

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 郑庆锋, 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, 黎荧, 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, 段菁春, 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, 段菁春, 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, 陈昫, 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, 张昱, 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估 王欢, 杨永哲, 王海燕, 董伟羊, 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用水重金属暴露及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)

脱氮菌剂在低溶解氧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抗性基因 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、来源及风险评估 向鑫鑫, 鲁垠涛, 阮起扬, 赖德, 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, 丁帮璟, 胡伏优, 陈伟, 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, 闵伟, 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, 纪文凝, 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)

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^{1,2,3,4}, 林佳梅^{1,2,3,4}, 蔡秋亮^{1,2,3,4}, 王克强^{1,2,3,4}, 陈进生^{1,3}, 佟磊^{1,3,4}, 李建荣^{1,4}, 肖航^{1,3,4*}

(1. 中国科学院城市环境研究所城市环境与健康重点实验室, 厦门 361021; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 中国科学院区域大气环境研究卓越创新中心, 厦门 361021; 4. 中国科学院宁波城市环境观测研究站, 宁波 315800)

摘要: 气态元素汞(gaseous elemental mercury, GEM)是普遍存在于大气中的对生物体有害的重金属元素,其化学性质稳定,在大气中停留时间长,可随气团长距离输送,属于全球性污染物.本研究于2017年夏秋季对宁波市大气GEM、常规污染物和气象参数进行综合观测,研究沿海地区GEM受人为源和自然源共同作用下的迁移转化规律及潜在源贡献来源.结果表明:①观测期间大气GEM的平均质量浓度为 $(2.32 \pm 0.90) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,变化范围为 $0.97 \sim 10.95 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,且夏季低于秋季.②GEM、O₃和GOM在夏季、秋季、晴天和阴雨天的日内浓度变化表明,高浓度的O₃和强烈的光照可加速GEM发生光化学反应,GEM在晴天的光化学氧化强度高于阴雨天.③相关性分析表明,GEM与PM_{2.5}($R=0.65, P<0.01$)、PM₁₀($R=0.47, P<0.01$)、NO₂($R=0.46, P<0.01$)和CO($R=0.57, P<0.01$)呈显著正相关关系,其来源与化石燃料等物质燃烧有关.④O₃等光化学氧化剂的浓度、GEM在颗粒物上的气粒分配及PM_{2.5}、水汽和NO₂的消光效应,可对GEM光化学氧化速率产生重要影响.⑤潜在源贡献分析(potential source contribution function analysis, PSCF)结果表明,夏季浙江省北部(包含宁波市)、西北部,安徽省南部和江西省大部分地区构成一个三角形区域是NBUEORS大气GEM的潜在源贡献区域,且本地源、区域源和长距离源输送对GEM污染均具有重要影响.秋季的潜在源贡献区域主要为浙江省北部区域,范围小于夏季.GEM主要来自本地源和区域源输送影响.因此,针对大气GEM污染的控制,需要跨省的联防联控,综合治理,方可有效减轻大气汞的污染.

关键词: 气态元素汞(GEM);光化学氧化;空气污染物;相关性分析;潜在源贡献分析(PSCF)

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)01-0065-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201906027

Pollution Characteristics and Potential Source Contributions of Gaseous Elemental Mercury (GEM) During Summer and Autumn in Ningbo City

YI Hui^{1,2,3,4}, LIN Jia-mei^{1,2,3,4}, CAI Qiu-liang^{1,2,3,4}, WANG Ke-qiang^{1,2,3,4}, CHEN Jin-sheng^{1,3}, TONG Lei^{1,3,4}, LI Jian-rong^{1,4}, XIAO Hang^{1,3,4*}

(1. Key Laboratory of Urban Environment and Health, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. Center for Excellence in Regional Atmospheric Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China; 4. Ningbo Urban Environment Observation and Research Station, Chinese Academy of Sciences, Ningbo 315800, China)

Abstract: Gaseous elemental mercury (GEM) is commonly known as a hazardous heavy metal in the atmosphere and is harmful to living organisms. GEM is chemically stable and has a long residence time in the atmosphere; hence, it can be transported over long distances with air masses and is regarded as a global pollutant. We study the transportation and transformation mechanisms of GEM and its potential anthropogenic and natural contribution sources. GEM, conventional atmospheric pollutants, and meteorological parameters were monitored at a coastal site in Ningbo during the summer and autumn of 2017. The results were as follows. ① The concentrations of GEM ranged from $0.97\text{--}10.95 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ and the mean and standard deviation (SD) were $(2.32 \pm 0.90) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, whereby the mean summer concentration was lower than the mean autumn concentration. ② The diurnal variations of GEM, ozone (O₃), and gaseous oxidized mercury (GOM) during summer/autumn and sunny/rainy days suggest that higher levels of O₃ and that strong solar radiation accounted for the rapid photochemical oxidation of GEM. The intensity of oxidation on sunny days was higher than that on rainy days. ③ Correlation analysis showed that GEM was significantly positively correlated with PM_{2.5} ($R=0.65, P<0.01$), PM₁₀ ($R=0.47, P<0.01$), NO₂ ($R=0.46, P<0.01$), and CO ($R=0.57, P<0.01$). Local and regional sources of GEM were mainly related to fossil fuel combustion. ④ The photochemical oxidation rate of GEM was influenced by the concentrations of oxidants (e.g., O₃), gas-particle partitioning between GEM and particles, and light extinction effects of PM_{2.5}, water vapor, and NO₂. ⑤ Potential source contribution analysis (PSCF) indicated that the northwestern Zhejiang Province (including Ningbo City), the southern Anhui Province, and most of Jiangxi Province constitute a triangular area that is a potential source contribution to NBUEORS atmospheric GEM pollution during the summer. Local, regional, and long-range sources all had strong impacts on GEM pollution. During the autumn, the potential sources were mainly in the northern Zhejiang Province, and the source was smaller than that during the summer.

收稿日期: 2019-06-04; 修订日期: 2019-08-01

基金项目: 国家自然科学基金项目(U1405235)

作者简介: 易辉(1990~),男,博士研究生,主要研究方向大气有害物质,E-mail: hyi@iue.ac.cn

* 通信作者,E-mail: hxiao@iue.ac.cn

GEM pollution during the autumn was mainly influenced by local and regional sources. Therefore, the control of atmospheric GEM pollution in the Yangtze River delta should apply inter-regional prevention and comprehensive control strategies in order to reduce atmospheric mercury pollution.

Key words: gaseous elemental mercury (GEM); atmospheric photochemical oxidation; atmospheric pollutants; correlation analysis; potential source contribution function analysis (PSCF)

汞是一种容易挥发进入大气且对生物体具有高毒性的重金属元素. 通常在大气中分为为 3 种形态: 气态元素汞(gaseous elemental mercury, GEM)、气态氧化汞(gaseous oxidized mercury, GOM)和颗粒态汞^[1-3](particulate bounded mercury, PBM). GEM 是大气汞的主要成分, 可达大气总汞的 95% 以上^[4], GOM 和 PBM 只占少量部分. GEM 的化学性质稳定, 水溶性较低, 干湿沉降速率慢, 在大气中的寿命可达 0.5 ~ 2 a, 可通过气团在全球范围内输送^[5]. 大气汞的来源可分为自然源和人为源. 自然源贡献了大气汞的本底通量, 其来源包括火山喷发与地热活动, 土壤释汞, 自然水体释汞, 植被蒸腾作用释汞和森林火灾等, 其释放的主要形态为 GEM. 人为源是造成大气汞污染加剧主要原因, 其来源包括煤炭燃烧, 矿山开采, 金属冶炼, 垃圾焚烧等^[6]. 随着《水俣病公约》于 2017 年 8 月 16 日在我国生效实施, 人为源排放量得到了一定控制, 对大气汞的迁移转化特征也将产生一定影响.

大气 GEM 在不同地区的迁移转化特征受源排放强度和自然条件的不同, 其时空分布差异较大. 且 GEM 在大气中容易发生稀释和扩散, 并与各种氧化性物种发生光化学反应, 形成易溶的二价汞化合物, 因此在不同地区观测到的 GEM 迁移转化主导模式有一定差异. 如 Steffen 等^[7]对北极地区大气汞进行观测, 发现每年春季太阳升起后, GEM 与 O₃ 和卤化物发生光化学反应, 导致北极地区定期的出现大气汞清除事件. Duan 等^[2]对上海地区大气汞的研究发现, GEM 在夜间浓度水平明显高于日间, 且与 SO₂ 和 NO_x 呈现相同的日内变化趋势, 揭示出本地和区域的煤炭燃烧释放的汞是上海地区 GEM 的重要来源. Ci 等^[8]对威海沿海背景区 GEM 研究发现, GEM 在日间浓度高, 而夜间浓度低. 其污染主要来自陆源长距离输送作用.

气象要素和人为源排放的各种常规污染物对 GEM 的迁移转化和污染特征分布具有显著的影响. 然而, 这方面的研究主要集中在内陆地区个别污染物与汞的相互关系的研究. 在沿海地区将三者进行综合研究以了解 GEM 受人为源和自然源共同作用下的迁移转化规律及潜在源贡献分布的研究还有不足. 宁波市是长三角地区重要的港口城市, 全市现有 18 家燃煤电厂, 其他类型工业企业数量众多, 各种

污染物的人为源贡献较高, 在该地区开展 GEM 的迁移转化研究具有一定的现实意义. 本研究通过对 2017 年 6 月 1 日 ~ 11 月 30 日宁波市沿海工业区大气 GEM、常规污染物和气象要素的长期观测研究, 着重探究 2017 年夏秋季沿海地区大气 GEM 受常规大气污染物及气象要素影响下的迁移转化特征和变化规律, 揭示 GEM 的潜在贡献来源, 以期为深入认识大气汞变化特征和控制治理提供一定的思路 and 参考.

1 研究区域概况

宁波市属于沿海经济发达地区, 其地势西南高, 东北低, 陆域面积 9 816 km². 该地区属于典型的亚热带季风气候区, 夏季盛行东南风, 而冬季盛行西北风. 2017 年年均温度、日照时数和降雨量分别为 16.4℃, 1 850 h 和 1 480 mm. 宁波市的人口数量为 820 万, 2018 年 GDP 达 10 745 亿元. 2017 年宁波市燃煤消耗量为 3670 万 t, 其中用于燃煤发电的用煤量达 77.2%^[9], 燃煤消耗量巨大. 如图 1 所示, 观测站点(29°45' N, 121°54' E)位于宁波市北仑区春晓镇中国科学院宁波城市环境观测研究站内(Ningbo Urban Environment Observation and Research Station, NBUEORS). 观测站点东邻东海, 距离宁波市主城区约 30 km. 周边存在汽车装配、服装、家具和机械制造等企业. 距离观测站点西北部约 23 km 处的北仑电厂是全国第三大的火力发电厂, 装机容量达 5 000 MW. 在 NBUEORS 北部约 20 km 处还存在一家氯碱化工厂, 年产液氯 40 万 t·a⁻¹.

2 材料与方法

2.1 GEM、常规污染物和气象参数测定

本研究于 2017 年 6 月 1 日 ~ 2017 年 11 月 30 日期间对 NBUEORS 站点的 GEM 进行了实时监测, 大气 GEM 采用安装在距地面高度 15 m 的 Tekran 2537A 形态汞分析仪进行测定. Tekran 2537A 主要由 1110、1130 和 1135 模块组成. 模块 1110 为空气净化单元, 可产生洁净空气用于系统调零. 环境空气以 1.5 L·min⁻¹ 速率进入系统, 空气中的 GOM 通过 KCl 涂覆的石英环形扩散管(1130 模块)进行收集, 颗粒态汞采用石英过滤器(1135 模块)过滤. 剩余的 GEM 通过双通道金管进行交替捕集, 热解

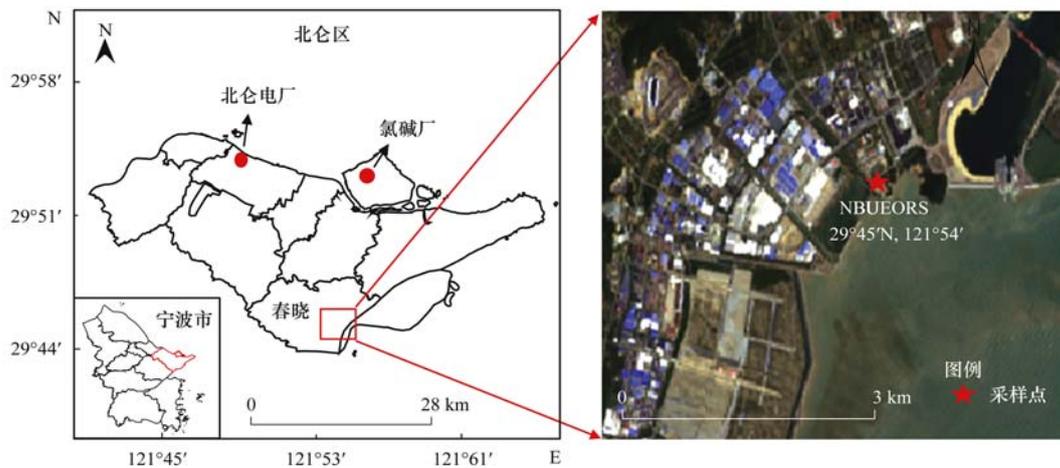


图1 NBUEORS 观测站点地理位置示意

Fig. 1 Location of the NBUEORS monitoring site in Beilun, Ningbo

析,并通过冷蒸气原子荧光光谱法(Cold Vapor Atomic Fluorescence Spectrometry, CVAFS)进行测定.系统通过内置的渗透汞源产生的标准浓度汞蒸气进行定期校正.仪器分辨率为5 min,检出限 $< 0.10 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$.原始数据经过处理转化为小时平均后进行分析.

大气GEM的源和汇与常规大气污染物和气象要素密切相关.为深入了解GEM在大气中的迁移转换机制,常规空气污染物二氧化硫(SO_2)、二氧化氮(NO_2)、一氧化碳(CO)、臭氧(O_3)、可吸入颗粒物(PM_{10})和细颗粒物($\text{PM}_{2.5}$)也通过环境空气质量主动监测系统(Model 1500, ThermoFisher Scientific, USA)同步测定.测定方法符合《环境空气气态污染物(SO_2 、 NO_2 、 O_3 和CO)连续自动监测系统运行和质控技术规范》(HJ 818-2018)和《环境空气颗粒物(PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$)连续自动监测系统运行和质控技术规范》(HJ 817-2018).气象参数如温度(T)、压力(p)、风速(WD)和风向(WS)等采用微型气象站(WS500-UMB, Lufft, Germany)进行测定.所有数据均转化为小时平均值.

2.2 后向轨迹分析

潜在源贡献模型(potential source contribution function analysis, PSCF)是一种根据气团轨迹分析辨别源区的方法.通过将区域划分为 $0.4^\circ \times 0.4^\circ$ 的网络,利用混合单粒子拉格朗日积分轨迹模型计算出研究时段所有到达站点高度为500 m的72 h后向轨迹,每条轨迹途经的网格赋予相应轨迹的GEM值,记为 c_{ij} ,统计落在每个网格中的总轨迹数量,记为 n_{ij} ,并将研究时段GEM的平均浓度设定为阈值浓度 $^{[2]}$.统计每个网格超过阈值的轨迹数量记为 m_{ij} .每个网格的PSCF值为超过阈值的轨迹数与总

的轨迹数之比,计算如式(1):

$$\text{PSCF}_{ij} = m_{ij}/n_{ij} \quad (1)$$

PSCF值与途经每个网格的气团的数量有关.高PSCF值网格预示该区域是潜在贡献源.由于部分网格的总轨迹数量过小可导致 PSCF_{ij} 值缺乏代表性,故将轨迹数量小于所有网格平均轨迹数3倍的网格,将其 PSCF_{ij} 值乘以一个任意权重系数 $^{[10]}$,以减少此类网格的权重.

3 结果与讨论

3.1 GEM与常规大气污染物及气象参数时间序列

观测期间NBUEORS的GEM、常规大气污染物和气象参数小时变化时间序列如图2所示.整个观测期间,GEM的变化范围为 $0.97 \sim 10.95 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,平均质量浓度为 $(2.32 \pm 0.90) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$.GEM小时时间序列总体呈上升趋势,表明污染程度有一定上升.常规污染物 SO_2 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、CO和 NO_x 呈现相同上升趋势.GEM在11月污染物的浓度明显高于其他月份,高值点较多,与常规污染物的峰值点出现时刻较一致,最高值达 $10.95 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$.由于11月气温较低,混合层厚度可能小于其他月份,且燃煤供暖发电增多,是导致污染浓度较高的主要原因.

与宁波市前期观测数据相比(表1),研究期间GEM平均浓度低于McLagan等 $^{[11]}$ (2016年, $2.53 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)、Yu等 $^{[12]}$ (2011年4月~2013年4月, $3.30 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)和Fu等 $^{[13]}$ (2007年10月~2008年1月, $3.79 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)观测到的结果,表明GEM浓度近些年来有一定程度地下降.与国内外其他地区相比,NBUEORS大气GEM质量浓度高于南极Weddell Sea $^{[4]}$ ($0.77 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)、McMurdo $^{[14]}$ ($0.94 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)、北极Amderma $^{[15]}$ ($1.65 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)和北半球的背景

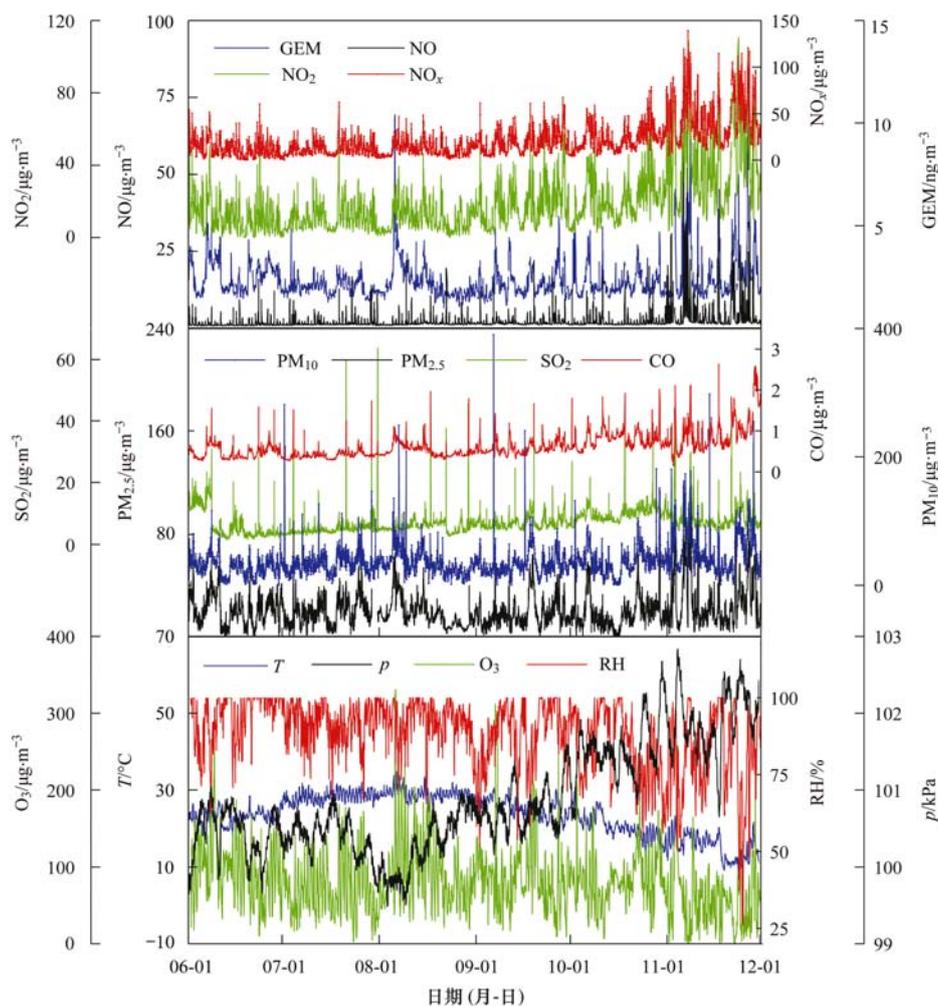


图2 2017年6月1日~11月31日期间NBUEORS大气GEM、常规大气污染物及气象参数小时变化时间序列

Fig. 2 Time series of hourly mean GEM concentrations, conventional air pollutants concentrations, and meteorological parameters from June 1, 2017, to November 31, 2017, at NBUEORS

区^[16] ($1.50 \sim 1.70 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$), 且高于加拿大 Québec^[17]、美国 New York^[18, 19] 等地区 ($1.50 \sim 2.00 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$). 接近于同为沿海地区的威海市^[7] ($2.31 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) 和韩国 Seoul^[21] ($3.22 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$). NBUEORS 的 GEM 明显低于同为沿海城市的上海^[2] ($4.19 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$), 且低于内陆城市南京^[3] ($7.90 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)、贵阳^[21] ($9.72 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)、重庆^[22] ($6.97 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) 等城市观测到的 GEM 含量.

3.2 GEM 与常规大气污染物的季节变化

观测期间, NBUEORS 夏季和秋季 GEM 与常规污染物和气象参数的分布如图 3 所示. 夏季(6、7 和 8 月) GEM、PM_{2.5}、PM₁₀、CO、NO₂ 和 SO₂ 的平均(表 2) 浓度均低于秋季(9、10 和 11 月). 其中, 夏季 GEM 的平均质量浓度为 $2.26 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 低于秋季的 $2.37 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$. 而夏季 CO 和 NO₂ 的浓度显著低于秋季 ($P < 0.01$), 分别低于秋季 38.0% 和 59.0%. 而夏季 O₃ 的浓度 ($87.46 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) 比秋季 ($74.53 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) 高 17%. 分析其原因, 从气象因素来看夏

表 1 国内外不同地区大气 GEM 含量比较

Table 1 Comparison of GEM concentrations at various locations worldwide

观测地区	GEM/ $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$	时段(年-月)	文献
南极 Weddell Sea	0.77	2013-06 ~ 2013-10	[4]
南极 McMurdo	0.94	2003-10 ~ 2003-11	[14]
北极 Amdarma	1.65	2001	[15]
加拿大 Québec	1.65	2003	[17]
美国 New York	1.40	2007-12 ~ 2009-11	[18]
美国 New York	1.40	2006-06 ~ 2007-05	[19]
韩国 Seoul	3.22	2005-02 ~ 2006-02	[20]
贵阳	9.72	2009	[21]
上海	4.19	2014	[2]
南京	7.90	2011	[3]
威海	2.31	2010	[7]
重庆	6.74	2006-08 ~ 2017-09	[22]
宁波	2.53	2016	[11]
宁波	3.30	2011-04 ~ 2013-04	[12]
宁波	3.79	2007-10 ~ 2008-01	[13]
宁波	2.32	2017-06 ~ 2017-11	本研究

季的平均气温为 20.25°C , 是秋季的 4 倍. 夏季的高温气象条件导致大气混合层厚度增加, 大气对

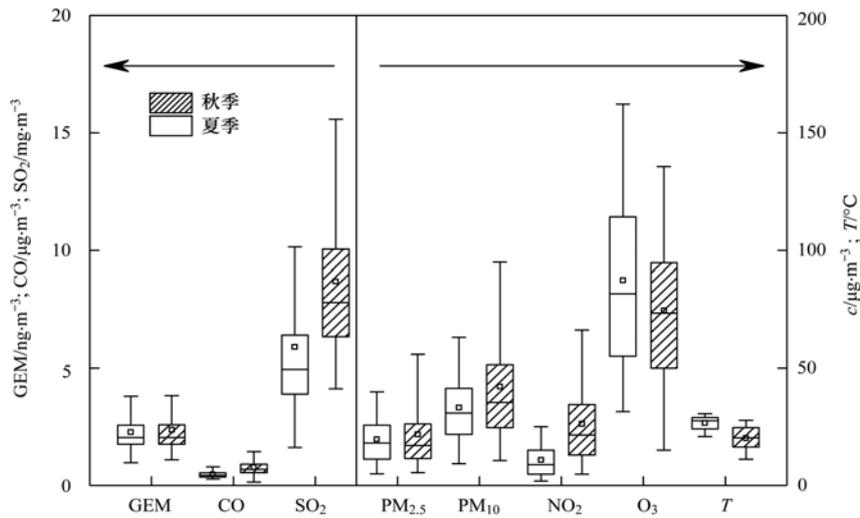


图3 夏秋两季NBUEORS大气GEM与其他参数分布

Fig. 3 Distribution of atmospheric GEM and other parameters during the summer and autumn in 2017 at NBUEORS

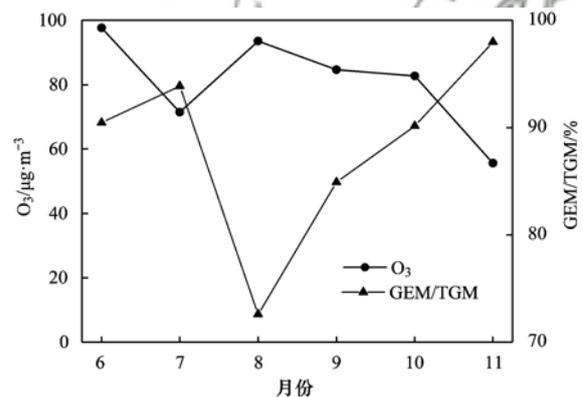
流强烈,有利于污染物的稀释和扩散,使得GEM、PM_{2.5}、PM₁₀等污染物的浓度较低.且夏季光照强烈,NO₂与大气中的碳氢化合物可发生光化学反应,生成O₃,导致NO₂的进一步降低和O₃浓度的升高.O₃是大气中的一种重要的光化学氧化剂,夏季高浓度的O₃可与GEM发生光化学氧化反应,形成二价汞化合物,进一步降低大气GEM的浓度.

表2 NBUEORS夏秋两季GEM、常规空气污染物和气象参数统计结果

Table 2 Statistics summary for GEM, conventional air pollutants and meteorological parameters during the summer and autumn in 2017 at NBUEORS

项目	最小值	最大值	平均值		
			夏季	秋季	总体
GEM/ng·m ⁻³	0.97	10.95	2.26	2.37	2.32
PM _{2.5} /μg·m ⁻³	0.11	106.39	19.64	21.74	20.69
PM ₁₀ /μg·m ⁻³	0.27	390.45	33.25	42.11	37.65
CO/mg·m ⁻³	0.15	2.63	0.48	0.78	0.63
NO ₂ /μg·m ⁻³	0.02	111.89	10.84	26.29	18.56
O ₃ /μg·m ⁻³	0.75	330.74	87.46	74.53	81.05
SO ₂ /μg·m ⁻³	1.61	63.58	5.91	8.69	7.29
T/°C	34.68	23.49	20.25	5.32	26.70
p/kPa	99.49	102.84	100.37	101.4	100.88
WS/m·s ⁻¹	0.17	13.20	2.42	3.34	2.87

GEM发生光化学反应转化为二价汞的程度可通过GEM占总气态汞(TGM = GEM + GOM)的比率(GEM/TGM)表示.图4显示了观测期间不同月份的O₃浓度和GEM/TGM比率变化.O₃浓度与GEM/TGM变化趋势相反,随着O₃浓度的上升,GEM/TGM则下降.GEM/TGM最低值为72.6%,出现在日照时间、光照强度和O₃浓度均较高的夏季(8月),此时GEM的光化学反应最为剧烈,有利于GEM转化为二价汞.

图4 观测期间O₃与GEM/TGM比率月变化Fig. 4 Monthly variations of O₃ and GEM/TGM ratio during the observation period

3.3 GEM日内变化特征

夏季、秋季、晴天和阴雨天日内GEM、O₃和GOM变化趋势如图5所示.夏季GEM在夜间呈上升趋势,至日出后(05:00)达到最高值2.41 ng·m⁻³.日出后GEM开始持续下降,至日落(18:00)降低到最低值2.09 ng·m⁻³.秋季GEM的日内变化较夏季更为复杂,表现为14:00~00:00期间GEM的变化趋势与夏季相反,其他时段GEM变化趋势与夏季相同.日出时达到最高值(06:00)2.54 ng·m⁻³,比夏季日内峰值浓度高5%.最低值出现在凌晨(00:00),为2.25 ng·m⁻³,比夏季日内最低浓度高7%.晴天和阴雨天日内GEM的变化表现较为相似,表现为早晨(06:00~07:00)至午后(14:00~15:00)逐渐下降,而午后和夜间逐渐上升的趋势,且阴雨天的日内GEM浓度均大于晴天.NBUEORS大气GEM在日内变化趋势与上海^[2]、美国Detroit^[23]和加拿大Toronto^[24]观测到的GEM变化趋势相似,均表现为日间下降和夜间上升的总体

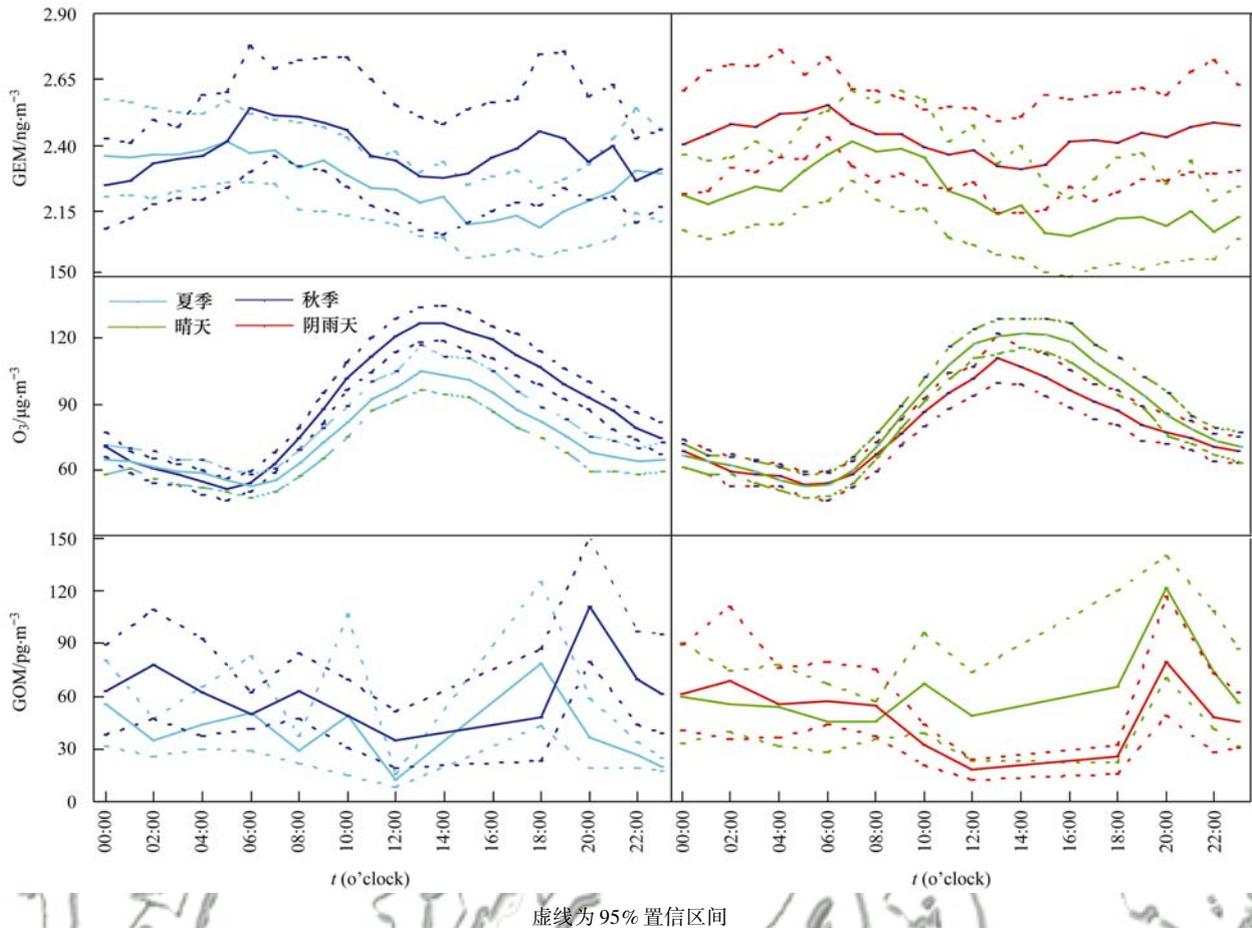


图5 2017年夏季、秋季、晴天和阴雨天GEM、O₃和GOM浓度的日内变化

Fig. 5 Diurnal variation of GEM, O₃, and GOM during summer, autumn, sunny and rainy day of 2017

趋势,但受污染源排放强度和自然条件影响的不同,其日内的变化幅度和高值有差异. 研究站点GEM的日内变化趋势与威海^[7]观测到的结果相反,可能是威海站点属于背景区,受自然源影响大. 白天太阳辐射有利于土壤释汞为主,而夜间低温导致汞向土壤沉积所致.

夏秋两季、晴天和阴雨天O₃的变化趋势均表现为日出后上升,至正午达到最大值,而后逐渐下降. O₃是大气中的一种重要的光化学氧化剂,主要由氮氧化物发生光化学反应生成. 在晴天日间的O₃浓度均高于阴雨天,最大差异可达23.4%. O₃在太阳辐射的条件下可将GEM氧化为GOM. 图5显示GOM在夏秋两季的浓度均在正午太阳辐射最强烈的时刻浓度逐渐开始上升,夏季和秋季分别在18:00和20:00达到最大值,且晴天08:00后GOM的浓度均高于阴雨天GOM的浓度,说明高浓度的氧化剂和强烈的光照对加速GEM发生光化学反应具有重要作用.

许多研究证实,GEM的浓度受污染源排放强度,气象条件等因素影响,其日内变化在不同类型地区变化趋势不同^[2]. 分析其原因,日间GEM浓度下

降的主要原因一方面可能是因为白天平均气温高于夜间,太阳升起后,大气温度的上升,大气混合层厚度增加且对流加剧,有利于污染物稀释扩散. 另一方面,日间在光照强烈的条件下,GEM可与大气中卤素、O₃等氧化性物种发生光化学反应,转化二价汞^[25],进一步降低GEM浓度. 夜间随着气温的下降,对流层厚度减小,且容易出现辐射逆温,大气条件较为静稳,使得GEM的浓度上升. 晴天和阴雨天的显著区别为太阳辐射强度和大气温度的不同,晴天良好的光照条件和较高的温度均有利于GEM的稀释和转化. 因此,在晴天GEM的浓度低,而GOM的浓度高. 秋季GEM在下午14:00~18:00开始上升,可能为秋季气温低,午后大气开始冷却,使得对流层厚度减小,且秋季下午逆温发生的概率较高,污染物容易聚集,导致浓度上升^[26]. 秋季前半夜浓度处于波动下降过程,可能与气团输送影响有关.

3.4 Spearman相关性分析

GEM、GEM/TGM、常规大气污染物和气象参数之间的Spearman相关性分析如表3所示,GEM与大气污染物PM_{2.5}($R=0.65, P<0.01$)、PM₁₀($R=0.47, P<0.01$)、NO₂($R=0.46, P<0.01$)和CO

($R=0.57, P<0.01$)均呈显著正相关关系, $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 NO_2 和 CO 的重要共同来源为化石、生物质等物质燃烧和工业排放^[27-29], 表明观测站点 GEM 的来源与这些过程密切相关, 其对 GEM 污染具有重要影响. GEM 与气象要素 WS ($R = -0.36, P <$

0.01)、 T ($R = -0.17, P < 0.01$) 呈显著负相关, 与 RH 呈显著正相关, 表明风速越高, GEM 稀释扩散的速度越快; 而温度越高, 越有利于 GEM 的光化学转化. 湿度与温度的影响相反, 其值高时不利于 GEM 的光化学转化.

表3 大气 GEM 与其他环境变量的相关系数¹⁾

Table 3 Correlation coefficient between GEM and other environmental variables

	SO ₂	NO ₂	CO	O ₃	PM ₁₀	PM _{2.5}	WS	T	RH	p	GEM
SO ₂	1.00										
NO ₂	0.57**	1.00									
CO	0.54**	0.63**	1.00								
O ₃	0.02	-0.38**	-0.11**	1.00							
PM ₁₀	0.40**	0.41**	0.43**	0.12**	1.00						
PM _{2.5}	0.28**	0.35**	0.42**	0.09**	0.80**	1.00					
WS	0.15**	-0.24**	-0.01	0.38**	-0.05**	-0.22**	1.00				
T	-0.43**	-0.60**	-0.50**	0.22**	-0.08**	-0.05**	0.01	1.00			
RH	-0.48**	-0.21**	-0.17**	-0.29**	-0.38**	-0.10**	-0.33**	0.15**	1.00		
p	0.52**	0.54**	0.50**	-0.16**	0.12**	-0.04**	0.16**	-0.76**	-0.42**	1.00	
GEM	0.17**	0.46**	0.57**	-0.08**	0.47**	0.65**	-0.36**	-0.17**	0.15**	-0.05**	1.00
GEM/TGM	-0.10	0.11*	0.04	-0.17**	0.09	0.15**	-0.27	0.08	0.21**	-0.12**	0.25**

1) * 表示 $P < 0.05$, ** 表示 $P < 0.01$

GEM/TGM 比率与 $PM_{2.5}$ ($R = 0.15, P < 0.01$)、RH ($R = 0.21, P < 0.01$) 和 NO_2 ($R = 0.11, P < 0.05$) 呈低的正相关关系. 分析其原因, 一方面可能是因为气态二价汞被颗粒物捕集吸附, 转化为颗粒态, 且与水汽结合发生干湿沉降导致二价汞浓度降低. 另一方面, $PM_{2.5}$ 、水汽和 NO_2 三者是大气中重要的消光物质, 能够对太阳辐射造成明显的吸收和散射^[30, 31], 削弱太阳光强度, 导致 GEM 向二价汞的光化学氧化转化减弱, 使得 GEM/TGM 比率升高. GEM/TGM 比率与 O_3 ($R = -0.17, P < 0.01$) 和大气压 p ($R = -0.12, P < 0.01$) 呈负相关关系. 如前所述, O_3 能与 GEM 发生光化学氧化反应, 进而促进 GEM 的转化. 高大气压能够促进 GEM 的光化学转化, 可能是气压高, 混合层大气更稠密, 导致氧化性物质浓度升高, 间接促进 GEM 氧化所致.

3.5 不同风速风向 GEM 和常规污染物的浓度分布

不同风速条件下污染物的浓度水平可以反映本地源和长距离源输送对污染物浓度贡献的影响^[32, 33]. 观测期间各污染物在不同风速条件下的均值浓度的风向玫瑰图如图 6 所示. 整个观测期间, NBUEORS 的风向以陆地方向的西北风和东海方向的东南风为主, 东北风和西南风占的比例很少, 且这两个方位基本处于低于 $5.00 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 的低风速条件. 西北和东南风向高于 $5.00 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 高风速气象条件明显增多.

在西北和东南两个风向方位, GEM、 $PM_{2.5}$ 和 NO_2 在西北风向时的污染程度远远高于东南风向时

的污染, 且低风速条件下 GEM 浓度明显高于高风速时的浓度, 平均质量浓度基本在 $2.5 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上, 说明本地源或区域源的污染的贡献占主导地位. 这可能是由于西北方向存在两家大型的燃煤发电厂及大量其他类型工业企业. 而高风速条件下, 西北方位也表现出较高 GEM 浓度, 但低于低风速的浓度, 说明长距离输送也对 NBUEORS 的 GEM 污染有一定的影响. 东南方位是广阔的海洋, 人为污染源少, GEM、 SO_2 、 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 和 NO_2 的浓度较低. 西南风向下主要以低风速为主, GEM、 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 和 NO_2 同样表现为风速越低, 浓度越高. 东北风向时, GEM、 SO_2 、 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 和 NO_2 的浓度与东南风向时类似, 污染程度较低.

与相关性分析结果类似, O_3 浓度随风速风向的变化趋势与 GEM 呈现出相反的规律, 表现为风速越低, 浓度总体上呈升高趋势. 在 $2.00 \sim 5.00 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 风速条件下 O_3 浓度绝大部分在 $80.00 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上. 且东北和东南风向时的 O_3 浓度高于其他方向. 其原因一方面可能是海洋上空光化学反应生成 O_3 的反应较为强烈. 另一方面, 处于东北方向的舟山、郭巨和东部的六横岛的区域输送可能也是造成观测站点 O_3 浓度高的原因之一. O_3 是 GEM 发生光化学氧化的氧化物种之一, 当风来自东北和东南风向时, 高浓度的 O_3 有利于 GEM 发生光化学反应, 生成气态的二价汞, 从而降低大气 GEM 的浓度.

3.6 后向轨迹分析

对夏季和秋季 NBUEORS 大气 GEM 的后向轨

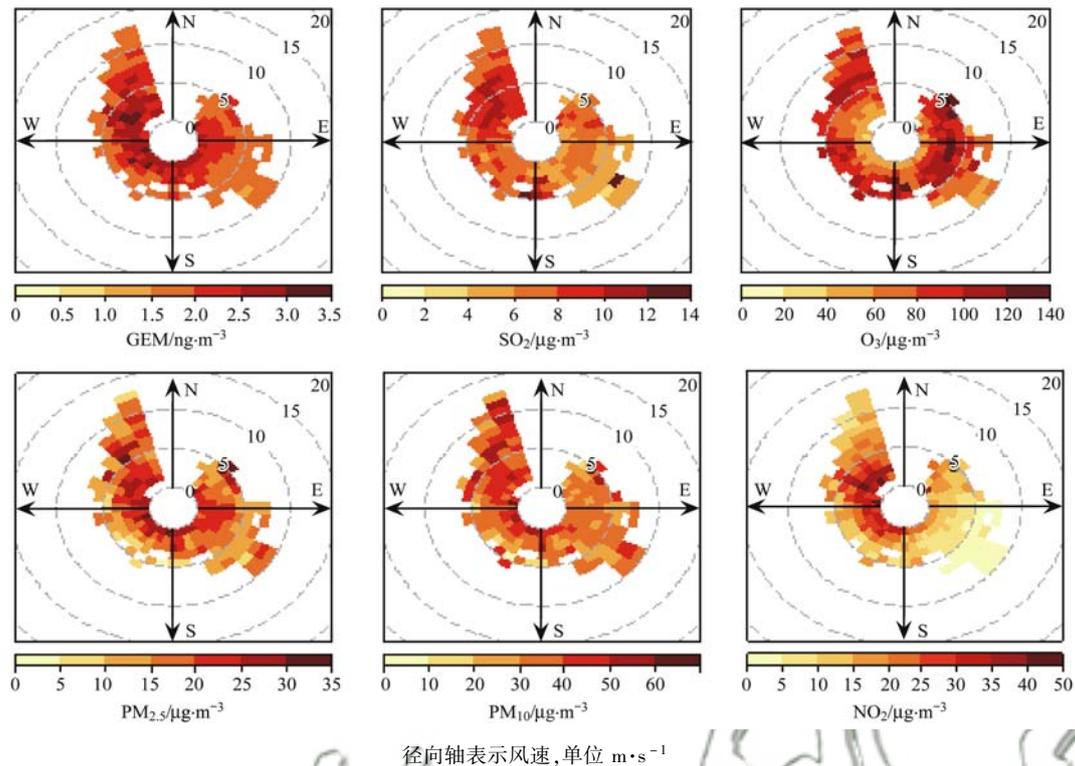


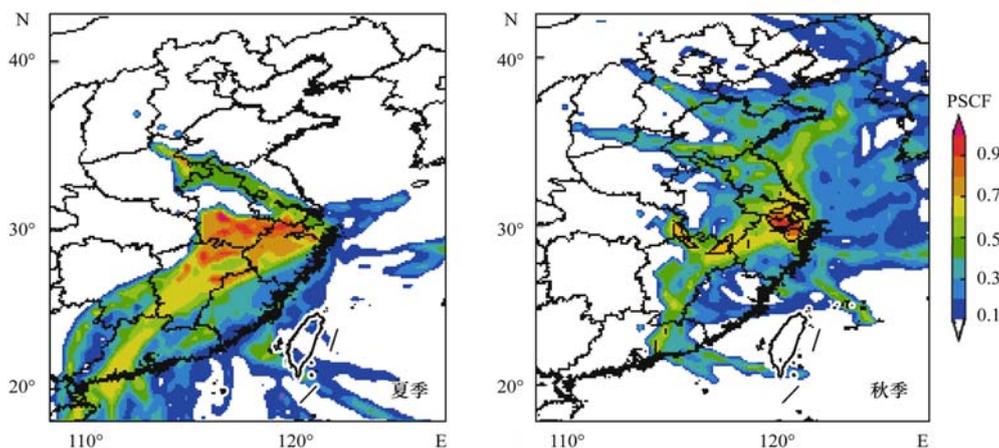
图 6 不同风速条件下 GEM 与常规污染物的均值浓度分布的风向玫瑰图

Fig. 6 Windrose diagrams of average GEM and conventional air pollutants concentration distributions under different wind speeds

迹分别进行 PSCF 分析(图 7)。夏季海洋对 GEM 污染的贡献较小, PSCF 值均较低。PSCF 高值区域主要位于 NBUEORS 西北部和西南部区域, 包括浙江省北部(包含宁波市)、西北部, 安徽省南部和江西省构成的一个类似三角形区域, 局部 PSCF 值在 0.9 以上。说明夏季本地源、区域源和长距离源输送均对 NBUEORS 大气 GEM 污染具有重要影响, 与风向玫瑰图的结果一致。对这些主要的潜在源贡献区域采取相应的减排政策, 对夏季减轻研究站点周边地区大气汞的污染具有十分重要的意义。与夏季相比, 秋季 PSCF 高值区域主要出现在 NBUEORS 周边

地区, 主要是浙江省北部区域, PSCF 高值区域范围比夏季小很多。说明秋季 NBUEORS 大气 GEM 的主要贡献源来自本地源和临近县市的区域源输送的影响, 而来自江西、安徽、江苏和海洋方向的长距离输送源的贡献较弱。

GEM 属于化学性质较为稳定的污染物质, 在大气中的停留时间长, 可在全球范围内随气团进行长距离输送, 导致 GEM 的污染成为全球性的问题。PSCF 揭示出夏秋两季主导气团的不同, 且潜在源贡献区域存在差异, 是导致夏季 GEM 浓度低, 而秋季 GEM 浓度高的原因之一。



PSCF 数值越大, 相应地点为潜在源的概率越高

图 7 夏季和秋季 NBUEORS 大气 GEM 的 PSCF 分析

Fig. 7 PSCF analysis of atmospheric GEM during summer and autumn at NBUEORS

4 结论

(1) 2017 年夏秋季 NBUEORS 的 GEM 的变化范围为 $0.97 \sim 10.95 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均质量浓度为 $(2.32 \pm 0.90) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 夏季 GEM 的平均质量浓度稍微低于秋季, 处于轻度污染水平。

(2) GEM、 O_3 和 GOM 在夏季、秋季、晴天和阴雨天的日内浓度变化表明, 高浓度的 O_3 和强烈的光照可加速 GEM 发生光化学反应, GEM 在晴天的光化学氧化强度高于阴雨天。

(3) O_3 等光化学氧化剂的浓度、GEM 在颗粒物上的气粒分配及 $\text{PM}_{2.5}$ 、水汽和 NO_2 的消光效应, 可对 GEM 光化学氧化速率产生重要影响。

(4) 风向玫瑰图分析表明 GEM、 SO_2 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 和 NO_2 污染来源较为相似, 以西北风向本地源和近距离源贡献具有重要影响; 相反, O_3 在东北和东南风向时浓度较高, 该方位气团输送的高浓度 O_3 有利于 GEM 的光化学转化。

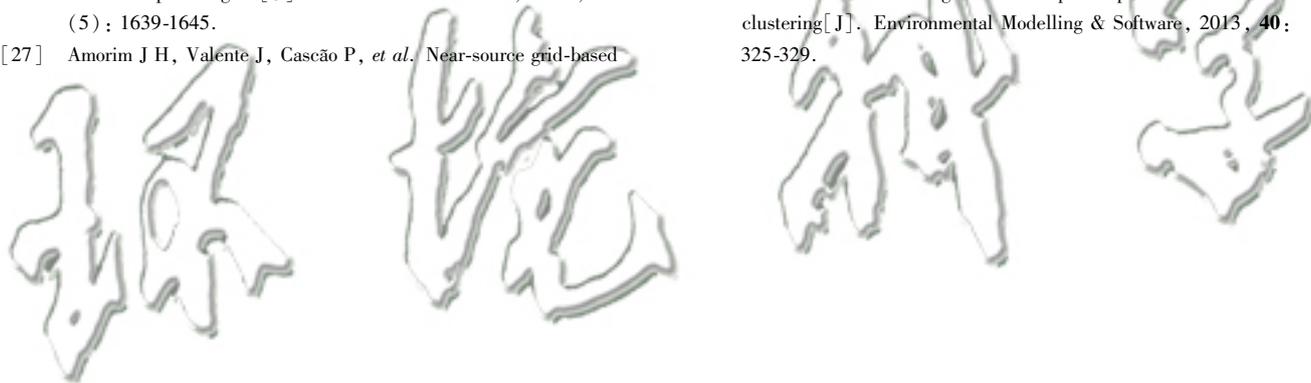
(5) PSCF 结果表明, 夏季浙江省北部(包含宁波市)、西北部, 安徽省南部和江西省大部分地区是 NBUEORS 潜在源贡献区域, 且本地源、区域源和长距离源输送均对 NBUEORS 大气 GEM 污染具有重要影响。秋季 NBUEORS 大气 GEM 的潜在源贡献区域为浙江省北部区域, 主要来自本地源和临近县市的区域源输送的影响。

致谢: 感谢中国科学院城市环境研究所郭兆凤、高凤对论文的修改和指导。

参考文献:

- [1] 程娜, 钱冠磊, 段炼, 等. 崂山地区大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中汞形态污染及其与碳组分的关系[J]. 环境科学, 2017, **38**(2): 438-444.
Cheng N, Qian G L, Duan L, *et al.* Correlation of speciated mercury with carbonaceous components in atmospheric $\text{PM}_{2.5}$ in Shengsi region[J]. Environmental Science, 2017, **38**(2): 438-444.
- [2] Duan L, Wang X H, Wang D F, *et al.* Atmospheric mercury speciation in Shanghai, China [J]. Science of the Total Environment, 2017, **578**: 460-468.
- [3] Zhu J, Wang T, Talbot R, *et al.* Characteristics of atmospheric total gaseous mercury (TGM) observed in urban Nanjing, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, **12**(24): 12103-12118.
- [4] Mastromonaco M N, Gårdfeldt K, Jourdain B, *et al.* Antarctic winter mercury and ozone depletion events over sea ice [J]. Atmospheric Environment, 2016, **129**: 125-132.
- [5] 李舒, 高伟, 王书肖, 等. 上海崇明地区大气气态汞污染特征[J]. 环境科学, 2016, **37**(9): 3290-3299.
Li S, Gao W, Wang S X, *et al.* Characteristics of speciated atmospheric mercury in Chongming island, Shanghai [J]. Environmental Science, 2016, **37**(9): 3290-3299.
- [6] 王圣, 王慧敏, 朱法华, 等. 基于实测的燃煤电厂汞排放特性分析与研究[J]. 环境科学, 2011, **32**(1): 33-37.
Wang S, Wang H M, Zhu F H, *et al.* Mercury emission characteristics from coal-fired power plants based on actual measurement [J]. Environmental Science, 2011, **32**(1): 33-37.
- [7] Steffen A, Douglas T, Amyot M, *et al.* A synthesis of atmospheric mercury depletion event chemistry in the atmosphere and snow [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2008, **8**(6): 1445-1482.
- [8] Ci Z J, Zhang X S, Wang Z W, *et al.* Atmospheric gaseous elemental mercury (GEM) over a coastal/rural site downwind of East China: temporal variation and long-range transport [J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**(15): 2480-2487.
- [9] 宁波市统计局, 国家统计局宁波调查队. 宁波统计年鉴—2017[M]. 北京: 中国统计出版社, 2017. 101-102.
- [10] 李莉, 蔡黎琳, 周敏. 2013 年 12 月中国中东部地区严重雾霾期间上海市颗粒物的输送途径及潜在源区贡献分析[J]. 环境科学, 2015, **36**(7): 2327-2336.
Li L, Cai Y L, Zhou M. Potential source contribution analysis of the particulate matters in Shanghai during the heavy haze episode in eastern and middle China in December, 2013 [J]. Environmental Science, 2015, **36**(7): 2327-2336.
- [11] McLagan D S, Mitchell C P J, Steffen A, *et al.* Global evaluation and calibration of a passive air sampler for gaseous mercury [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, **18**(8): 5905-5919.
- [12] Yu B, Wang X, Lin C J, *et al.* Characteristics and potential sources of atmospheric mercury at a subtropical near-coastal site in East China [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2015, **120**(16): 8563-8574.
- [13] Fu X W, Feng X B, Sommar J, *et al.* A review of studies on atmospheric mercury in China [J]. Science of the Total Environment, 2012, **421-422**: 73-81.
- [14] Brooks S, Lindberg S, Southworth G, *et al.* Springtime atmospheric mercury speciation in the McMurdo, Antarctica coastal region [J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(12): 2885-2893.
- [15] Pankratov F F, Konoplev A V, Makhura A, *et al.* Analysis of the data of long-term monitoring of atmospheric mercury content and meteorological parameters at Amderma polar station [J]. Russian Meteorology and Hydrology, 2013, **38**(6): 405-413.
- [16] Choi H D, Huang J Y, Mondal S, *et al.* Variation in concentrations of three mercury (Hg) forms at a rural and a suburban site in New York state [J]. Science of the Total Environment, 2013, **448**: 96-106.
- [17] Poissant L, Pilote M, Beauvais C, *et al.* A year of continuous measurements of three atmospheric mercury species (GEM, RGM and Hg_p) in southern Quebec, Canada [J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(7): 1275-1287.
- [18] Choi H D, Holsen T M, Hopke P K. Atmospheric mercury (Hg) in the Adirondacks: concentrations and sources [J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42**(15): 5644-5653.
- [19] Ebinghaus R, Kock H H, Schmolke S R. Measurements of atmospheric mercury with high time resolution: recent applications in environmental research and monitoring [J]. Fresenius' Journal of Analytical Chemistry, 2001, **371**(6): 806-815.
- [20] Kim S H, Han Y J, Holsen T M, *et al.* Characteristics of atmospheric speciated mercury concentrations (TGM, $\text{Hg}(\text{II})$ and $\text{Hg}(p)$) in Seoul, Korea [J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(20): 3267-3274.

- [21] Fu X W, Feng X B, Qiu G L, *et al.* Speciated atmospheric mercury and its potential source in Guiyang, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(25): 4205-4212.
- [22] Yang Y K, Chen H, Wang D Y. Spatial and temporal distribution of gaseous elemental mercury in Chongqing, China [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2009, **156**(1-4): 479-489.
- [23] Liu B, Keeler G J, Dvonch J T, *et al.* Temporal variability of mercury speciation in urban air [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(9): 1911-1923.
- [24] Song X J, Cheng I, Lu J. Annual atmospheric mercury species in downtown Toronto, Canada [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2009, **11**(3): 660-669.
- [25] Ambrose J L, Lyman S N, Huang J Y, *et al.* Fast time resolution oxidized mercury measurements during the Reno atmospheric mercury intercomparison experiment (RAMIX) [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(13): 7285-7294.
- [26] 刘伟明, 马明, 王定勇, 等. 中亚热带背景区重庆四面山大气气态总汞含量变化特征 [J]. *环境科学*, 2016, **37**(5): 1639-1645.
Liu W M, Ma M, Wang D Y, *et al.* Variation characteristics of total gaseous mercury at Simian Mountain background station in mid-subtropical region [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(5): 1639-1645.
- [27] Amorim J H, Valente J, Cascão P, *et al.* Near-source grid-based measurement of CO and PM_{2.5} concentration during a full-scale fire experiment in southern European shrubland [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **145**: 19-28.
- [28] Vallius M, Janssen N A H, Heinrich J, *et al.* Sources and elemental composition of ambient PM_{2.5} in three European cities [J]. *Science of the Total Environment*, 2005, **337**(1-3): 147-162.
- [29] Van Der A R J, Eskes H J, Boersma K F, *et al.* Trends, seasonal variability and dominant NO_x source derived from a ten year record of NO₂ measured from space [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2008, **113**(D4): D04302.
- [30] Deng J J, Wang T J, Jiang Z Q, *et al.* Characterization of visibility and its affecting factors over Nanjing, China [J]. *Atmospheric Research*, 2011, **101**(3): 681-691.
- [31] Cao J J, Wang Q Y, Chow J C, *et al.* Impacts of aerosol compositions on visibility impairment in Xi'an, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **59**: 559-566.
- [32] Grange S K, Lewis A C, Carslaw D C. Source apportionment advances using polar plots of bivariate correlation and regression statistics [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **145**: 128-134.
- [33] Carslaw D C, Beevers S D. Characterising and understanding emission sources using bivariate polar plots and k-means clustering [J]. *Environmental Modelling & Software*, 2013, **40**: 325-329.



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 Abuduwaili, <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 Zhou, 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 Bing-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 Wanshandang 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 Julong River Basin Based on Positive Matrix Factorization	HUANG Hua-bin, LIN Cheng-ni, HU Gong-qi, <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)