静稳等不利气象条件导致污染物快速累积。2018年12月31日起受偏南风影响,边界层高度(500 m以下)和风速($1.0 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$)降低,湿度增加(80%以上),大气扩散能力转差,污染物易在山前汇聚,导致污染物快速积累。

(3)一次排放叠加气态污染物的二次转化加剧污染。燃煤、工业、机动车尾气等一次排放源产生大量污染物, SO_2 、 NO_x 和 NH_3 等气态污染物的二次转化和颗粒物的吸湿增长是推高 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度导致此次污染的重要原因,其中高浓度 NO_2 的存在为 SO_2 二次转化提供充足氧化剂^[27],高湿为 SO_2 转化提供合适液相反应条件导致硫酸盐暴发式增长加剧了污染发生。

(4)区域传输和局地污染输送显著。本次污染石家庄同时受到偏西和西南方向的区域气团传输和东部、东北部区县局地污染输送影响。

3 结论

(1)2018年12月30日至2019年1月15日京津冀区域大气重污染过程中石家庄处于中等偏高污染水平,出现12个重污染日,首要污染物均为 $\text{PM}_{2.5}$, $\text{PM}_{2.5}$ 主要成分为二次无机离子和有机物,主要来源为燃煤和工业工艺源。随污染加重 SO_4^{2-} 占比和二次无机源贡献均大幅增加。周边区县污染整体比市区重,尤其东部和东北部的新乐、无极、深泽、晋州和行唐等县最重。

(2)先后受来自偏南-东南和偏西-西南方向低空气团及特殊地形、静稳高湿、近地逆温等不利气象条件影响下,燃煤、工业、机动车尾气等一次源产生的污染物在太行山前快速积累,气态污染物二次转化和颗粒物的吸湿增长推高 $\text{PM}_{2.5}$,硫酸盐暴发式增长加剧污染发生。

(3)建议在秋冬季重污染应急响应期间一是要确保各项减排措施落实到位,二是加强二次无机组分前体物 SO_2 、 NO_x 及 NH_3 排放源的管控,重点控制 SO_2 排放源(散煤等),同时加强市区东北方向新乐、无极、深泽、晋州和行唐等县大气排放源管理,

减少局地传输影响。

致谢:感谢广州宏泰环保科技有限公司在制图方面给予的帮助。

参考文献:

- [1] 肖致美,徐虹,李鹏,等.京津冀区域重污染期间 $\text{PM}_{2.5}$ 垂直分布及输送[J].环境科学,2019,40(10):4303-4309.
Xiao Z M, Xu H, Li P, et al. Vertical distribution and transport of $\text{PM}_{2.5}$ during heavy pollution in Jing-Jin-Ji region [J]. Environmental Science, 2019, 40(10): 4303-4309.
- [2] 屠凤娜,王丽.京津冀区域大气污染现状、治理难点及协同治理路径[J].城市,2019,(3):3-11.
- [3] GB 3095-2012,环境空气质量标准[S].
- [4] 中国生态环境部.2018中国生态环境状况公报[R].北京:生态环境部,2019.1-59.
- [5] 生态环境部办公厅关于重点区域2018-2019年秋冬季环境空气质量目标完成情况的函(环办大气函[2019]445号)[R].北京:生态环境部,2019.
- [6] 郑林昌,赵姣姣,王素.石家庄市灰霾污染物与气象因素的关联关系分析[A].见:2018中国环境科学学会科学技术年会论文集(第二卷)[C].北京:中国环境科学学会,2018.6.
- [7] 韩军彩,陈静,铃伟妙,等.石家庄市空气颗粒物污染与气象条件的关系[J].中国环境监测,2016,32(2):31-37.
Han J C, Chen J, Ling W M, et al. The research on relationship between meteorological condition and atmospheric particles in Shijiazhuang [J]. Environmental Monitoring in China, 2016, 32(2): 31-37.
- [8] 李禧亮.气象条件下石家庄雾霾持续机理分析[A].见:第33届中国气象学会年会S10城市、降水与雾霾——第五届城市气象论坛[C].西安:中国气象学会,2016.5.
- [9] 王梦璇.石家庄市大气环境VOCs污染特性分析与控制对策研究[D].石家庄:河北科技大学,2019.
- [10] 李秋芳,路娜,程丽萍,等.基于污染贡献率的石家庄市大气污染特征分析[J].河北工业科技,2019,36(1):59-65.
Li Q F, Lu N, Cheng L P, et al. Analysis of air pollution characteristics in Shijiazhuang city based on pollution contribution rate [J]. Hebei Journal of Industrial Science and Technology, 2019, 36(1): 59-65.
- [11] 王玮,李腾飞,李玉洁,等.石家庄市3月份非典型大气污染过程分析[J].河北工业科技,2018,35(2):145-152.
Wang W, Li T F, Li Y J, et al. Analysis of atypical air pollution process of Shijiazhuang city in March [J]. Hebei Journal of Industrial Science and Technology, 2018, 35(2): 145-152.
- [12] 康苏花,赵鑫,高康宁,等.石家庄市大气颗粒物污染特征研究[J].科技通报,2015,31(7):241-244.
Kang S H, Zhao X, Gao K N, et al. Atmospheric particulate matter pollution of Shijiazhuang [J]. Bulletin of Science and Technology, 2015, 31(7): 241-244.
- [13] 李璇,赵晓楠,俞磊,等.石家庄市采暖前后大气颗粒物及其碳组分特征[J].环境科学研究,2018,31(4):679-687.
Li X, Zhao X N, Yu L, et al. Characteristics of carbon components in atmospheric particles before and during the heating period in Shijiazhuang City [J]. Research of Environmental Sciences, 2018, 31(4): 679-687.
- [14] 赵晓楠.石家庄市大气颗粒物中碳组分污染特征及来源解析[D].石家庄:河北科技大学,2019.
- [15] 张鉴达,周美玲,杨小雨,等.石家庄市冬季大气颗粒物中水溶性离子与重金属成分研究[J].河北工业科技,2017,34(3):202-207.
Zhang J D, Zhou M L, Yang X Y, et al. Study on water soluble

- ions and heavy metals in atmospheric particulates in winter in Shijiazhuang City [J]. *Hebei Journal of Industrial Science and Technology*, 2017, **34**(3): 202-207.
- [16] 周静博, 李治国, 路娜, 等. 抗战胜利 70 周年大阅兵期间石家庄大气细颗粒物在线来源解析 [J]. *环境科学*, 2016, **37**(8): 2855-2862.
- Zhou J B, Li Z G, Lu N, *et al.* Online sources about atmospheric fine particles during the 70th anniversary of victory parade in Shijiazhuang [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(8): 2855-2862.
- [17] 段青春, 胡京南, 谭吉华, 等. 特征雷达图的设计及其在大气污染成因分析中的应用 [J]. *环境科学研究*, 2018, **31**(8): 1329-1336.
- Duan J C, Hu J N, Tan J H, *et al.* Design of characteristic radar chart and its application in air pollution analysis [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2018, **31**(8): 1329-1336.
- [18] Yao X H, Chan C K, Fang M, *et al.* The water-soluble ionic composition of PM_{2.5} in Shanghai and Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(26): 4223-4234.
- [19] 姚青, 韩素芹, 蔡子颖. 2011 年冬季天津 PM_{2.5} 及其二次组分的污染特征分析 [J]. *环境化学*, 2013, **32**(2): 313-318.
- Yao Q, Han S Q, Cai Z Y. Pollution characteristics of PM_{2.5} and secondary components in the winter in Tianjin [J]. *Environmental Chemistry*, 2013, **32**(2): 313-318.
- [20] Li L, Huang Z X, Dong J G, *et al.* Real time bipolar time-of-flight mass spectrometer for analyzing single aerosol particles [J]. *International Journal of Mass Spectrometry*, 2011, **303**(2-3): 118-124.
- [21] 大气颗粒物来源解析技术指南(运行) [S]. 2013.
- [22] 周静博, 任毅斌, 洪纲, 等. 利用 SPAMS 研究石家庄市冬季连续灰霾天气的污染特征及成因 [J]. *环境科学*, 2015, **36**(11): 3972-3980.
- Zhou J B, Ren Y B, Hong G, *et al.* Characteristics and formation mechanism of a multi-day haze in the winter of Shijiazhuang using a single particle aerosol mass spectrometer (SPAMS) [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(11): 3972-3980.
- [23] Turpin B J, Lim H J. Species contributions to PM_{2.5} mass concentrations: revisiting common assumptions for estimating organic mass [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2001, **35**(1): 602-610.
- [24] 程念亮, 李云婷, 张大伟, 等. 2013 年 1 月北京市一次空气重污染成因分析 [J]. *环境科学*, 2015, **36**(4): 1154-1163.
- Cheng N L, Li Y T, Zhang D W, *et al.* Formation mechanism of a serious pollution event in January 2013 in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(4): 1154-1163.
- [25] 李伟芳, 白志鹏, 魏静东, 等. 天津冬季大气中 PM_{2.5} 及其主要组分的污染特征 [J]. *中国环境科学*, 2008, **28**(6): 481-486.
- Li W F, Bai Z P, Wei J D, *et al.* Pollution characteristics of PM_{2.5} and its main components in Tianjin winter atmosphere [J]. *China Environmental Science*, 2008, **28**(6): 481-486.
- [26] 张敬巧, 吴亚君, 张萌, 等. 聊城冬季一重污染过程 PM_{2.5} 污染特征及成因分析 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(9): 4026-4033.
- Zhang J Q, Wu Y J, Zhang M, *et al.* PM_{2.5} pollution characterization and cause analysis of a winter heavy pollution event, Liaocheng City [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(9): 4026-4033.
- [27] 黄炯丽, 陈志明, 莫招育, 等. 基于高分辨率 MARGA 分析桂林市 PM_{2.5} 水溶性离子特征 [J]. *中国环境科学*, 2019, **39**(4): 1390-1404.
- Huang J L, Chen Z M, Mo Z Y, *et al.* Analysis of characteristics of water-soluble ions in PM_{2.5} in Guilin based on the MARGA [J]. *China Environmental Science*, 2019, **39**(4): 1390-1404.
- [28] 牟臻, 陈庆彩, 王羽琴, 等. 西安市 PM_{2.5} 中碳质气溶胶污染特征 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(4): 1529-1536.
- Mu Z, Chen Q C, Wang Y Q, *et al.* Characteristics of carbonaceous aerosol pollution in PM_{2.5} in Xi'an [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(4): 1529-1536.
- [29] 叶招莲, 刘佳澍, 李清, 等. 常州夏秋季 PM_{2.5} 中碳质气溶胶特征及来源 [J]. *环境科学*, 2017, **38**(11): 4469-4477.
- Ye Z L, Liu J S, Li Q, *et al.* Characteristics and source identification of carbonaceous aerosols in PM_{2.5} measurements during summer and fall in Changzhou [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(11): 4469-4477.
- [30] Zhang J K, Ji D S, Liu Z R, *et al.* New characteristics of submicron aerosols and factor analysis of combined organic and inorganic aerosol mass spectra during winter in Beijing [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2015, **15**(13): 18537-18576.
- [31] 王筠, 周静博, 徐曼, 等. 石家庄市冬季重污染过程特征及成因研究 [J]. *科学技术与工程*, 2016, **16**(34): 127-133.
- Wang Y, Zhou J B, Xu M, *et al.* Study on the characteristics and formation mechanism of winter heavy pollution episodes in Shijiazhuang [J]. *Science Technology and Engineering*, 2016, **16**(34): 127-133.
- [32] 康苏花, 李海峰, 赵鑫, 等. 石家庄市开放源颗粒物化学组成特征分析 [J]. *科学技术与工程*, 2015, **15**(13): 221-225.
- Kang S H, Li H F, Zhao X, *et al.* Analysis of characteristics and chemical composition of open source particulate matter in Shijiazhuang City [J]. *Science Technology and Engineering*, 2015, **15**(13): 221-225.

CONTENTS

Spatiotemporal Variations of PM _{2.5} Pollution Evolution in China in Recent 20 Years	SHI Yan, LIU Rui-mei, LUO Yi, <i>et al.</i> (1)
Characteristics of Aerosol Particulate Concentrations and Their Climate Background in Shanghai During 2007-2016	ZHENG Qing-feng, SHI Jun, TAN Jian-guo, <i>et al.</i> (14)
Characteristics and Sources of Elements in PM _{2.5} During Summer for Three Typical Cities in Pingdingshan-Suizhou-Wuhan, Central China	LIU Wei-jie, SHI Ming-ming, CHENG Cheng, <i>et al.</i> (23)
PM _{2.5} Pollution Characteristics During Winter and Summer in the Hohhot-Baotou-Ordos Region, China	LI Yi-ming, LIU Jia-yuan, SHI Guo-liang, <i>et al.</i> (31)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of PM _{2.5} During Heavy Pollution in Shijiazhuang City Around New Year's Day 2019	ZHOU Jing-bo, DUAN Jing-chun, WANG Jian-guo, <i>et al.</i> (39)
Modeling Studies of Source Contributions to PM _{2.5} in Chengdu, China	XU Yan-ling, YI Ai-hua, XUE Wen-bo (50)
Chemical Characteristics of Arsenic in PM _{2.5} in Beijing	SHI Shao-xuan, YANG Yan-rong, QIN Juan-juan, <i>et al.</i> (57)
Pollution Characteristics and Potential Source Contributions of Gaseous Elemental Mercury (GEM) During Summer and Autumn in Ningbo City	YI Hui, LIN Jia-mei, CAI Qiu-liang, <i>et al.</i> (65)
Seasonal Characteristics and Source Analysis of Water-Soluble Ions in PM _{2.5} of Anyang City	SUN You-chang, JIANG Nan, WANG Shen-bo, <i>et al.</i> (75)
Analysis of Stable Carbon Isotope Characteristics of PM _{2.5} in Summer and Winter Season in Xinxiang City	YAN Guang-xuan, SONG Xin, ZHANG Jing-wen, <i>et al.</i> (82)
Construction and Evaluation on Size Resolved Source Apportionment Methods Based on Particle Size Distribution of Chemical Species	LIANG Yong-li, TIAN Ying-ze, LIU Tong, <i>et al.</i> (90)
Fine Particulate Emission Characteristics of an Ultra-Low Emission Coal-Fired Power Plant	WANG Run-fang, MA Da-wei, JIANG Shao-yi, <i>et al.</i> (98)
Driving Factors of the Significant Increase in Surface Ozone in the Beijing-Tianjin-Hebei Region, China, During 2013-2018	YU Yi-jun, MENG Xiao-yan, WANG Zhen, <i>et al.</i> (106)
Characteristic of Surface Ozone and Meteorological Parameters Analysis in Anyang City	YANG Jian, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i> (115)
Emission Inventory of Intermediate Volatility Organic Compounds from Vehicles in the Yangtze River Delta in 2017 and the Impact on the Formation Potential of Secondary Organic Aerosols	WANG Qian, HUANG Ling, WANG Yang-jun, <i>et al.</i> (125)
Exhaust Smoke of Non-Road Vehicles in Typical Cities of Eastern China	LU Jun, HU Qing-yao, YANG Qiang, <i>et al.</i> (133)
Emission Status and Standards of Volatile Organic Compounds from Chinese and Foreign Bulk Petroleum Terminals	HU Wei, REN Bi-qi, HUANG Yu-hu, <i>et al.</i> (139)
Secondary Organic Aerosol Mass Yield and Characteristics from 4-ethylguaiaacol Aqueous ·OH Oxidation: Effects of Initial Concentration	ZHUANG Yu, CHEN Yan-tong, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (146)
Stable Isotope Characteristics and Vapor Source of Precipitation in the South and North Slopes of Wushaoling Mountain	XU Xiu-ting, JIA Wen-xiong, ZHU Guo-feng, <i>et al.</i> (155)
Characteristics and Influencing Factors of Stable Hydrogen and Oxygen Isotopes in Groundwater in the Permafrost Region of the Source Region of the Yangtze River	WANG Shao-yong, HE Xiao-bo, DING Yong-jian, <i>et al.</i> (166)
Hydrochemical and Isotopic Characteristics of the Lake Balkhash Catchment, Kazakhstan	SHEN Bei-bei, WU Jing-lu, Jilili Abuduwali, <i>et al.</i> (173)
Effect of a Comprehensive Improvement Project on Water Quality in Urban Lakes: A Case Study of Water Quality Variation in Lihu Lake Over the Past 30 Years	TIAN Wei, YANG Zhou-sheng, SHAO Ke-qiang, <i>et al.</i> (183)
Detection Method, Distribution, and Risk Assessment of Pharmaceuticals and Personal Care Products in the Yellow Sea and the East China Sea	CHEN Xian, ZHANG Cai-jie, YANG Gui-peng, <i>et al.</i> (194)
Occurrence and Risk Assessment of Organophosphate Esters in Source Water of the Nanjing Section of the Yangtze River	LI Dong, ZHANG Sheng-hu, ZHANG Qin, <i>et al.</i> (205)
Spatial Distribution, Spectral Characteristics, and Sources Analysis of Dissolved Organic Matter from Baiyangdian Lake in Xiong'an New District During the Winter Freezing Period	ZHOU Shi-lei, SUN Yue, ZHANG Yi-ran, <i>et al.</i> (213)
Spatial Characteristics, Risk Assessment, and Source Analysis of Elements in Surface Sediments from the Baiyangdian Lake	WANG Jing-zhong, LIU Zhao, WEI Hao, <i>et al.</i> (224)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Phthalate Esters in Surface Sediments of the Songhua River	WANG Huan, YANG Yong-zhe, WANG Hai-yan, <i>et al.</i> (232)
Occurrence Relationship Between Microplastics and Heavy Metals Pollutants in the Estuarine Sediments of Poyang Lake and the Yangtze River	LI Wen-hua, JIAN Min-fei, LIU Shu-li, <i>et al.</i> (242)
Effect of Ozonation on Microorganism in the Biological Activated Carbon and Disinfection By-Products in the Effluent	LIU Bao-ming, WANG Xi-xi, ZHANG Xiao-xia, <i>et al.</i> (253)
Refined Assessment of Exposure and Health Risks of Heavy Metals in Water for the Children in Xigu District, Lanzhou	CHEN Yue-fang, SUN Shan-wei, DUAN Xiao-li, <i>et al.</i> (262)
Adsorption of Phosphate on Mg/Fe Layered Double Hydroxides (Mg/Fe-LDH) and Use of Mg/Fe-LDH as an Amendment for Controlling Phosphorus Release from Sediments	WU Jun-lin, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (273)
Characteristics and Mechanism of Monothioarsenate Adsorption on Sand, Sediment, and Goethite	LIAO Dan-xue, SHAN Hui-mei, PENG San-xi, <i>et al.</i> (284)
Substructure Characteristics of Combined Acid-Base Modified Sepiolite and Its Adsorption for Cd(II)	XIE Sha, XU Ying-ming, YAN Cui-xia, <i>et al.</i> (293)
Characteristics of Nitrogen Metabolism by Denitrifying Bacterial Agents in Low Dissolved Oxygen Black Odor Water	ZHAO Zhi-rui, LIU Shuo, LI Duo, <i>et al.</i> (304)
Metagenomic Analysis of Antibiotic Resistant Bacteria and Resistance Genes in a Pharmaceutical and Chemical Wastewater Treatment Plant	CHEN Hong-ling, ZHANG Xing-tao, WANG Qing, <i>et al.</i> (313)
Measurements of Bacterial Community and Biodiversity from Activated Sludge for a Wastewater Treatment Containing Starch	ZHAO Ting-ting, QIAO Kai, WANG Lei, <i>et al.</i> (321)
Process Control and Operation Optimization of PN-SAD Coupling Process Based on SBR-ABR	CHEN Chong-jun, ZHANG Min, JIANG Ying, <i>et al.</i> (330)
Effects of Intermittent Starvation on the Operation of the SNAD Process	LI Dong, LIU Zhi-cheng, XU Gui-da, <i>et al.</i> (337)
Nitrogen Removal from Mature Landfill Leachate via Denitrification-Partial Nitrification-ANAMMOX Based on a Zeolite Biological Aerated Filter	CHEN Xiao-zhen, WANG Xiao-jun, Karasuta Chayangkun, <i>et al.</i> (345)
Rapid Achievement of Nitrifying Micro-granular Sludge and Its Nitrification Function	LIU Wen-ru, SONG Jia-jun, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (353)
Effect of On/Off Aeration Time Ratio Under High Frequency On/Off Aeration on Performance of Nitrosated Granular Sludge	ZHANG Jie, LAO Hui-mei, LI Dong, <i>et al.</i> (360)
Occurrence, Distribution, Source, and Health Risk Assessment of Polybrominated Diphenyl Ethers in Surface Soil from the Shen-Fu Region, Northeast China	XIANG Xin-xin, LU Yin-tao, RUAN Qi-yang, <i>et al.</i> (368)
Vertical Pollution Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Heterogeneous Unsaturated Zone Under a Coking Plant	MENG Xiang-shuai, WU Meng-meng, CHEN Hong-han, <i>et al.</i> (377)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes and Mobile Genetic Elements in Beijing Vegetable Base Soils	ZHANG Ru-feng, SONG Yuan, GAO Hao-ze, <i>et al.</i> (385)
Stoichiometric Characteristics of Purple Sloping Cropland Under Long-term Fertilization and Cultivation	DU Ying-ni, LI Tian-yang, HE Tian-hui, <i>et al.</i> (394)
Ecological Stoichiometry of Carbon, Nitrogen, and Phosphorus in Subtropical Paddy Soils	SONG Jia-ling, SHENG Hao, ZHOU Ping, <i>et al.</i> (403)
Denitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation in Soil Nitrogen Migration Process in a Farmland of Wanshangang Lake	CHEN Zhi-hao, QIN Yun-bin, DING Bang-jing, <i>et al.</i> (412)
Effects of Straw Biochar on Soil Microbial Metabolism and Bacterial Community Composition in Drip-irrigated Cotton Field	WANG Jing, MA Li-juan, LONG Ze-hua, <i>et al.</i> (420)
Source Appointment of Heavy Metals in Agricultural Soils of the Jiulong River Basin Based on Positive Matrix Factorization	HUANG Hua-bin, LIN Cheng-qi, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (430)
Spatial Distribution of Soil Arsenic and Arsenic Enrichment in Crops in the Oasis Region of the Southeastern Tarim Basin	CHEN Yun-fei, ZHOU Jin-long, ZENG Yan-yan, <i>et al.</i> (438)
Bioavailability, Translocation, and Accumulation Characteristic of Heavy Metals in a Soil-Crop System from a Typical Carbonate Rock Area in Guangxi, China	MA Hong-hong, PENG Min, LIU Fei, <i>et al.</i> (449)
Effects of Different Amendments on Fractions and Uptake by Winter Wheat in Slightly Alkaline Soil Contaminated by Cadmium and Nickel	ZHANG Jing-jing, ZHU Shuang-ge, ZHU Li-nan, <i>et al.</i> (460)
Effect of Different Passivating Agents on the Stabilization of Heavy Metals in Chicken Manure Compost and Its Maturity Evaluating Indexes	LUAN Run-yu, GAO Shan, XU Ying-ming, <i>et al.</i> (469)
Response of Soil Respiration and Its Components to Nitrogen and Phosphorus Addition in Farming-Withdrawn Grassland in the Semiarid Loess Hilly-Gully Region	ZHOU Jun-jie, CHEN Zhi-fei, YANG Quan, <i>et al.</i> (479)
Subsequent Effects of Slag and Biochar Application on Greenhouse Gas Emissions from Paddy Fields in the Fuzhou Plain	LAN Xing-fu, WANG Xiao-tong, ZHOU Ya-xin, <i>et al.</i> (489)