

E方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

冠状病毒气溶胶传播及环境影响因素

李雪, 蒋靖坤, 王东滨, 邓建国, 贺克斌, 郝吉明



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年7月

第42卷 第7期

Vol.42 No.7

目次

冠状病毒气溶胶传播及环境影响因素 李雪, 蒋靖坤, 王东滨, 邓建国, 贺克斌, 郝吉明 (3091)

新冠肺炎疫情期间气象条件和排放变化对 PM_{2.5} 的影响 逯世泽, 史旭荣, 薛文博, 雷宇, 严刚 (3099)

基于网格的长三角 PM_{2.5} 分布影响因素及交互效应 黄小刚, 赵景波, 辛未冬 (3107)

ARIMA 时间序列分析模型在臭氧浓度中长期预报中的应用 李颖若, 韩婷婷, 汪君霞, 权维俊, 何迪, 焦热光, 吴进, 郭恒, 马志强 (3118)

中国长三角背景点冬季大气棕碳污染特征及来源解析 赵宇, 吴灿, 王益倩, 陈玉宝, 吕少君, 汪芳琳, 杜伟, 刘仕杰, 丁志健, 王格慧 (3127)

四川盆地 PM_{2.5} 浓度时空变化特征遥感监测与影响因子分析 李梦真, 张廷斌, 易桂花, 秦岩宾, 李景吉, 刘贤, 蒋杰 (3136)

河网连续动态模型构建及其在典型杀虫剂时空迁移模拟中的应用 邢成, 张芊芊, 蔡雅雅, 烟晓婷, 应光国 (3147)

九龙江流域河流氮输出对土地利用模式和水文状况的响应 黄亚玲, 黄金良 (3156)

滇池近岸水体微塑料污染与富营养化的相关性 袁海英, 侯磊, 梁启斌, 李佳琛, 任甲 (3166)

白洋淀夏季入淀区沉积物间隙水-上覆水水质特征及交换通量分析 张甜娜, 周石磊, 陈召莹, 张紫薇, 孙悦, 姚波, 崔建升, 李再兴, 罗晓 (3176)

镇江市古运河和金山湖河湖上覆水体和沉积物氮及有机质分布特征及污染评价 原璐彬, 邢书语, 刘鑫, 周晓红, Adelaide Angela Dadzie (3186)

洪湖国际重要湿地沉积物磷空间分布特征及释放风险 刘永九, 黄素珍, 张璐, 彭雪, 张心怡, 葛芳杰, 刘碧云, 吴振斌 (3198)

苏州古城区域河道底泥的重金属污染分布及生态风险评价 白冬锐, 张涛, 包峻松, 陈坦, 王洪涛, 金曦, 金军, 杨婷 (3206)

武汉集中式饮用水源地土壤重金属的时空分布特征及生态风险评价 朱静, 侯耀宗, 邹书成, 曹梦华, 涂书新 (3215)

升金湖河湖交汇区地表-地下水水化学特征及成因分析 崔玉环, 王杰, 刘友存, 郝洸, 高祥 (3223)

青岛市农区地下水硝态氮污染来源解析 寇馨月, 丁军军, 李玉中, 毛丽丽, 李巧珍, 徐春英, 郑欠, 庄姗 (3232)

三峡库区支流浮游植物群落稳定性及其驱动因子分析 何书晗, 欧阳添, 赵璐, 纪璐璐, 杨安琪, 施军琼, 吴忠兴 (3242)

哈尔滨城市河网丰水期浮游植物群落分布特征及驱动因子 路枫, 李磊, 齐青松, 陆欣鑫, 刘妍, 范亚文 (3253)

湖泊沉积物中微生物群落对天然有机质输入的响应 居琪, 章奇, 曹驰程, 白雷雷, 张晖 (3263)

补给水质与社会活动对白洋淀湿地微生物的影响特征 赵志瑞, 吴会清, 毕玉方, 展庆周, 吴海淼, 袁凯悦, 孟祥源, 李方红 (3272)

蓝藻衰亡过程中上覆水溶解性有机物变化特征 李翔, 李致春, 汪旋, 张思远, 王慧敏, 厉荣强, 王国祥, 李启蒙 (3281)

长江下游快速城市化地区水污染特征及源解析:以秦淮河流域为例 马小雪, 龚畅, 郭加汛, 王腊春, 徐蕴韵, 赵春发 (3291)

长江下游居民区降水地表径流的污染特征 郭文景, 张志勇, 闻学政, 张瀚文, 王岩 (3304)

潮河流域降雨径流事件污染物输出特征 包鑫, 江燕, 胡羽聪 (3316)

不透水地表粗糙度对城市面源颗粒物的累积和冲刷影响 单溪环, 谢文霞, 廖云杰, 房志达, 杨晓晶, 苏静君, 赵洪涛, 李叙勇 (3328)

基于概率方法的中国居民饮水途径暴露健康风险评估 秦宁, 刘运炜, 侯荣, 王彩云, 王贝贝, 段小丽 (3338)

蛋白类有机质在水厂各处理单元中的去除特性 李梦雅, 宋钰莹, 张晓岚, 黄海鸥 (3348)

污水处理厂不同单元工艺水中重金属及其纳米颗粒的分布 王杜珈, 何帅, 周小霞 (3358)

基于宏基因组技术分析 MBR 膜清洗后污泥中抗性基因 杜彩丽, 李中涵, 李晓光, 张列宇, 陈素华, 黎佳茜, 李曹乐 (3366)

石化废水处理厂中耐药菌和耐药基因的分布特征与去除效能解析 唐振平, 肖莎莎, 段毅, 刘迎九, 高媛媛, 吴月月, 陈怡雯, 周帅 (3375)

一段式亚硝化厌氧氨氧化 SMBBR 处理中低浓度氨氮废水 吕恺, 邵贤明, 王康舟, 姚雪薇, 彭党聪, 韩芸 (3385)

外加固体缓释碳源的两段反硝化工艺脱氮性能 唐义, 马邕文, 王金泉, 王艳, 叶刚 (3392)

臭氧投量对 SBR 系统污泥沉降性能及脱氮除磷的影响 吕永涛, 朱传首, 张旭阳, 徐超, 潘永宝, 刘爽, 崔双科, 王磊 (3400)

间歇梯度曝气下首段延时厌氧强化好氧颗粒污泥脱氮除磷 张玉君, 李冬, 王敬鑫, 张富国, 张杰 (3405)

提盐速率对序批式生物反应器性能和微生物群落结构的影响 古柏铭, 金春姬, 温淳, 侯金源, 赵阳国, 高孟春 (3413)

低温驯化对自养脱氮颗粒污泥功能活性与菌群结构的影响分析 钱飞跃, 刘雨馨, 王建芳, 刘文如 (3422)

矿渣基改性剂对城市污泥重金属稳定化 张发文, 董明坤, 陈辰慧, 赵长民 (3430)

2000~2018 年长三角土地利用变化对农田生态系统氨排放的影响 王文锦, 王卿, 朱安生, 黄凌, 顾莹, 王杨君, 王敏, 李莉 (3442)

麦秸水热炭及其改良产物对水稻产量和稻田氨挥发排放的影响 韩晨, 侯朋福, 薛利红, 冯彦房, 余姗, 杨林章 (3451)

水肥管理对热带地区双季稻田 CH₄ 和 N₂O 排放的影响 李金秋, 邵晓辉, 缙广林, 邓艺欣, 谭诗敏, 徐文娟, 杨秋, 刘文杰, 伍延正, 孟磊, 汤水荣 (3458)

耐盐碱水稻土壤产甲烷菌群落特征及产甲烷途径 杨雨虹, 贺惠, 米铁柱, 刘玥腾, 刘佳音, 张国栋, 李明月, 甄毓 (3472)

铁碳微电解填料对人工湿地温室气体排放的影响 赵仲婧, 郝庆菊, 涂婷婷, 胡曼利, 张尧钰, 江长胜 (3482)

农地土壤重金属 Pb 和 Cd 有效性测定方法的筛选与评价 陈莹, 刘汉焱, 刘娜, 蒋珍茂, 魏世强 (3494)

亚热带高山森林土壤典型重金属的空间分布格局及其影响因素:以云南哀牢山为例 刘旭, 王训, 王定勇 (3507)

深圳市不同土类的重金属环境背景值与理化性质特征 林挺, 赵述华, 郝秀平, 杨坤, 吴静雅, 朱艳, 罗飞 (3518)

同步钝化土壤 Cd 和 As 材料的筛选 周嗣江, 刘针延, 熊双莲, 马烁, 黄倚豪, 雷寅, 曹梦华, 涂书新 (3527)

两种铁基材料对污染农田土壤砷、铅、镉的钝化修复 袁峰, 唐先进, 吴骥子, 赵科理, 叶正钱 (3535)

青藏高原东缘冻土中有机磷酸酯的污染特征 刘丽娅, 印红玲, 蹇林洁, 徐子文, 熊远明, 罗怡, 刘小雯, 徐维新 (3549)

成都平原氮磷化肥施用强度空间分布及影响因素分析 刘奇鑫, 王昌全, 李冰, 赵海岚, 方红艳, 邓茜, 李启权 (3555)

土壤中溶解性有机质对不同类型堆肥的响应差异 席北斗, 王燕, 檀文炳, 余红, 崔东宇, 程东会, 党秋玲 (3565)

《环境科学》征订启事(3315) 《环境科学》征稿简则(3357) 信息(3391, 3441, 3564)

中国长三角背景点冬季大气棕碳污染特征及来源解析

赵宇¹, 吴灿¹, 王益倩¹, 陈玉宝¹, 吕少君¹, 汪芳琳¹, 杜伟¹, 刘仕杰¹, 丁志健¹, 王格慧^{1,2*}

(1. 华东师范大学地理科学学院, 地理信息科学教育部重点实验室, 上海 200241; 2. 崇明生态研究院, 上海 200062)

摘要: 为探究长三角城市群背景点大气棕碳(brown carbon, BrC)的污染特征及来源,本研究采集并分析了长三角城市群下风向地区上海崇明岛2018年12月~2019年1月大气PM_{2.5}样品的化学组成及光学特性.结果表明,甲醇萃取的棕碳在波长365 nm处的吸光系数(absorption coefficients, Abs_{365, M})平均为(5.39 ± 3.33) M⁻¹·m⁻¹,是水萃取棕碳的1.3倍,且二者均随pH值的增大而显著增加,显示大气颗粒物酸度较弱时有利于棕碳光吸收.冬季Abs₃₆₅和单位质量吸光效率(mass absorption efficiency, MAE₃₆₅)均呈现出夜高昼低的变化趋势,且夜间Abs₃₆₅与左旋葡聚糖呈强线性相关(R² = 0.72),说明生物质燃烧排放大量的吸光性物质是导致夜间Abs₃₆₅较高的一个重要原因.冬季硝基芳香族化合物(nitro-aromatic compounds, NACs)和多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)平均浓度分别为(1.5 ± 1.1) ng·m⁻³和(8.3 ± 4.7) ng·m⁻³,作为棕碳重要的发色基团,二者在365 nm波长处对BrC的吸光贡献分别为0.1%和0.067%.正交矩阵源解析(positive matrix factorization, PMF)分析表明,生物质和化石燃料等燃烧源的直接排放是冬季崇明岛棕碳的主要来源,贡献达56%,其次是二次生成棕碳,占比为24%,而道路扬尘源仅占6%.

关键词: 棕碳(BrC); 化学组分; 硝基芳香族化合物(NACs); 多环芳烃(PAHs); 吸光性质; 酸度

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)07-3127-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202012002

Pollution Characteristics and Sources of Wintertime Atmospheric Brown Carbon at a Background Site of the Yangtze River Delta Region in China

ZHAO Yu¹, WU Can¹, WANG Yi-qian¹, CHEN Yu-bao¹, LÜ Shao-jun¹, WANG Fang-lin¹, DU Wei¹, LIU Shi-jie¹, DING Zhi-jian¹, WANG Ge-hui^{1,2*}

(1. Key Laboratory of Geographic Information Sciences, Ministry of Education, School of Geographic Sciences, East China Normal University, Shanghai 200241, China; 2. Institute of Eco-Chongming, Shanghai 200062, China)

Abstract: To investigate the pollution characteristics and sources of atmospheric brown carbon (BrC) in Chongming Island, a background site of the Yangtze River Delta (YRD) region in China, PM_{2.5} samples collected from December 2018 to January 2019 were analyzed to determine their chemical compositions and optical properties. The results showed that the light absorption coefficient (Abs_{365, M}) of BrC extracted by methanol at 365 nm was (5.39 ± 3.33) M⁻¹·m⁻¹, which was 1.3 times of the water extracted BrC. Both increased significantly with the increase of pH values, suggesting that less acidic conditions can enhance the light absorption ability of BrC. In winter, both Abs₃₆₅ and MAE₃₆₅ (mass absorption efficiency) were higher in the nighttime than in the daytime. A strong linear correlation observed between Abs₃₆₅ and levoglucosan (R² = 0.72) indicated that many light absorbing substances in Chongming Island were derived from biomass burning emissions. During the campaign, nitro-aromatic compounds (NACs) and PAHs accounted for (1.5 ± 1.1) ng·m⁻³ and (8.3 ± 4.7) ng·m⁻³, respectively, contributing to 0.1% and 0.067% of the absorption of the total BrC at 365 nm, respectively. Positive matrix factorization (PMF) analysis further showed that biomass and fossil fuel combustions were the main sources of BrC in Chongming Island in winter, accounting for 56% of the total BrC, followed by secondary formation, accounting for 24% of the total BrC, with road dust contributing only 6%.

Key words: brown carbon (BrC); chemical composition; nitrated aromatic compounds (NACs); polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs); light-absorbing property; acidity

棕碳(brown carbon, BrC)是含碳气溶胶的重要组成部分,在近紫外和可见光区域具有较强的光吸收能力,其吸光作用对波长具有强烈依赖性^[1]. BrC通过吸收和散射太阳辐射而直接影响气候,基于遥感观测和化学传输模型估算全球大气BrC的辐射强迫约为0.25 W·m⁻²,约占全球人为源气溶胶光吸收贡献的19%^[2,3].此外,BrC还影响大气光化学过程、对流层臭氧的产生以及人类健康^[4,5].因此,近几十年来,BrC得到了广泛的研究^[6,7].

BrC来源复杂,主要来源于含碳燃料(如生物

质、煤炭和石油等)的不完全燃烧,或是由大气中经过多相反应二次生成^[2,8,9].其中生物质燃烧是BrC重要的一次排放源^[7,10,11].此外,BrC也来自于二次源,在气溶胶老化过程中形成发色团,如高氮氧化物光氧化、芳香族前体物的臭氧分解和水相光化学氧

收稿日期: 2020-12-01; 修订日期: 2021-01-04

基金项目: 国家自然科学基金项目(41773117); 国家重点研发计划项目(2017YFC0212703); 华东师范大学幸福之花计划项目

作者简介: 赵宇(1996~),女,硕士,主要研究方向为大气环境化学, E-mail: zy08221004@163.com

* 通信作者, E-mail: ghwang@geo.ecnu.edu.cn

化及聚合等^[12~15]. 目前可以定量的 BrC 分子在有机气溶胶中所占比重较小,但其对有机气溶胶整体的光学性质有重要影响,如高氮氧化物条件下甲苯光氧化生成的硝基芳香族化合物可占甲苯二次有机气溶胶 (secondary organic aerosols, SOA) 总光吸收的 40%~60%^[16].

我国尤其华北平原是全球大气棕碳高污染地区,例如有报道:北京 2017 年冬季 PM_{2.5} 中棕碳吸光系数 (Abs₃₆₅) 和单位质量吸光效率 (MAE₃₆₅) 分别为 (12.48 ± 9.43) M⁻¹·m⁻¹ 和 (1.21 ± 0.71) m²·g⁻¹, 西安 2016 年冬季则分别为 (49 ± 32) M⁻¹·m⁻¹ 和 (1.3 ± 0.03) m²·g⁻¹^[17,18], 而美国洛杉矶则分别为 (1.97 ± 0.93) M⁻¹·m⁻¹ 和 0.71 m²·g⁻¹^[19], 与其相比,北京和西安棕碳 Abs₃₆₅ 高出洛杉矶近 10 倍,而 MAE₃₆₅ 也是洛杉矶的 2~3 倍,表明我国典型城市大气棕碳不仅浓度较高,而且单位质量吸光效应强. 然而,造成这种国内外 BrC 污染特征显著差异的原因和机制尚不清楚. 长江三角洲地区是世界最大的城市群, VOCs 和 NO_x 污染物排放高,包含棕碳在内 PM_{2.5} 浓度水平依然远超世界卫生组织的推荐值,污染形势依然不容乐观.

崇明岛地处长三角城市群的下风向,是一个典型背景点. 过往研究发现,其大气污染物既有源自本地排放,也有上风向城市群的传输,因而崇明岛大气状况能够在较大尺度上反映长三角区域大气污染的变化特征^[20,21]. 本研究针对崇明岛大气 PM_{2.5}, 开展该地区冬季 BrC 的光吸收特性研究,在分子水平估算所测定吸光性物质对 BrC 光吸收的贡献,结合 PMF 源解析阐明其主要来源,以期政府部门制定棕碳污染控制措施和进一步减缓长三角区域污染提供科学支撑.

1 材料与方 法

1.1 PM_{2.5} 样品采集

本研究在华东师范大学长江口湿地生态系统野外监测研究站 (31°44'N, 121°13'E) 进行为期 29 d 的野外观测 (2018-12-27 ~ 2019-01-25), 该采样点地处崇明岛的西北角,与江苏南通和太仓等隔江相望. 采样仪器为 TISCH 生产的大流量采样器 (型号: TE-6070VBLX-2.5, USA; 流量: 1.13 m³·min⁻¹). 每 12 h 采集一个样品,石英滤膜在使用之前均在 450°C 高温下预焙 6 h. 采样结束后,样品均立即密封在铝箔袋中,冷冻储存 (-5°C).

1.2 无机离子、WSOC、OC 及 EC 分析

无机离子及水溶性有机碳 (water-soluble organic carbon, WSOC) 均使用超纯水 (电阻率 18.2

MΩ·cm) 进行萃取,具体前处理方法如下:将一定量的滤膜切碎后,置于洁净的离心管中,加上 50 mL 超纯水,超声振荡 3 次,然后用过滤头过滤,所获取的上清液备用. 水溶性无机离子利用戴安 ICS-1100 型离子色谱分析,其可检测 8 种水溶性无机离子 (Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺ 和 Ca²⁺). WSOC 使用岛津 TOC5000 碳分析仪进行测定. 而有机碳 (organic carbon, OC) 和元素碳 (elemental carbon, EC) 用 DRI-2001 型热/光学碳分析仪进行分析. 上述仪器详细使用方法可参考文献 [22].

1.3 BrC 光学特性测定

分别使用超纯水和甲醇溶液对样品的棕碳进行提取,具体方法可参考 1.2 节水溶性离子的前处理方法. 所得最终上清液置于棕色瓶中待测. 而上述溶液在波长 λ (nm) 处的光学吸收可使用分光光度法 (UV-3600, Shimadzu, Japan) 进行测量,而实际大气气溶胶中 BrC 的吸光系数 (absorption coefficient, Abs_λ, M⁻¹·m⁻¹) 通过如下公式获取:

$$\text{Abs}_\lambda = (A_\lambda - A_{700}) \times \frac{V_1}{V_a \times l} \times \ln(10) \quad (1)$$

式中, A_λ 为萃取液在波长 λ (nm) 处的光学吸收. 为了尽量减少基线偏移的干扰,通常会利用波长处吸光度 A_λ 减去 700 nm 处的吸光度 A₇₀₀ 值; V₁ 表示滤液体积, V_a 表示样品的采样体积, l 是石英试管 (1 cm) 在紫外/可见光下的光程长度. Abs_{λ,w} 和 Abs_{λ,m} 分别表示水和甲醇萃取 BrC 的吸光系数.

单位质量吸光效率 (mass absorption efficiency, MAE_λ, m²·g⁻¹) 由公式 (2) 计算得出. MAE_{λ,w} 和 MAE_{λ,m} 分别表示水和甲醇萃取 BrC 的单位质量吸光效率. 在本研究中,假设有机碳可以完全溶解在甲醇溶剂中,并代替甲醇溶解性有机碳 (methanol soluble organic carbon, MSOC) 进行计算,可能会导致对甲醇提取物 MAE 的低估. 但已有研究表明, 90% 以上的 BrC 可被有机溶剂 (甲醇或丙酮) 萃取,因此该种低估可以被忽略^[23].

$$\text{MAE}_\lambda = \text{Abs}_\lambda / M \quad (2)$$

式中, M 表示水萃取的 WSOC 质量和甲醇萃取所使用的 OC 质量.

波长吸收系数 (absorption Ångström exponent, AAE) 表示物质吸光特性随波长变化的波长依赖性. BrC 的光吸收特性与其来源密切相关,因其来源和化学组分而异^[2]. AAE 通过 lg (Abs_λ) 与 lg (λ) 在 300~500 nm 波长范围的线性回归计算,即由公式 (3) 可得. 水和甲醇萃取 BrC 的波长吸收分别用 AAE_w 和 AAE_m 表示.

$$\text{Abs}_\lambda = K \cdot \lambda^{-\text{AAE}} \quad (3)$$

1.4 硝基芳香族化合物(NACs)和多环芳烃化合物(PAHs)测定

PM_{2.5}中有机组分采用 BSTFA 衍生化的分析方法,样品滤膜中加入 5 mL 左右的二氯甲烷:甲醇(体积比为 2:1)混合溶液,经超声萃取、旋转蒸发和氮吹浓缩后转移至气相色谱瓶内,加入 60 μL, *N,O*-双(三甲基硅基)三氟乙酰胺:吡啶(体积比为 5:1)溶液,并于 70°C 中反应 3 h,加入 140 μL 正构十三碳烷烃作为内标混匀后,采用气相色谱质谱联用仪(美国安捷伦公司, Agilent7890B-5977B),色谱柱为 HP-5MS 熔融石英毛细管柱,进样体积为 2 μL. 样本提取和衍生化的细节见文献[24,25].

本文共测定了 4-硝基苯酚(4NP)、4-硝基邻苯二酚(4NC)、3-甲基-4-硝基苯酚(3M4NP)、4-硝基愈创木酚(4NGA)、4-甲基-5-硝基邻苯二酚(4M5NC)、5-硝基水杨酸(5NSA)和 3-硝基水杨酸(3NSA)等 7 种硝基芳香族化合物(NACs),菲(Phe)、荧蒽(Fla)、芘(Pyr)、苯并[a]蒽(BaA)、蒽(Chry)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[a]芘(BaP)、苯并[e]芘(BeP)、茚并[1,2,3-cd]芘(InP)、苯并[ghi]芘(二萘嵌苯, BghiP)和二苯并[a,h]蒽(DahA)等 12 种多环芳烃(PAHs).

1.5 正定矩阵因子(PMF)源解析

为了研究每种污染源对 Abs₃₆₅的贡献,使用了正定矩阵分解(positive matrix factorization, PMF). PMF 是一种双线性因子模型,在大气污染物的源解析研究中被广泛使用^[9,26]. 在本研究采用 PMF5.0 版本,以 PM_{2.5}、EC、WSOC、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Na⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、nss-K⁺、BkF、BeP、InP、BghiP、左旋葡聚糖(levoglucosan, levo.)的质量浓度和 Abs₃₆₅作为输入数据进行多次组合运行. 利用 *Q* 值判断所选模型是否合适,以相关系数(*R*²)评估模拟浓度与实测浓度之间相关性的大小,结合二者得出最优因子数目^[24]. 基于 *Q* 值(*Q*_{true}和 *Q*_{robust})和 *R*²,表明模型的一致性,得到了 3 个因子作为最优解.

2 结果与讨论

2.1 WSOC、OC 和 PAHs、NACs 浓度水平

图 1(a)~1(c)分别为崇明冬季 OC 和 WSOC 浓度,以及 PAHs 和 NACs 的时间变化序列. WSOC 的浓度水平为 0.7~11.4 μg·m⁻³,平均为(4.0 ± 3.0) μg·m⁻³,约占 OC 的 65%. OC 的时间变化趋势与 WSOC 相似,平均达(6.2 ± 3.3) μg·m⁻³. 从图 2 可以看出,WSOC 与 OC 呈强线性相关(*R*² = 0.81),平均比值为 0.6 ± 0.21,明显高于上海(0.36)、南京

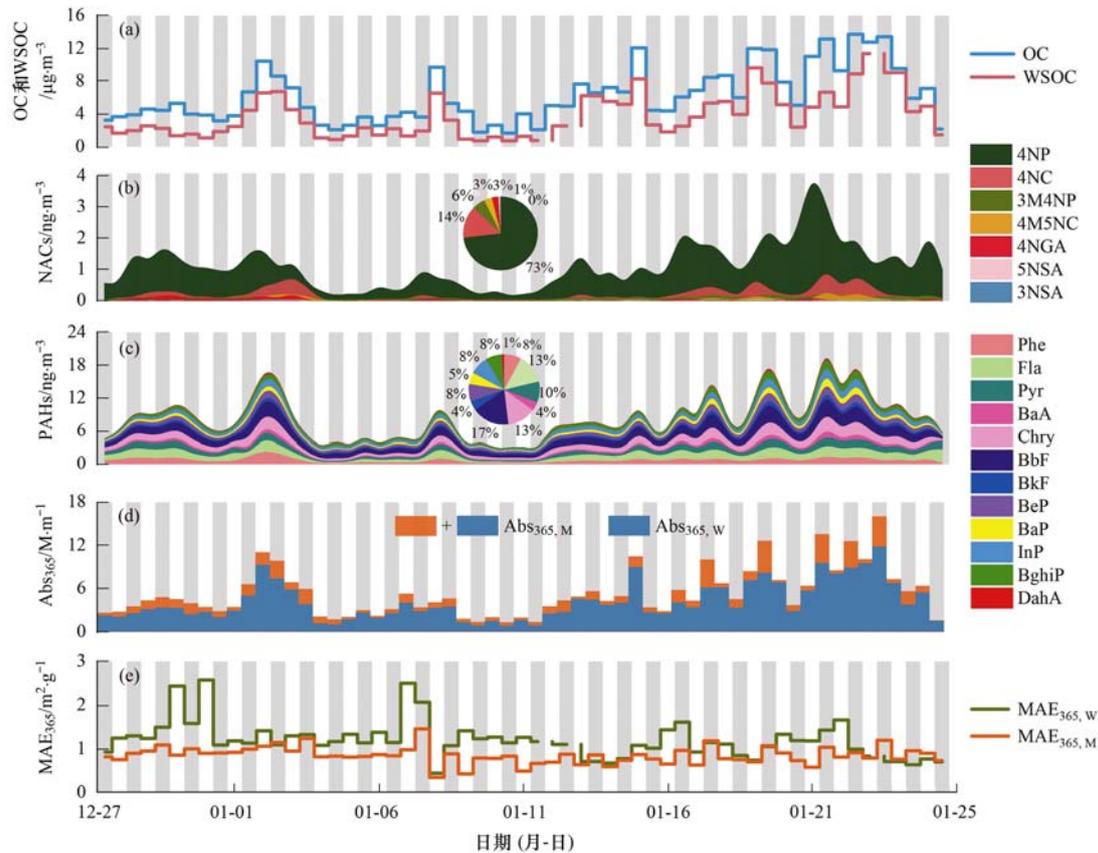
(0.43)和扬州(0.54 ± 0.13)等地区^[27~30]. 这主要是由于崇明地处长三角城市群下风向,污染物在长距离传输过程中一次排放的有机物通过光化学反应进一步老化形成 WSOC,从而导致 WSOC/OC 比值升高. 由图 2 可知,崇明冬季 WSOC 与生物质燃烧的指示物(左旋葡聚糖)呈现较好的线性相关(*R*² > 0.60),结果表明,崇明本地及区域性的生物质燃烧是冬季 WSOC 占比较高的另一个重要原因.

NACs 和 PAHs 含有大量的发色团,是大气中普遍存在的光吸收物质,主要来自煤和生物质在燃烧过程中由于不完全燃烧导致的直接排放,但是最近也有很多研究报道,NACs 也可经化学反应二次形成^[31~34]. 本文分析了常见的 7 种硝基芳香族化合物和 12 种多环芳烃,结果显示,NACs 平均浓度为(1.49 ± 1.06) ng·m⁻³,其中 4NP 和 4NC 是含量较丰富的硝基类化合物,分别占总 NACs 的 73% 和 14%. 与其他地区相比,崇明岛冬季 NACs 的浓度显著低于北京(77.23 ng·m⁻³)^[31]、德国莱比锡(14.0 ng·m⁻³)^[35]、意大利罗马(39.6 ng·m⁻³)^[36]和英国德特林(20 ng·m⁻³)^[4]等地区. 有研究表明 4-硝基邻苯二酚是生物质燃烧排放最丰富的吸光性有机物^[33,37]. 而本研究中 NACs 与左旋葡聚糖呈现较高的相关性(*R*² = 0.61),表明生物质燃烧是崇明岛冬季 NACs 的重要来源. 冬季 PAHs 的平均浓度为(8.31 ± 4.66) ng·m⁻³,其中 B(b/k)F、Fla 和 Chry 在 PAHs 中的占比较高,分别占 PAHs 总浓度的 22%、13% 和 13%. 其次为 InP 和 BghiP,分别均占总浓度的 8%. 崇明岛 PAHs 的浓度相比于西安[(82.3 ± 53.7) ng·m⁻³]^[38]等城市地区同样较低. 有研究表明,Fla/(Fla + Pyr)和 InP/(InP + BghiP)的质量比可区分不同的排放源,当 Fla/(Fla + Pyr) > 0.5 时,主要源于生物质燃烧,而 0.2 < InP/(InP + BghiP) < 0.5 时则表明主要来自化石燃料燃烧^[31,35,39]. 本研究中 Fla/(Fla + Pyr) > 0.5, InP/(InP + BghiP) < 0.5. 因此,化石燃料及生物质燃烧均对崇明岛冬季 PAHs 具有重要贡献.

2.2 BrC 光学特征及发色基团吸光贡献

2.2.1 BrC 光学特征

从图 3(a)可以看出,水萃取和甲醇萃取的 BrC 均呈现吸光强度随波长的增加逐步减弱,该趋势与先前的研究结果一致^[40,41],在 365 nm 波长处的平均 Abs_{365,M} [(4.16 ± 2.62) M⁻¹·m⁻¹] 是 Abs_{365,W} [(5.39 ± 3.33) M⁻¹·m⁻¹]^[40,42,43]的 1.3 倍,表明大气中存在着大量非极性的棕碳物质,因此传统水萃取的方法可能低估 BrC 的吸光性,相似的结果在北京和西安均有报道^[40,42,43]. 与其他地区相比,崇明岛 BrC



图中阴影部分代表夜晚；WSOC 和 MAE_{365,W} 部分数据缺失
 图 1 崇明冬季大气 PM_{2.5} 化学组分质量浓度及 BrC 光学参数的时间变化

Fig. 1 Temporal variations in mass concentrations of PM_{2.5} components and optical parameters of BrC in Chongming Island in winter

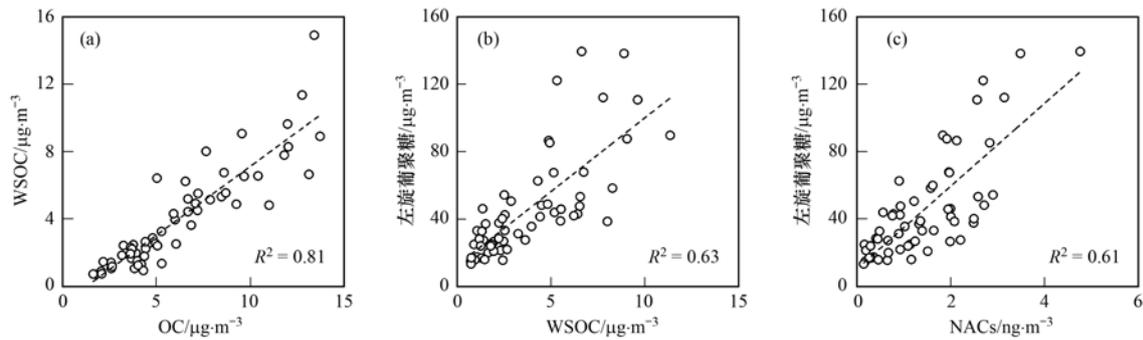


图 2 WSOC 与 OC、左旋葡聚糖与 WSOC 和左旋葡聚糖与 NACs 相关性分析

Fig. 2 Correlation analysis of WSOC vs. OC, levoglucosan vs. WSOC, and levoglucosan vs. NACs

的 Abs_{365,M} 值低于南京 [(9.44 ± 4.70) M⁻¹·m⁻¹] 和北京 [(12.48 ± 9.43) M⁻¹·m⁻¹] 等地区, 但远高于美国洛杉矶 [(1.97 ± 0.93) M⁻¹·m⁻¹] (表 1), 表明崇明岛气溶胶中含有较高的吸光性物质^[17,19,43,44]. 此外, 崇明冬季期间 Abs₃₆₅ 与左旋葡聚糖具有较强的线性相关 (R_W² = 0.63, R_M² = 0.68), 说明生物质燃烧是冬季 BrC 的重要来源之一, 该结果与 2.1 节讨论一致.

图 1(e) 中的 MAE_{365,W} 和 MAE_{365,M} 分别表征了水和甲醇萃取的 BrC 单位质量的光吸收能力. 冬季 MAE_{365,W} 的平均值为 (1.18 ± 0.42) m²·g⁻¹, 是甲醇

萃取 MAE 值的 1.4 倍, 这可能是一些仅溶于甲醇但吸光性较弱的物质所致. 例如邻苯二甲酸酯是常见的增塑剂, 广泛分布在大气中, 其仅溶于甲醇溶液, 但在 >300 nm 波长范围内几乎不吸光^[18]. 通过对比发现, 崇明岛的 MAE_{365,W} 是美国洛杉矶 [(0.61 ± 0.23) m²·g⁻¹] 的 2 倍左右, 这表明相比于美国, 崇明岛大气棕碳的吸光能力更强. 有研究显示, 除发色官能团不同外, 气溶胶的酸碱度对 BrC 的 MAE 值也有显著影响. 为进一步验证该结论, 本研究通过调节水萃取溶液的 pH 值发现, 样品在未添加酸碱试剂时 (pH = 6.3) MAE 值为 1.18 m²·g⁻¹, 在酸性环境

($\text{pH} = 2$) 萃取所得 BrC 的 Abs 值迅速降低, MAE 值低至 $1.07 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, 而在碱性环境 ($\text{pH} = 10$) 下萃取所得 BrC 的 Abs 和 MAE 值均有显著提高, MAE 值约是酸性环境的 1.2 倍 (图 4), 表明颗粒物液相酸碱度对棕碳光吸收特性具有显著影响, 弱酸环境下棕碳吸光性能更强. 而有研究表明, 冬季崇明岛气溶胶的 pH 值约为 4.5 ± 0.4 ^[45], 酸性弱于美国 (2.2 ± 0.6)^[46], 因此, 气溶胶酸度的差异可能是导致崇明大气 BrC 的 MAE 值高于美国的一个重要原因.

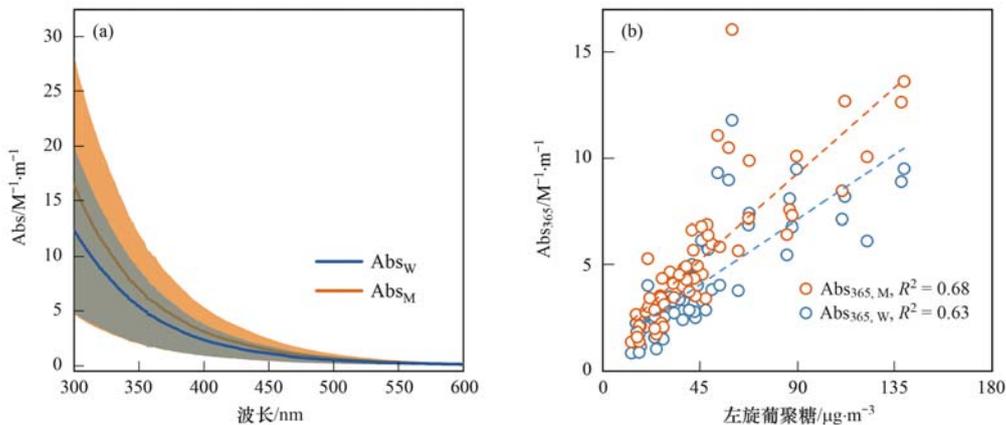


图 3 甲醇和水萃取 BrC 在 300 ~ 600 nm 波长下吸光系数及 $\text{Abs}_{365,W}$ 和 $\text{Abs}_{365,M}$ 与左旋葡聚糖的相关性

Fig. 3 Absorption coefficient of BrC extracted by methanol and water at 300-600 nm and the correlation between $\text{Abs}_{365,W}$, $\text{Abs}_{365,M}$, and levoglucosan

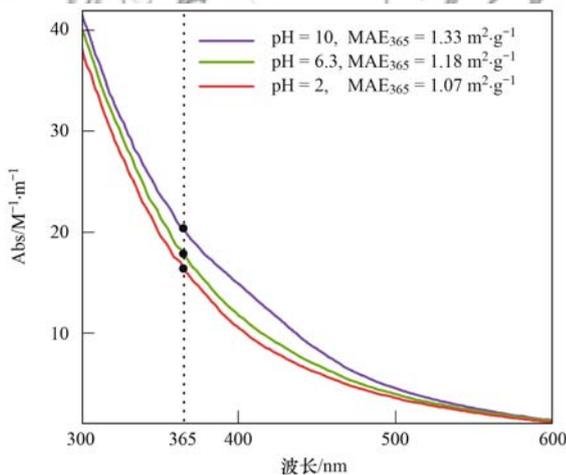


图 4 3 种 pH 水溶液 (pH 为 2、6.3 和 10) 中 300 ~ 600 nm 波长 BrC 吸光系数 (Abs) 和 365 nm 波长下单位质量吸光效率 (MAE)

Fig. 4 Absorption coefficient (Abs) of BrC at 300-600 nm and mass absorption efficiency (MAE) at 365 nm in three pH aqueous solutions (pH 2, 6.3, and 10)

2.2.2 BrC 光吸收昼夜特征

图 5 为崇明冬季甲醇萃取 BrC 的 Abs_{365} 、 MAE_{365} 和 AAE 的昼夜变化. 夜间 $\text{Abs}_{365,M}$ 平均值为 (5.57 ± 3.85) $\text{M}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$, 是白天的 1.1 倍, 为进一步扣除气象因素的影响, 本研究统计分析了 $\text{Abs}_{365,M}$ 与

崇明岛冬季 BrC 在 300 ~ 500 nm 波长范围内的 AAE_W 为 5.59 ± 0.47 , 略高于甲醇萃取的棕碳 (5.88 ± 0.21), 表明部分仅溶于甲醇的非极性棕碳物质对波长的依赖性较强. 同时, 本研究中的 AAE 值与西安和南京等地区相近, 但略低于北京^[40,44], 说明这些地区冬季的 BrC 发色团相似. 此外, 上述地区 BrC 主要来源于冬季生物质燃烧、燃煤和机动车排放, 因而崇明岛冬季 BrC 也可能具有类似的来源.

EC 的比值, 发现 $\text{Abs}_{365,M}/\text{EC}$ 也呈现相似的规律, 表明夜间气溶胶中含有较高的吸光性物质. 夜间左旋葡聚糖与 $\text{Abs}_{365,M}$ 具有强线性相关 ($R^2 = 0.72$), 左旋葡聚糖/EC 也呈现出昼低夜高的变化趋势, 说明夜晚生物质燃烧排放对崇明棕碳相比白天具有更高贡献. 此外, 有研究表明, 白天光解作用可导致吸光性的官能团发生断键或开环反应, 使得其光吸收降低^[48]. 而本研究白昼的 $\text{BeP}/(\text{BeP} + \text{BaP})$ 比值显著高于夜间 ($P < 0.1$), 表明白天气溶胶的光解老化程度较夜间更深, 这也使得白天棕碳的光吸收较低. 夜晚 BrC 的 $\text{MAE}_{365,M}$ 平均为 (0.94 ± 0.18) $\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, 是白天的 1.2 倍, 说明夜间 BrC 单位质量的吸光能力更强. 同时研究发现, 崇明岛夜间气溶胶酸度 (4.6) 高于白天 (4.4)^[45], 这可能是该地区夜间 BrC 单位质量吸光效率更高的另外一个重要原因, 这也进一步论证了前文的结论. 而冬季观测期间, 棕碳的 AAE_M 昼夜差异不大, 分别为 5.87 ± 0.24 和 5.89 ± 0.17 .

2.2.3 NACs 和 PAHs 吸光贡献

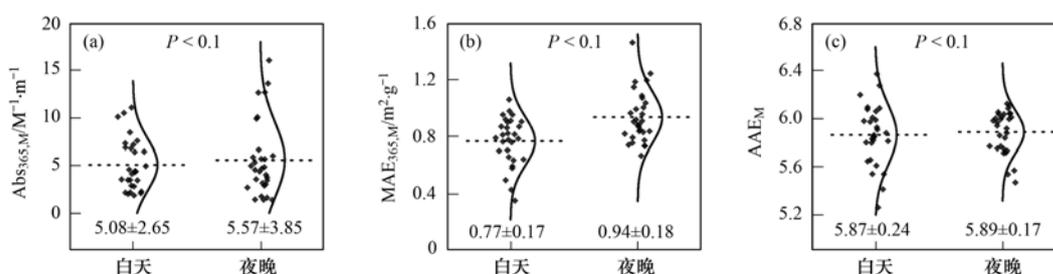
如前所述, NACs 和 PAHs 是气溶胶中重要的吸光性物质, 本研究利用 NACs 和 PAHs 中各物种的 MAE_{365} 值, 估算了两类物质对崇明岛 BrC 的光学贡

表 1 崇明岛及其他地区 BrC 光学参数对比

Table 1 Comparisons of BrC absorption between samples taken from Chongming Island and other areas

地点	季节	萃取方式	Abs ₃₆₅ /M ⁻¹ ·m ⁻¹	MAE ₃₆₅ /m ² ·g ⁻¹	AAE ₃₆₅	文献
上海崇明岛(郊区)	冬	水	4.16 ± 2.62	1.18 ± 0.42	5.59 ± 0.47	本研究
		甲醇	5.39 ± 3.33	0.86 ± 0.19	5.88 ± 0.21	
西安(农村)	冬	水	19.6 ± 8.3	0.93 ± 0.25	5.11 ± 0.53	[38]
		甲醇	21.9 ± 13.5	0.95 ± 0.32	6.04 ± 0.22	
南京(城市)	冬	水	9.44 ± 4.70	—	6.74	[44]
北京(城市)	冬	甲醇	12.48 ± 9.43	1.21 ± 0.71	5.55 ± 0.88	[17]
北京(城市)	冬	水	10.22 ± 6.93	1.22 ± 0.11	7.28 ± 0.24	[40]
		甲醇	26.20 ± 18.81	1.45 ± 0.26	7.10 ± 0.45	
西安(城市)	冬	水	25.2 ± 11.6	1.65 ± 0.36	—	[42]
		甲醇	46.3 ± 20.3	1.33 ± 0.34	—	
美国洛杉矶	冬	水	1.97 ± 0.93	0.61 ± 0.22	8.63 ± 0.55	[47]

1) “—”表示文章中没有相关数据



图中虚线位置对应底部平均数值

图 5 崇明岛季甲醇萃取 BrC 光学性质昼夜对比

Fig. 5 Diurnal variations of light-absorbing properties of BrC extracted by methanol in Chongming Island in winter

献. 如表 2 所示, NACs 对冬季 BrC 的贡献率为 0.10%, 其中 4NP 和 4NC 对 BrC 光吸收的贡献率分别为 0.053% 和 0.026%, 相较于其他硝基芳族化合物贡献率更高. PAHs 对冬季 BrC 的总贡献率平均为 0.067%. 其中, InP 贡献最高, 占 0.015%, 其次是 BeP 和 BbF, 分别贡献 0.011% 和 0.010%, Phe 和 BaA 贡献率最低.

值得注意的是, 本研究中 NACs 对气溶胶光吸收的贡献是对其对 OC 质量贡献的 2.7 ~ 8.5 倍, 这表明即使少量的发色团也会对 BrC 的光吸收特性产生较高的影响. 但通过与其他地区对比发现, 北京 (3.18%)^[17]、西安 (2.44% ± 1.78%)^[49] 和英国德特林 (4% ± 2%)^[4] 等地区 NACs 对 BrC 的吸光贡献显著高于崇明岛, 表明崇明岛 BrC 中还存在其他具有较强光吸收的物质, 需要在今后的研究中采取更先进的分析技术来发现和表征.

2.3 来源解析

为了揭示崇明岛冬季采样期间 BrC 的主要来源及各来源的贡献, 本研究采用 EPA-PMF 5.0 模型, 对棕碳的主要来源进行了定量解析. 模型解析结果显示, Q_{true} 和 Q_{Robust} 的值均为 1145, 实测值与模拟值之间的相关系数 $R^2 > 0.90$, 这也表明模型运行良好. 模型解析的主要因子及对棕碳的贡献见图 6.

表 2 NACs 和 PAHs 的质量浓度及吸光贡献

Table 2 Mass concentration and absorption contribution of NACs and PAHs

类型	项目	质量浓度 /ng·m ⁻³	MAE ₃₆₅ ^[31,42] /m ² ·g ⁻¹	吸光贡献 /%
硝基芳香族 化合物 (NACs)	4NP	1.11 ± 0.80	2.42	0.053
	3M4NP	0.09 ± 0.05	3.04	0.005
	4NGA	0.04 ± 0.05	8.61	0.008
	4NC	0.21 ± 0.23	7.67	0.026
	4M5NC	0.05 ± 0.07	8.89	0.007
	3NSA	0.003 ± 0.003	4.17	0.000
多环芳烃 (PAHs)	5NSA	0.011 ± 0.009	1.40	0.000
	总 NACs	1.49 ± 1.06	—	0.100
	Phe	0.65 ± 0.46	0.03	0.000
	Fla	1.12 ± 0.62	0.28	0.007
	Pyr	0.81 ± 0.47	0.35	0.006
	BaA	0.34 ± 0.25	0.28	0.001
	Chry	1.09 ± 0.68	0.09	0.002
	BbF	1.41 ± 0.78	0.35	0.010
	BkF	0.37 ± 0.21	0.77	0.003
	BeP	0.67 ± 0.38	0.77	0.011
	BaP	0.45 ± 0.34	1.07	0.006
InP	0.7 ± 0.42	0.18	0.015	
BghiP	0.63 ± 0.4	0.28	0.002	
DahA	0.09 ± 0.07	0.03	0.004	
总 PAHs	8.31 ± 4.66	—	0.067	

1) “—”表示文章中没有相关数据

因子 1 中 EC、K⁺、左旋葡聚糖、InP、BghiP、

BkF 和 BeP 的载荷均较高. 由于左旋葡聚糖和 K^+ 均为生物质燃烧源的示踪物, 而 InP、BghiP、BkF 和 BeP 等多环芳烃和 EC 在燃煤和机动车排放等化石燃料燃烧中排放较多^[50,51]. 因此, 因子 1 具有化石燃料和生物质燃烧源等燃烧源的混合特征, 即为燃烧源. 因子 2 载荷较高的组分是 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 和 WSOC. 其中 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 分别由气态前体物 SO_2 、 NO_2 和 NH_3 通过均相或非均相反应二次生成, WSOC 与二次有机气溶胶的形成密切相关^[22], 即因子 2 可能是二次源. 因子 3 中 Na^+ 、 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 的贡献率最高. 有研究表明, Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 主要来自建筑扬

尘^[20], 因此判定因子 3 为道路建筑扬尘源.

通过 PMF 模型估算了不同来源对 BrC 的贡献, 其中燃烧源贡献高达 56%, 二次源贡献率为 24%, 道路建筑扬尘源和其他源贡献率分别为 6% 和 14%, 表明崇明岛大气棕碳的来源以燃烧源为主, 同时二次生成也具有重要贡献.

综上, 燃烧源(56%)是崇明冬季 BrC 排放的重要来源, 这与西安(74%)、美国洛杉矶(71%)等地区研究结果相一致^[18,47,52]. 因此, 相关部门需加强居民散煤燃烧和生物质燃烧的管控力度, 以便有效缓解崇明岛冬季大气棕碳污染.

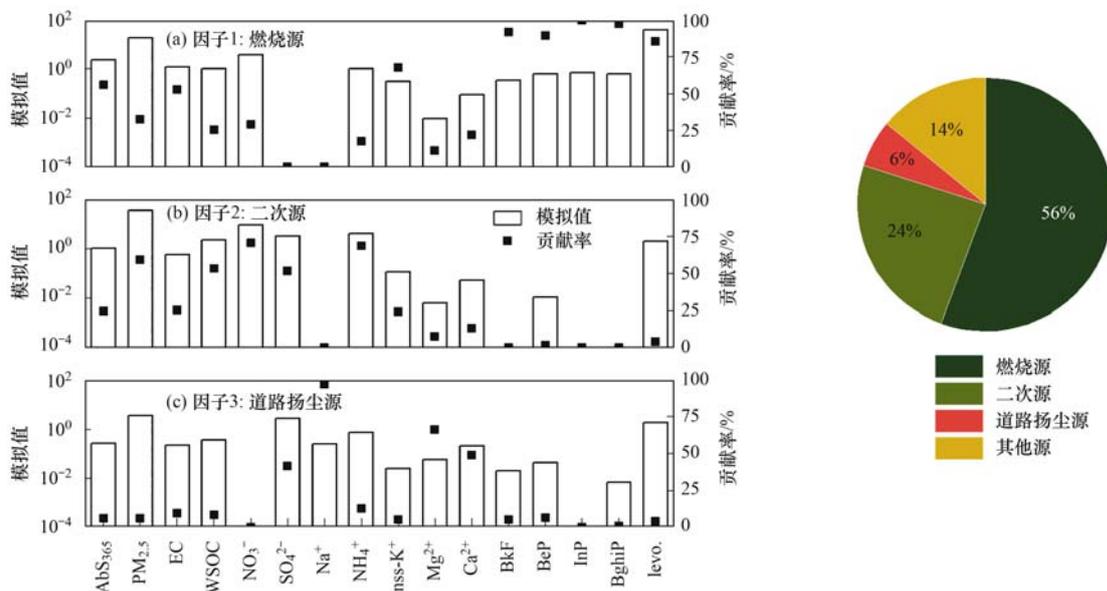


图 6 崇明岛大气 PM_{2.5} 中 BrC 的 PMF 源解析

Fig. 6 Source apportionment for BrC of PM_{2.5} in Chongming Island

3 结论

(1) 水萃取棕碳在 365 nm 波长处的平均 MAE₃₆₅ 是甲醇萃取棕碳的 1.4 倍, 表明崇明岛大气颗粒物中富含不溶于水且吸光能力较弱的有机物. 不同萃取液 pH 值对比发现: 弱酸环境下 BrC 具有更强的吸光性能, 表明我国大气富氨环境可导致棕碳吸光性能增强. 左旋葡聚糖与 Abs₃₆₅ 的强线性相关进一步表明崇明冬季 BrC 主要来源于生物质燃烧.

(2) Abs₃₆₅ 与 MAE₃₆₅ 均呈现夜高昼低的日变化特征, 夜间 pH 值较高及生物质燃烧等排放增强, 而白天光漂白效应较强, 光解老化程度加深, 从而导致了棕碳夜间较强的光吸收.

(3) NACs 和 PAHs 是影响 BrC 光吸收的重要物质, 其中, 4NP 和 4NC 光吸收最强, 对 BrC 总吸光性的贡献率分别为 0.053% 和 0.026%, 是其对 OC 质量贡献的 2.7~8.5 倍.

(4) 源解析结果显示, 生物质和化石燃料的不完全燃烧排放是崇明冬季 BrC 的主要来源, 对 BrC 的贡献为 56%, 其次是二次源的贡献, 占比为 24%, 而来自道路扬尘源的贡献仅为 6%, 表明除燃烧过程的一次排放外, 二次生成对崇明岛大气棕碳也具有重要贡献.

参考文献:

- [1] Kirillova E N, Andersson A, Tiwari S, *et al.* Water-soluble organic carbon aerosols during a full New Delhi winter: isotope-based source apportionment and optical properties[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2014, **119** (6): 3476-3485.
- [2] 闫才青, 郑玫, 张远航. 大气棕色碳的研究进展与方向[J]. *环境科学*, 2014, **35**(11): 4404-4414.
Yan C Q, Zheng M, Zhang Y H. Research progress and direction of atmospheric brown carbon [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(11): 4404-4414.
- [3] Feng Y, Ramanathan V, Kotamarthi V R. Brown carbon: a significant atmospheric absorber of solar radiation? [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13** (17): 8607-8621.

- [4] Mohr C, Lopez-Hilfiker F D, Zotter P, *et al.* Contribution of nitrated phenols to wood burning brown carbon light absorption in Detling, United Kingdom during winter time[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(12): 6316-6324.
- [5] Zhang Q, Shen Z X, Cao J J, *et al.* Variations in PM_{2.5}, TSP, BC, and trace gases (NO₂, SO₂, and O₃) between haze and non-haze episodes in winter over Xi'an, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **112**: 64-71.
- [6] Andreae M O, Gelencsér A. Black carbon or brown carbon? The nature of light-absorbing carbonaceous aerosols[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2006, **6**(10): 3131-3148.
- [7] Laskin A, Laskin J, Nizkorodov S A. Chemistry of atmospheric brown carbon[J]. *Chemical Reviews*, 2015, **115**(10): 4335-4382.
- [8] Bond T C. Spectral dependence of visible light absorption by carbonaceous particles emitted from coal combustion [J]. *Geophysical Research Letters*, 2001, **28**(21): 4075-4078.
- [9] Lei Y L, Shen Z X, Zhang T, *et al.* High time resolution observation of PM_{2.5} brown carbon over Xi'an in northwestern China: seasonal variation and source apportionment [J]. *Chemosphere*, 2019, **237**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.124530.
- [10] Pokhrel R P, Beamesderfer E R, Wagner N L, *et al.* Relative importance of black carbon, brown carbon, and absorption enhancement from clear coatings in biomass burning emissions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(8): 5063-5078.
- [11] Saleh R, Robinson E S, Tkacik D S, *et al.* Brownness of organics in aerosols from biomass burning linked to their black carbon content[J]. *Nature Geoscience*, 2014, **7**(9): 647-650.
- [12] Bones D L, Henricksen D K, Mang S A, *et al.* Appearance of strong absorbers and fluorophores in limonene-O₃ secondary organic aerosol due to NH₄⁺-mediated chemical aging over long time scales[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2010, **115**(D5), doi: 10.1029/2009JD012864.
- [13] Lee H J, Aiona P K, Laskin A, *et al.* Effect of solar radiation on the optical properties and molecular composition of laboratory proxies of atmospheric brown carbon[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(17): 10217-10226.
- [14] Smith J D, Sio V, Yu L, *et al.* Secondary organic aerosol production from aqueous reactions of atmospheric phenols with an organic triplet excited state [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(2): 1049-1057.
- [15] Xie M J, Chen X, Hays M D, *et al.* Light absorption of secondary organic aerosol: composition and contribution of nitroaromatic compounds [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, **51**(20): 11607-11616.
- [16] Lin P, Liu J M, Shilling J E, *et al.* Molecular characterization of brown carbon (BrC) chromophores in secondary organic aerosol generated from photo-oxidation of toluene[J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2015, **17**(36): 23312-23325.
- [17] Li X R, Yang Y, Liu S Q, *et al.* Light absorption properties of brown carbon (BrC) in autumn and winter in Beijing: composition, formation and contribution of nitrated aromatic compounds [J]. *Atmospheric Environment*, 2020, **223**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117289.
- [18] Wu C, Wang G H, Li J, *et al.* The characteristics of atmospheric brown carbon in Xi'an, inland China: sources, size distributions and optical properties[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, **20**(4): 2017-2030.
- [19] Zhang X L, Lin Y H, Surratt J D, *et al.* Sources. Composition and absorption Ångström exponent of light-absorbing organic components in aerosol extracts from the Los Angeles basin[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(8): 3685-3693.
- [20] 王心培, 王格慧, 谢郁宁, 等. 长三角背景点夏季大气 PM_{2.5} 中水溶性无机离子污染特征及来源解析[J]. *环境科学研究*, 2020, **33**(6): 1366-1375.
Wang X P, Wang G H, Xie Y N, *et al.* Chemical characterization and source apportionment of water-soluble inorganic ions of summertime atmospheric PM_{2.5} in background of Yangtze River Delta region [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2020, **33**(6): 1366-1375.
- [21] 薛国艳, 王格慧, 吴灿, 等. 长三角背景点夏季大气 PM_{2.5} 中正构烷烃和多环芳烃的污染特征和来源解析[J]. *环境科学*, 2020, **41**(2): 554-563.
Xue G Y, Wang G H, Wu C, *et al.* Pollution characteristics and source apportionment of *n*-alkanes and PAHs in summertime PM_{2.5} at background site of Yangtze River Delta [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(2): 554-563.
- [22] Wang G H, Zhou B H, Cheng C L, *et al.* Impact of Gobi desert dust on aerosol chemistry of Xi'an, inland China during spring 2009: differences in composition and size distribution between the urban ground surface and the mountain atmosphere [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(2): 819-835.
- [23] Chen Y, Bond T C. Light absorption by organic carbon from wood combustion [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(4): 1773-1787.
- [24] Ren Y Q, Wang G H, Wu C, *et al.* Changes in concentration, composition and source contribution of atmospheric organic aerosols by shifting coal to natural gas in Urumqi [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **148**: 306-315.
- [25] Wang G, Kawamura K, Xie M, *et al.* Size-distributions of *n*-alkanes, PAHs and hopanes and their sources in the urban, mountain and marine atmospheres over East Asia [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(22): 8869-8882.
- [26] Tao J, Zhang L M, Cao J J, *et al.* A review of current knowledge concerning PM_{2.5} chemical composition, aerosol optical properties and their relationships across China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(15): 9485-9518.
- [27] Chen Y F, Xie X C, Shi Z, *et al.* Brown carbon in atmospheric fine particles in Yangzhou, China: light absorption properties and source apportionment [J]. *Atmospheric Research*, 2020, **244**, doi: 10.1016/j.atmosres.2020.105028.
- [28] Fan X J, Song J Z, Peng P A. Temporal variations of the abundance and optical properties of water soluble humic-like substances (HULIS) in PM_{2.5} at Guangzhou, China [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **172-173**: 8-15.
- [29] Park S, Cho S Y, Bae M S. Source identification of water-soluble organic aerosols at a roadway site using a positive matrix factorization analysis [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **533**: 410-421.
- [30] Tan J H, Xiang P, Zhou X M, *et al.* Chemical characterization of humic-like substances (HULIS) in PM_{2.5} in Lanzhou, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **573**: 1481-1490.
- [31] Li X R, Jiang L, Bai Y, *et al.* Wintertime aerosol chemistry in Beijing during haze period: significant contribution from secondary formation and biomass burning emission [J]. *Atmospheric Research*, 2019, **218**: 25-33.
- [32] Lin P, Aiona P K, Li Y, *et al.* Molecular characterization of brown carbon in biomass burning aerosol particles [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50**(21): 11815-

- 11824.
- [33] Lin P, Bluvshstein N, Rudich Y, *et al.* Molecular chemistry of atmospheric brown carbon inferred from a nationwide biomass burning event[J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, **51**(20): 11561-11570.
- [34] 刘晓迪, 侯战方, 孟静静, 等. 聊城市冬季PM_{2.5}中多环芳烃来源解析及健康风险评估[J]. *环境科学*, 2019, **40**(9): 3875-3885.
- Liu X D, Hou Z F, Meng J J, *et al.* Source analysis and health risk assessment of PAHs in PM_{2.5} during winter in Liaocheng city [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(9): 3875-3885.
- [35] Teich M, van Pinxteren D, Wang M, *et al.* Contributions of nitrated aromatic compounds to the light absorption of water-soluble and particulate brown carbon in different atmospheric environments in Germany and China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(3): 1653-1672.
- [36] Chow K S, Huang X H H, Yu J Z. Quantification of nitroaromatic compounds in atmospheric fine particulate matter in Hong Kong over 3 years: field measurement evidence for secondary formation derived from biomass burning emissions[J]. *Environmental Chemistry*, 2015, **13**(4): 665-673.
- [37] Claeys M, Vermeylen R, Yasmeeen F, *et al.* Chemical characterisation of humic-like substances from urban, rural and tropical biomass burning environments using liquid chromatography with UV/vis photodiode array detection and electrospray ionisation mass spectrometry [J]. *Environmental Chemistry*, 2012, **9**(3): 273-284.
- [38] Li J J, Zhang Q, Wang G H, *et al.* Optical properties and molecular compositions of water-soluble and water-insoluble brown carbon (BrC) aerosols in northwest China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, **20**(8): 4889-4904.
- [39] Shen R R, Liu Z R, Chen X, *et al.* Atmospheric levels, variations, sources and health risk of PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons during winter over the North China Plain [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **655**: 581-590.
- [40] Cheng Y, He K B, Du Z Y, *et al.* The characteristics of brown carbon aerosol during winter in Beijing [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **127**: 355-364.
- [41] Zhu C S, Cao J J, Huang R J, *et al.* Light absorption properties of brown carbon over the southeastern Tibetan Plateau [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **625**: 246-251.
- [42] Huang R J, Yang L, Cao J J, *et al.* Brown carbon aerosol in urban Xi'an, northwest China: the composition and light absorption properties[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **52**(12): 6825-6833.
- [43] Kim H, Kim J Y, Jin H C, *et al.* Seasonal variations in the light-absorbing properties of water-soluble and insoluble organic aerosols in Seoul, Korea[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **129**: 234-242.
- [44] Chen Y F, Ge X L, Chen H, *et al.* Seasonal light absorption properties of water-soluble brown carbon in atmospheric fine particles in Nanjing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **187**: 230-240.
- [45] 王心培. 长三角背景点大气颗粒物中水溶性无机离子污染特征、来源与形成机制[D]. 上海: 华东师范大学, 2020. 63-65.
- Wang X P. Chemical characteristics, sources and formation mechanisms of atmospheric water-soluble inorganic ions at a background site of Yangtze River Delta region, China [D]. Shanghai: East China Normal University, 2020. 63-65.
- [46] Nah T, Guo H Y, Sullivan A P, *et al.* Characterization of aerosol composition, aerosol acidity, and organic acid partitioning at an agriculturally intensive rural southeastern US site [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(15): 11471-11491.
- [47] Soleimani E, Mousavi A, Taghvaei S, *et al.* Impact of secondary and primary particulate matter (PM) sources on the enhanced light absorption by brown carbon (BrC) particles in central Los Angeles [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **705**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.135902.
- [48] Hems R F, Abbatt J P D. Aqueous phase photo-oxidation of brown carbon nitrophenols: reaction kinetics, mechanism, and evolution of light absorption [J]. *ACS Earth and Space Chemistry*, 2018, **2**(3): 225-234.
- [49] Huang R J, Yang L, Shen J C, *et al.* Water-insoluble organics dominate brown carbon in wintertime urban aerosol of China: chemical characteristics and optical properties [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, **54**(13): 7836-7847.
- [50] Shen Z X, Zhang Q, Cao J J, *et al.* Optical properties and possible sources of brown carbon in PM_{2.5} over Xi'an, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **150**: 322-330.
- [51] Zhang Y X, Dou H, Chang B, *et al.* Emission of polycyclic aromatic hydrocarbons from indoor straw burning and emission inventory updating in China [J]. *Annals of the New York Academy of Sciences*, 2008, **1140**(1): 218-227.
- [52] 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.

CONTENTS

Transmission of Coronavirus via Aerosols and Influence of Environmental Conditions on Its Transmission	LI Xue, JIANG Jing-kun, WANG Dong-bin, <i>et al.</i>	(3091)
Impacts of Meteorology and Emission Variations on PM _{2.5} Concentration Throughout the Country During the 2020 Epidemic Period	LU Shi-ze, SHI Xu-rong, XUE Wen-bo, <i>et al.</i>	(3099)
Factors and Their Interaction Effects on the Distribution of PM _{2.5} in the Yangtze River Delta Based on Grids	HUANG Xiao-gang, ZHAO Jing-bo, XIN Wei-dong	(3107)
Application of ARIMA Model for Mid- and Long-term Forecasting of Ozone Concentration	LI Ying-ruo, HAN Ting-ting, WANG Jun-xia, <i>et al.</i>	(3118)
Pollution Characteristics and Sources of Wintertime Atmospheric Brown Carbon at a Background Site of the Yangtze River Delta Region in China	ZHAO Yu, WU Can, WANG Yi-qian, <i>et al.</i>	(3127)
Spatio-temporal Variation Characteristics Monitored by Remotely Sensed Technique of PM _{2.5} Concentration and Its Influencing Factor Analysis in Sichuan Basin, China	LI Meng-zhen, ZHANG Ting-bin, YI Gui-hua, <i>et al.</i>	(3136)
Construction of Continuous Dynamic Model for River Networks and Its Application in Simulation of Spatiotemporal Migration of Typical Biocides	XING Cheng, ZHANG Qian-qian, CAI Ya-ya, <i>et al.</i>	(3147)
Response of Riverine Nitrogen Exports to Land Use Pattern and Hydrological Regime in the Jiulong River Watershed	HUANG Ya-ling, HUANG Jin-liang	(3156)
Correlation Between Microplastics Pollution and Eutrophication in the Near Shore Waters of Dianchi Lake	YUAN Hai-ying, HOU Lei, LIANG Qi-bin, <i>et al.</i>	(3166)
Analysis of Water Quality and Exchange Flux of Interstitial Water-Overlying Water in Sediments of Baiyangdian Entrance Area in Summer	ZHANG Tian-na, ZHOU Shi-lei, CHEN Zhao-ying, <i>et al.</i>	(3176)
Distribution Characteristics and Pollution Evaluation of Nitrogen and Organic Matter in Overlying Water and Sediment of Guyun River and Jinshan Lake in Zhenjiang City	YUAN Lu-bin, XING Shu-yu, LIU Xin, <i>et al.</i>	(3186)
Spatial Distribution Characteristics of Phosphorus Fractions and Release Risk in Sediments of Honghu International Importance Wetland	LIU Yong-jiu, HUANG Su-zhen, ZHANG Lu, <i>et al.</i>	(3198)
Pollution Distribution and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in River Sediments from the Ancient Town of Suzhou	BAI Dong-rui, ZHANG Tao, BAO Jun-song, <i>et al.</i>	(3206)
Spatio-temporal Distribution Characteristic and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils Around Centralized Drinking Water Sources in Wuhan	ZHU Jing, HOU Yao-zong, ZOU Shu-cheng, <i>et al.</i>	(3215)
Hydro-chemical Characteristics and Ion Origin Analysis of Surface Groundwater at the Shengjin Lake and Yangtze River Interface	CUI Yu-huan, WANG Jie, LIU You-cun, <i>et al.</i>	(3223)
Identifying the Sources of Groundwater NO ₃ ⁻ -N in Agricultural Region of Qingdao	KOU Xin-yue, DING Jun-jun, LI Yu-zhong, <i>et al.</i>	(3232)
Analysis of Phytoplankton Community Stability and Influencing Factors in a Tributary of the Three Gorges Reservoir	HE Shu-han, OUYANG Tian, ZHAO Lu, <i>et al.</i>	(3242)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Phytoplankton Community in Harbin Urban River Network During Wet Season	LU Feng, LI Lei, QI Qing-song, <i>et al.</i>	(3253)
Response of Microbial Community to Natural Organic Matter Input in Lake Sediments	JU Qi, ZHANG Qi, CAO Chi-cheng, <i>et al.</i>	(3263)
Effects of Water Supply Quality and Social Activity on the Microbial Community in Baiyangdian Wetland	ZHAO Zhi-rui, WU Hui-qing, BI Yu-fang, <i>et al.</i>	(3272)
Characteristics of Dissolved Organic Matter in Overlying Water During Algal Bloom Decay	LI Xiang, LI Zhi-chun, WANG Xuan, <i>et al.</i>	(3281)
Water Pollution Characteristics and Source Apportionment in Rapid Urbanization Region of the Lower Yangtze River: Considering the Qinhuai River Catchment	MA Xiao-xue, GONG Chang, GUO Jia-xun, <i>et al.</i>	(3291)
Contamination Characteristics of Surface Runoff in Densely Populated Areas in Downstream Yangtze River, China	GUO Wen-jing, ZHANG Zhi-yong, WEN Xue-zheng, <i>et al.</i>	(3304)
Characteristics of Pollutant Dynamics Under Rainfall-Runoff Events in the Chaohe River Watershed	BAO Xin, JIANG Yan, HU Yu-cong	(3316)
Influence of Impervious Surface Roughness on Accumulation and Erosion of Urban Non-Point Source Particles	SHAN Xi-huan, XIE Wen-xia, LIAO Yun-jie, <i>et al.</i>	(3328)
Probabilistic Risk Assessment of Arsenic Exposure Through Drinking Water Intake in Chinese Residents	QIN Ning, LIU Yun-wei, HOU Rong, <i>et al.</i>	(3338)
Removal Behavior of Protein-like Dissolved Organic Matter During Different Water Treatment Processes in Full-Scale Drinking Water Treatment Plants	LI Meng-ya, SONG Yu-ying, ZHANG Xiao-lan, <i>et al.</i>	(3348)
Distribution of Heavy Metals and Their Corresponding Nanoparticles in Different Treatment Unit Processes in the Sewage Treatment Plant	WANG Du-jia, HE Shuai, ZHOU Xiao-xia	(3358)
Metagenomic Analysis of Resistance Genes in Membrane Cleaning Sludge	DU Cai-li, LI Zhong-hong, LI Xiao-guang, <i>et al.</i>	(3366)
Distribution and Removal of Antibiotic-Resistant Bacteria and Antibiotic Resistance Genes in Petrochemical Wastewater Treatment Plants	TANG Zhen-ping, XIAO Sha-sha, DUAN Yi, <i>et al.</i>	(3375)
Treatment of Medium Ammonium Wastewater by Single-stage Partial Nitrification-ANAMMOX SMBBR	LÜ Kai, SHAO Xian-ming, WANG Kang-zhou, <i>et al.</i>	(3385)
Two-Stage Denitrification Process Performance with Solid Slow-Release Carbon Source	TANG Yi, MA Yong-wen, WAN Jin-quan, <i>et al.</i>	(3392)
Effect of Ozone Dosage on Sludge Settleability and Biological Nutrient Removal in SBR System	LÜ Yong-tao, ZHU Chuan-shou, ZHANG Xu-yang, <i>et al.</i>	(3400)
First Extended Anaerobic Phase Enhanced Nitrogen and Phosphorus Removal by Aerobic Granular Sludge Under Intermittent Gradient Aeration	ZHANG Yu-jun, LI Dong, WANG Xin-xin, <i>et al.</i>	(3405)
Effect of Rate of Salinity Increase on the Performance and Microbial Community Structure of Sequencing Batch Reactors	GU Bai-ming, JIN Chun-ji, WEN Chun, <i>et al.</i>	(3413)
Effects of Cold Acclimation on the Activity of Autotrophic Nitrogen Removal in Granular Sludge and Its Bacterial Population Structure	QIAN Fei-yue, LIU Yu-xin, WANG Jian-fang, <i>et al.</i>	(3422)
Stabilization of Heavy Metals in Municipal Sludge Using a Slag-Based Modifying Agent	ZHANG Fa-wen, DONG Ming-kun, CHEN Chen-hui, <i>et al.</i>	(3430)
Role of Land Use Changes on Ammonia Emissions from Agricultural Ecosystems in the Yangtze River Delta Region from 2000 to 2018	WANG Wen-jin, WANG Qing, ZHU An-sheng, <i>et al.</i>	(3442)
Effects of Wheat Straw Hydrochar and Its Modified Product on Rice Yield and Ammonia Volatilization from Paddy Fields	HAN Chen, HOU Peng-fu, XUE Li-hong, <i>et al.</i>	(3451)
Effects of Water and Fertilization Management on CH ₄ and N ₂ O Emissions in Double-rice Paddy Fields in Tropical Regions	LI Jin-qiu, SHAO Xiao-hui, GOU Guang-lin, <i>et al.</i>	(3458)
Community Characteristics of Methanogens and Methanogenic Pathways in Salt-tolerant Rice Soil	YANG Yu-hong, HE Hui, MI Tie-zhu, <i>et al.</i>	(3472)
Effect of Ferric-carbon Micro-electrolysis on Greenhouse Gas Emissions from Constructed Wetlands	ZHAO Zhong-jing, HAO Qing-ju, TU Ting-ting, <i>et al.</i>	(3482)
Screening and Evaluation of Methods for Determining Available Lead (Pb) and Cadmium (Cd) in Farmland Soil	CHEN Ying, LIU Han-yi, LIU Na, <i>et al.</i>	(3494)
Spatial Distribution Trends and Influencing Factors of Typical Heavy Metals in Subtropical Alpine Forest Soils: A Case Study from Ailao Mountain in Yunnan Province	LIU Xu, WANG Xun, WANG Ding-yong	(3507)
Environmental Background Values of Heavy Metals and Physicochemical Properties in Different Soils in Shenzhen	LIN Ting, ZHAO Shu-hua, XI Xiu-ping, <i>et al.</i>	(3518)
Screening of Amendments for Simultaneous Cd and As Immobilization in Soil	ZHOU Si-jiang, LIU Zhen-yan, XIONG Shuang-lian, <i>et al.</i>	(3527)
Simultaneous Immobilization of Arsenic, Lead, and Cadmium in Paddy Soils Using Two Iron-based Materials	YUAN Feng, TANG Xian-jin, WU Ji-zi, <i>et al.</i>	(3535)
Pollution Characteristics of Organophosphate Esters in Frozen Soil on the Eastern Edge of Qinghai-Tibet Plateau	LIU Li-ya, YIN Hong-ling, JIAN Lin-jie, <i>et al.</i>	(3549)
Analysis of Spatial Distribution and Influencing Factors of Nitrogen and Phosphorus Fertilizer Application Intensity in Chengdu Plain	LIU Qi-xin, WANG Chang-quan, LI Bing, <i>et al.</i>	(3555)
Different Responses of Soil Dissolved Organic Matter to Different Types of Compost	XI Bei-dou, WANG Yan, TAN Wen-bing, <i>et al.</i>	(3565)