

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

中国主要城市土壤重金属累积特征与风险评价

彭驰, 何亚磊, 郭朝晖, 肖细元, 张严



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年1月

第43卷 第1期
Vol.43 No.1

目次

中国主要城市土壤重金属累积特征与风险评价	彭驰, 何亚磊, 郭朝晖, 肖细元, 张严 (1)
植物生长调节剂在土壤中的环境行为综述	陈亮, 侯杰, 胡晓蕾, 张纪兆, 王浩达 (11)
基于铁泥的磁性水处理材料制备及应用进展	曾辉平, 翟龙雪, 李冬, 张杰 (26)
不同臭氧度量指标对我国人群总死亡影响的 Meta 分析	阮芳芳, 刘纪新, 陈芷薇, 曾贤刚 (37)
北京市海坨山冬季不同污染过程下气溶胶化学组分及其潜在来源分析	赵德龙, 王飞, 刘丹彤, 田平, 盛久江, 周崑, 肖伟, 杜远谋, 卢俐, 黄梦宇, 何晖, 丁德平 (46)
武汉冬季大气 PM _{2.5} 小时分辨率源贡献识别及潜在影响域分析	蒋书凝, 孔少飞, 郑煌, 曾昕, 陈楠, 祁士华 (61)
运城市 PM _{2.5} 时空分布特征和潜在源区季节分析	王姝涛, 张强, 温肖宇, 冀乃超, 赵文婷, 罗淑贞, 陈志, 翟程凯 (74)
中国东部冷锋推进中的 PM _{2.5} 三维结构变化特征	牟南南, 朱彬, 卢文 (85)
粤港澳大湾区大气中硝基多环芳烃污染特征与风险评估	李彦希, 谢丹平, 黎玉清, 金梦, 丁紫荣, 闫雅楠, 赵波 (93)
西南地区大型综合工业区和周边区域大气 VOCs 污染特征及健康风险评估	李陵, 张丹, 胡伟, 徐芹, 吴虹, 袁睿, 蒲茜, 郝宇杭, 唐志欣, 赖明敏 (102)
拉萨市挥发性有机物的组成特征、季节变化和来源解析	余家燕, 韩燕, 陈木兰, 张惠芳, 陈阳, 刘建国 (113)
杭州 COVID-19 期间大气 VOCs 体积分数变化特征	林旭, 严仁娣, 金嘉佳, 许凯儿, 何曦, 叶辉, 何纪平 (123)
上海城郊夏季大气 VOCs 在臭氧生成中的作用	金丹 (132)
铜川市秋冬季大气 VOCs 特征及其 O ₃ 和 SOA 形成潜势分析	易宵霄, 李姜豪, 李光华, 路珍珍, 孙智钢, 高健, 邓顺熙 (140)
电子垃圾拆解回收 VOCs 排放特征与排放因子	谢丹平, 黄忠辉, 刘旺, 聂鹏, 黄钟坤, 贺辉, 陈晓燕 (150)
不同传输通道下珠江三角洲臭氧与前体物非线性响应关系	伍永康, 陈伟华, 颜丰华, 毛敬英, 袁斌, 王伟文, 王雪梅 (160)
淄博市城郊臭氧污染特征及影响因素分析	王雨燕, 杨文, 王秀艳, 王帅, 白瑾丰, 程颖 (170)
昭通市周边扬尘重金属污染特征及健康风险	庞晓晨, 韩新宇, 史建武, 包宇斋, 宁平, 张朝能, 向峰 (180)
城市路面积尘微塑料污染特征	方芹, 牛司平, 陈予东, 于江华 (189)
塔里木河流域东部降水稳定同位素特征与水汽来源	宋洋, 王圣杰, 张明军, 石玉东 (199)
赤水河流域水体抗生素污染特征及风险评估	吴天宇, 李江, 杨爱江, 李彦澄, 陈瑀, 何强, 马凯, 胡霞, 王斌, 艾佳, 钟雄 (210)
无定河流域地表水地下水的水化学特征及控制因素	李书鉴, 韩晓, 王文辉, 李志 (220)
白洋淀府河影响区沉积物营养盐和重金属污染特征及风险评估	陈兴宏, 李立青, 张美一, 张伟军, 王东升, 王洪志 (230)
九龙江口红树林湿地表层沉积物中微塑料赋存特征与重金属的关系	刘倡君, 罗专溪, 闫钰, 林惠荣, 胡恭任, 于瑞莲 (239)
北京市北运河水系底栖动物群落与水环境驱动因子的关系及水生态健康评价	胡小红, 左德鹏, 刘波, 黄振芳, 徐宗学 (247)
城市河道再生水特征水质因子空间变异机制分析	刘全忠, 彭柯, 苏振华, 邸琰茗, 郭道宇 (256)
苏州景观河道表层沉积物间隙水-上覆水中 DOM 特性分析	李超男, 何杰, 朱学惠, 李学艳 (267)
苏州城区雨水管道沉积物典型污染物分布特征	叶蓉, 盛铭军, 姜永波, 武宇圣, 黄天寅 (277)
信号分子强化改性挂膜沸石持续抑制沉积物中氨氮释放	徐金兰, 许洋, 李修民, 国森, 刘成海 (285)
三峡水库调度对支流水体叶绿素 a 和环境因子垂向分布的影响	田盼, 李亚莉, 李莹杰, 李虹, 王丽婧, 宋林旭, 纪道斌, 赵星星 (295)
李家水库春季分层期 nirS 型反硝化菌群特征分析	梁伟光, 黄廷林, 张海涵, 杨尚业, 刘凯文, 李程遥, 温成成, 李伟涛, 蔡晓春 (306)
岗南水库沉积物好氧反硝化菌群落时空分布特征	张紫薇, 陈召莹, 张甜娜, 周石磊, 崔建升, 罗晓 (314)
宁夏地区地下水金属元素分布特征及健康风险评估	王晓东, 田伟, 张雪艳 (329)
快速城镇化三角洲地区高碘地下水赋存特征及驱动因素;以珠江三角洲为例	吕晓立, 刘景涛, 韩占涛, 周冰, 李备 (339)
长三角一体化示范区青浦区水环境中 22 种 PPCPs 的多介质分布特征及风险评估	张智博, 段艳平, 沈嘉豪, 俞文韬, 罗鹏程, 涂耀仁, 高峻 (349)
洞庭湖及入湖河流中 209 种多氯联苯同类物分布特征与风险评估	黄智峰, 郑丙辉, 尹大强, 崔婷婷, 赵兴茹 (363)
基于流量和溶存浓度的河流水系氧化亚氮释放量估算	李冰清, 胡敏鹏, 王铭烽, 张育福, 吴昊, 周佳, 吴铭彬, 戴之舟, 陈丁江 (369)
三峡库区万州段河流水-气界面 CO ₂ 通量支干流对比及影响机制初探	秦宇, 欧阳常悦, 王雨潇, 方鹏 (377)
功能化凹凸棒吸附材料的制备及其对重金属废水中 Pb ²⁺ 的吸附行为	廖晓峰, 钟静萍, 陈云嫩, 邱廷省, 任嗣利 (387)
铁氮共掺杂生物炭对二级水溶解性有机物的吸附特性与长效性评价	吴晨曦, 许路, 金鑫, 石烜, 金鹏康 (398)
沸石悬浮填料生物移动床的亚硝化特性	邓翠兰, 郭露, 汪晓军, 陈振国 (409)
温度对 ANAMMOX 生物膜工艺的脱氮影响与菌群结构分析	吴珊, 王淑雅, 王芬, 季民 (416)
填料对 ANAMMOX 污泥活性恢复的影响及菌群特征	罗景文, 杨津津, 李绍康, 赵昕宇, 杨一飞, 韩嘉琛, 李翔 (424)
基于 PMF 模型的宁南山区小流域土壤重金属空间分布及来源解析	夏子书, 白一茹, 王幼奇, 高小龙, 阮晓晗, 钟艳霞 (432)
浙中典型硫铁矿农田土壤重金属含量特征及健康风险	成晓梦, 孙彬彬, 吴超, 贺灵, 曾道明, 赵辰 (442)
农产品视角的城郊黑土地农田重金属风险分区	吴松泽, 王冬艳, 李文博, 王兴佳, 闫卓冉 (454)
基于 DGT 技术的广西碳酸盐岩区稻米镉含量主控因素	宋波, 肖乃川, 马丽钧, 李龙, 陈同斌 (463)
调理剂耦合水分管理对双季稻镉和铅累积的阻控效应	李林峰, 王艳红, 李义纯, 唐明灯, 李奇, 艾绍英 (472)
设施叶菜类蔬菜重金属镉、铅和砷累积特征及健康风险评估	董俊文, 高培培, 孙洪欣, 周昶, 张香玉, 薛培英, 刘文菊 (481)
电子垃圾拆解固废-土壤-蔬菜中多氯联苯污染特征与健康风险评估	张亚萍, 吕占禄, 王先良, 张峰, 郭凌川, 丁秀丽, 张金良 (490)
雷州半岛南部典型农用地土壤-作物的有机氯农药残留特征和健康风险评估	梁晓晖, 解启来, 郑芊, 杨北辰, 叶金明, 唐成金 (500)
重金属含量对城市土壤真菌群落结构的影响	郭大陆, 张建, 申思, 余子洁, 杨军顺, 罗红燕 (510)
长期施肥对黄土高原梯田土壤养分特征和微生物资源限制的影响	吴春晓, 高小峰, 闫本帅, 梁彩群, 陈佳瑞, 王国梁, 刘国彬 (521)
土地利用变化后不同种植年限香榧土壤微生物群落的组成及多样性	姜宽雯, 梁辰飞, 张勇, 蒋仲龙, 董佳琦, 吴家森, 傅伟军 (530)
化肥和有机肥配施生物炭对土壤磷酸酶活性和微生物群落的影响	杨文娜, 余添, 罗东海, 熊子怡, 王莹燕, 徐曼, 王子芳, 高明 (540)
秦岭中段撂荒地植被恢复过程中土壤微生物代谢特征	薛悦, 康海斌, 杨航, 冰德叶, 晁志, 张凯, 王得祥 (550)
全生物降解地膜原料颗粒对土壤性质、小麦生长和养分吸收转运的影响	闵文豪, 王春丽, 王莉玮, 易廷辉, 卞京军, 支梅, 孙琪惠, 宿锦锦, 赵秀兰 (560)
秸秆还田对冬小麦-夏玉米农田土壤固碳、氧化亚氮排放和全球增温潜势的影响	万小楠, 赵珂悦, 吴雄伟, 白鹤, 杨学云, 顾江新 (569)

北京市海坨山冬季不同污染过程下气溶胶化学组分及其潜在来源分析

赵德龙^{1,2,3}, 王飞^{1,2,3}, 刘丹彤⁴, 田平^{1,2,3}, 盛久江^{1,2,3}, 周崑^{1,2,3}, 肖伟^{1,2,3}, 杜远谋^{1,2,3}, 卢俐⁵, 黄梦宇^{1,2,3}, 何晖^{1,2,3}, 丁德平^{1,2,3}

(1. 北京市人工影响天气办公室, 北京 100089; 2. 中国气象局华北云降水野外科学实验基地, 北京 101200; 3. 云降水物理研究和云水资源开发北京市重点实验室, 北京 101200; 4. 浙江大学地球科学学院大气科学系, 杭州 310027; 5. 北京市气象信息中心, 北京 100089)

摘要: 为了探讨京津冀地区冬季背景大气中气溶胶化学组分特征及其来源分布, 使用 GRIMM 180、单颗粒黑碳光度计 (SP2) 和高分辨率飞行时间气溶胶质谱仪 (HR-TOF-AMS) 观测了海坨山 2020 年 12 月 28 日至 2021 年 2 月 3 日 PM 和化学组分, 结合气象数据和 HYSPLIT 模式, 计算了潜在源贡献因子 (PSCF) 和浓度权重轨迹 (CWT), 分析了不同污染过程下 PM 和气溶胶化学组分的时间演变特征及其潜在来源。结果表明, 海坨山冬季沙尘过程主要影响 PM₁₀ 和 PM_{2.5}, 对 PM₁ 的影响较小; 而霾污染正好相反, 主要影响 PM₁。化学组分在干净天和霾污染中占 PM₁ 的比例分别为 85.0% 和 73.4%, 而在沙尘天仅占 PM₁ 的 47.4%。霾污染过程中 NO₃⁻ 的质量浓度最大, 占 PM₁ 的 25.2%; 在干净天和沙尘天黑碳 (BC) 的质量浓度最大, 占 PM₁ 的 24.1% 和 12.8%。BC 气溶胶的中值直径在干净天、沙尘天和霾污染中分别为 209.7、207.5 和 204.7 nm。D_p/D_c 在霾污染中最大, 为 2.15, 分别是沙尘天和干净天的 1.38 和 1.39 倍。不同过程下 PM 和气溶胶化学组分的日变化特征不同。PM₁₀ 和 PM_{2.5} 的日变化在干净天和沙尘天为夜间高白天低, 在霾污染为单峰型分布, 峰值位于 14:00。化学组分日变化在干净天为单峰型分布, 在沙尘天和霾污染过程为双峰型分布。不同过程下 BC 的包裹层成分不同。BC 的包裹层在干净天主要是 NH₄NO₃, 在沙尘天主要是 (NH₄)₂SO₄, 在霾污染天主要是有机物。不同过程中 PM₁ 及其化学组分的潜在来源分布不同。潜在源区高值区在沙尘天主要集中在西南部的北京-保定-石家庄-阳泉一带, 在霾污染天主要集中在观测点周边的延庆、怀来和昌平一带。

关键词: 海坨山; 黑碳 (black carbon, BC); 高分辨率飞行时间气溶胶质谱仪 (HR-TOF-AMS); 沙尘; 霾

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)01-0046-15 DOI: 10.13227/j.hjxx.202106005

Variation Characteristics and Potential Sources of the Mt. Haituo Aerosol Chemical Composition in Different Pollution Processes During Winter in Beijing, China

ZHAO De-long^{1,2,3}, WANG Fei^{1,2,3}, LIU Dan-tong⁴, TIAN Ping^{1,2,3}, SHENG Jiu-jiang^{1,2,3}, ZHOU Wei^{1,2,3}, XIAO Wei^{1,2,3}, DU Yuan-mou^{1,2,3}, LU Li⁵, HUANG Meng-yu^{1,2,3}, HE Hui^{1,2,3}, DING De-ping^{1,2,3}

(1. Beijing Weather Modification Office, Beijing 100089, China; 2. China Field Experiment Base of Cloud and Precipitation Research in North China, China Meteorological Administration, Beijing 101200, China; 3. Beijing Key Laboratory of Cloud, Precipitation and Atmospheric Water Resources, Beijing 101200, China; 4. Department of Atmospheric Sciences, School of Earth Sciences, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China; 5. Beijing Meteorological Information Center, Beijing 100089, China)

Abstract: In order to investigate the chemical composition and source apportionment of aerosols during winter in the Beijing-Tianjin-Hebei region, the particulate matter (PM) and aerosol chemical composition at Mt. Haituo were observed by using a GRIMM 180, a single-particle soot photometer (SP2), and a high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer (HR-TOF-AMS) from December 28, 2020 to February 3, 2021. Combining these observations with meteorological data and the HYSPLIT model, we calculated the potential source contribution factor (PSCF) and concentration weighted trajectory (CWT) and analyzed the temporal evolution and potential sources apportionment of PM and aerosol chemical composition under different pollution processes. The results showed that the dust storm process mainly affected PM₁₀ and PM_{2.5} in Mt. Haituo during the winter and had a small impact on PM₁; by contrast, haze pollution mainly affected PM₁. Chemical components of aerosol accounted for 85.0% and 73.4% of PM₁ on clean and haze days, respectively, but only 47.4% of PM₁ in dust storm processes. NO₃⁻ was the chemical component with the largest mass concentration in haze, accounting for 25.2% of PM₁; black carbon (BC) had the largest mass concentration on clean and dust storm days, accounting for 24.1% and 12.8% of PM₁, respectively. The median diameters of BC were 209.7, 207.5, and 204.7 nm on clean, dust storm, and haze days, respectively. D_p/D_c was 2.15 in haze pollution, which was 1.38 and 1.39 times that on dust storm and clean days, respectively. Diurnal variations in PM and aerosol chemical components were different during the different processes. PM₁₀ and PM_{2.5} had high mass concentrations at night and low mass concentrations during the daytime on clean and dust storm days and had a unimodal distribution with a peak at 14:00 in haze. Diurnal variations in chemical composition had a unimodal distribution on clean days and a bimodal distribution on dust storm and haze days. The chemical compositions of the BC coating layer were different under different processes. The coating layers of BC were mainly NH₄NO₃, (NH₄)₂SO₄, and organic matter on the clean, dust storm, and haze days, respectively. The distribution of potential sources of PM₁ and its chemical components were different under different processes. The high-value area of the potential sources was mainly concentrated in the Beijing-Baoding-Shijiazhuang-Yangquan area in the southwestern portion of the site during dust storms and was mainly concentrated in Yanqing, Huailai, and Changping in the areas around the site during haze.

收稿日期: 2021-06-01; 修订日期: 2021-06-15

基金项目: 国家重点研发计划项目 (2016YFA0602001)

作者简介: 赵德龙 (1984 ~), 男, 硕士, 高级工程师, 主要研究方向为云气溶胶, E-mail: zhaodelong@bj.cma.gov.cn

Key words: Mt. Haituo; black carbon (BC); high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer (HR-TOF-AMS); dust storm; haze

气溶胶作为大气的重要组成部分之一,可以通过散射和吸收太阳光,减少到达地面的太阳辐射,还可以作为云凝结核或者冰核,影响全球降水和云的微物理特征,进而影响全球气候变化^[1~4]. 在城市地区,气溶胶浓度增加还会使得能见度降低,形成霾污染^[5~8]. 此外,气溶胶组分中含有大量的有毒有害物质,气溶胶还可作为病毒传播的载体,对人体健康造成较大危害^[9~11].

黑碳(black carbon, BC)作为气溶胶中最重要的吸收性组分,主要来自含碳物质的不完全燃烧过程^[12~14]. BC 对环境和气候的最直接的影响在于其对太阳短波辐射的吸收作用,有研究表明在大气不同高度 BC 的加热作用所表现出的环境效应具有显著差异^[15~18]. 在边界层上部 BC 加热作用可以使得大气稳定度增加,产生“穹顶效应”,进而可以加剧城市地区的霾污染过程^[15~16]. 而如果 BC 在近地面加热大气,则会使得近地面温度升高,对流加强,产生所谓的“火炉效应”,有利于边界层的发展,减轻城市霾污染^[17]. BC 的吸光特性与浓度、粒径分布和混合状态密切相关^[19~21]. 新鲜排放的 BC 粒子是不规则的团簇结构,与大气中其他成分相互独立存在,此时为外混合状态^[22~24]; 在经历碰并、吸湿增长和化学反应等老化过程后,大气中其他物质(有机物、硫酸盐和硝酸盐等)在其表面形成包裹层,BC 的结构和形态发生变化,此时变为内混合状态^[25~27]. BC 与其他化学组分的外混合状态和内混合状态对气溶胶的消光特性的影响较大^[28~30]. 此外,BC 混合状态的改变还会影响其吸湿性和在大气中的停留时间,新鲜的 BC 为疏水性,发生老化后会变为亲水性,有利于颗粒物的吸湿增长,并且可以作为云凝结核和冰核^[31~33]. 同时 BC 的内混合状态相较于外混合状态其理化特征改变较大,在大气中停留时间较长,对太阳短波辐射的吸收增强,模式模拟表明内混合状态 BC 比外混合状态对于太阳辐射的吸收增加 50% 以上^[34].

近年来,随着人们对细颗粒物认识和研究的深入,发现亚微米级颗粒物(PM_{10})相对于细颗粒物的其它粒径段,对人类健康效应影响和环境及气候的影响更大. 目前,亚微米级颗粒物已成为更多人关注的焦点. PM_{10} 中的主要化学组分包括有机气溶胶以及水溶性无机组分(如 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 和 Cl^-). 以往针对 PM_{10} 中化学组分的研究主要是基于滤膜采样,受化学分析所需样品量及人工操作的限制,时间分辨率低,无法捕捉到气溶胶的快速演化过

程^[35~38]. 近年来高分辨率在线测量仪器——高分辨率飞行时间气溶胶质谱仪(HR-TOF-AMS)的出现大大推动了大气气溶胶来源解析研究方面的发展,大量学者开展了我国城市地区实际大气亚微米级颗粒物物理化学特性的相关研究^[39~43]. 早期, Sun 等^[40]基于四级杆气溶胶质谱仪(Q-AMS)的观测数据发现, 2006 年北京地区亚微米级颗粒物中 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 Cl^- 和有机物分别占 25%、22%、16%、1.4% 和 35%. 随着质谱技术的发展,高质量分辨率飞行时间质谱仪(HR-TOF-AMS)及颗粒物化学组分监测仪(ACSM)被广泛应用于北京不同时期亚微米级颗粒物浓度水平及化学组成变化的研究,并结合受体模型 PMF 探讨了有机气溶胶的来源演变机制^[41~43].

京津冀地区作为我国气溶胶污染最严重的地区,近年来针对京津冀地区气溶胶的时空分布、化学组成、粒径分布、来源和形成机制等开展了大量的研究^[44~49]. 自 2013 年 9 月 10 日,国务院印发《大气污染防治行动计划》以来,制定了详细的大气污染物减排目标,截至到 2017 年,中国完成了针对 $PM_{2.5}$ 污染的大气污染防治第一阶段任务,京津冀地区的 $PM_{2.5}$ 年均值下降了 40%,由 $106.1 \mu g \cdot m^{-3}$ 下降到 $64.3 \mu g \cdot m^{-3}$ ^[45]. 但是京津冀区域城市群密集,人口众多,集聚了大量的水泥、钢铁、炼油石化等高污染产业和遍布各地的无组织零散高危害产业,人为源污染物排放量仍然非常巨大,而当地地形和气候系统又不利于污染扩散^[50~52]. 以北京为例,由于特殊的地形和气候条件,在秋冬季节形成区域性霾污染天的几率较大^[44]. 因此本研究选取北京西北部的海坨山作为观测点,使用 GRIMM 180、SP2 和 HR-TOF-AMS 观测了海坨山 2020 年 12 月 28 日至 2021 年 2 月 3 日 PM 和气溶胶化学组分,结合气象数据和 HYSPLIT 模式,计算了潜在源贡献因子(PSCF)和浓度权重轨迹(CWT),分析了冬季京津冀地区背景大气中气溶胶化学组分特征及其来源分布,观测期间出现了一次沙尘过程和霾污染过程,对比分析了不同污染过程中气溶胶化学组分时间演变特征及其潜在来源的差异,以期制定区域污染防治措施提供有力的科学支撑.

1 材料与方法

1.1 观测站点介绍

观测地点位于北京市西北延庆区北京市人工影响天气办公室海坨山高山观测站($40.52^\circ N$,

115.78°E, 海拔高度1 344 m)。海坨山位于延庆区张山营镇北部与河北赤城县交界处,距延庆约 18 km,距北京 130 km,主峰海拔2 241 m,为北京第二高峰,延庆区第一高峰。海坨山方圆 10 余 km,总面积 100 余 km²;山脉呈西南-东北走向,是北京与河北的自然分界和分水岭。观测数据包括 PM(PM₁₀、PM_{2.5}和 PM₁)、BC、有机物、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺、Cl⁻和气象数据(温度、风速、风向、RH、降水量、大气压强和能见度),时间分辨率为 1h。观测时间为 2020 年 12 月 28 日至 2021 年 2 月 3 日。

1.2 观测仪器介绍

BC 主要利用美国 DMT 公司生产的在线单颗粒黑碳光度计(single particle soot photometer, SP2)来进行测量,详细的仪器结构以及工作原理参见文献[53~55]。简单来说就是当一个 BC 气溶胶粒子穿过激光束,BC 表层包裹物被燃烧蒸发,发出散射光信号,如果是纯的 BC 粒子,散射信号较小且只为单峰分布。当包裹物被燃烧掉之后,BC 粒子开始吸光受热到气化,发出白炽光信号。其中白炽信号的强度峰值与 BC 的浓度成正比,再根据标定系数计算出 BC 质量。其中 BC 的包裹厚度(D_p/D_c)由整个粒子的散射信号以米散射原理计算的粒子的直径与 BC 粒子的碳芯直径的比值而定。

其他大气组分主要由美国 AERODY 公司的高分辨率飞行时间气溶胶质谱仪(HR-TOF-AMS)进行观测,用于在线定量测量非难溶性亚微米气溶胶(non-refractory PM₁, NR-PM₁)的化学组分(包括有机物、NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺和 Cl⁻)以及对气溶胶中有机成分进行源解析和元素分析^[56,57]。当大气气溶胶粒子进入 HR-AMS 后,会经过一组特制的空气动力学聚束装置被聚成一束后,然后通过一个斩波器进入一个固定长度的真空粒子飞行室,粒子经过斩波器后进入真空飞行室时会受两端气压差影响得到一个初始速度,而不同粒径的颗粒物速度不同,通过记录颗粒的飞行时间即可计算其粒径大小。经过飞行室后,气溶胶粒子中的非难熔组分如铵盐、硝酸盐、硫酸盐、氯盐和大部分有机组分会瞬间被钨蒸发器热分解(600℃),同时经 70 eV 的电子轰击硬电离,最后进入飞行时间质谱仪(TOF-MS)得到其质谱,TOF-MS 分为飞行距离较短的 V 模态和飞行时间较长的 W 模态,V 模态由于飞行距离短所以离子损失少但分辨率不高,W 模态则对离子碎片损失较大但对离子碎片的分辨率较高,如能够区分同一质荷比下不同的离子碎片。

PM 浓度(PM₁₀、PM_{2.5}和 PM₁)使用德国 GRIMM 气溶胶技术公司研制和生产的 EDM180 型

在线环境颗粒物监测系统观测。抽气泵以恒定流量 1.20 L·min⁻¹将环境空气吸入样气室。激光源产生绿色激光以高频率照射样气室,其频率足够快,保证在样气室中的颗粒物浓度在一定范围内,不会错过穿过气室的任何颗粒物。如有颗粒物存在,激光照在上面会发生散射,在同一平面上与激光照射方向成 90°角的检测器会收到被对面的反射镜聚焦的散射光,其强弱与颗粒物的直径大小有关,与颗粒物颜色无关。检测器收到的脉冲信号是与产生散射的颗粒物直径大小有相关性的。这样,检测器就为所有经过样气室的颗粒物产生各自相应的脉冲信号。脉冲信号计数器记录颗粒物的个数同时脉冲信号分析器给出了每个颗粒物相应的脉冲强弱的分级,也就可得到出每个颗粒物粒径的大小和数量浓度分布。最后通过模式计算得到 PM₁₀、PM_{2.5}和 PM₁ 的浓度。

1.3 HYSPLIT 后向轨迹模式

本文所采用的后向轨迹模式是由美国国家海洋及大气管理局(NOAA)开发的轨迹计算模式 HYSPLIT(<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>)。该模式目前已在大气污染物输送研究中得到了广泛的应用^[58]。利用 HYSPLIT 模式计算了观测期间每小时距地 500m 高度的 24h 后向轨迹。模式采用的气象场为美国国家环境预报中心(NECP)的再分析资料,水平分辨率为 1.0°×1.0°。

1.4 潜在源区(PSCF)分析法

潜在源区贡献函数(PSCF)和浓度权重轨迹(CWT)使用 TrajStat 软件计算^[59]。目前 PSCF 已经在多个领域得到广泛应用^[60,61]。PSCF 函数是基于空间网格进行计算,定义为通过研究区内某一网格 ij 的污染气流轨迹(当要素值超过设定的污染阈值时的轨迹)端点数 m_{ij} 与经过该网格的所有气流轨迹端点数 n_{ij} 的比值,即:

$$PSCF_{ij} = m_{ij}/n_{ij} \quad (1)$$

因为 PSCF 是一种条件概率函数,当各网格内气流滞留时间较短时(n_{ij} 值较小),PSCF 值的不确定性就会较大。因此,需要引入经验权重函数 $[W(n_{ij})]$ 对其进行区间化赋权和降误差处理^[59], $W(n_{ij})$ 定义为:

$$W(n_{ij}) = \begin{cases} 1.0, & 120 < n_{ij} \\ 0.8, & 40 < n_{ij} \leq 120 \\ 0.4, & 20 < n_{ij} \leq 40 \\ 0.2, & n_{ij} \leq 20 \end{cases} \quad (2)$$

进而,可以对 PSCF 进行加权计算:

$$WPSCF_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}} \times W(n_{ij}) \quad (3)$$

1.5 浓度权重轨迹(CWT)分析法

CWT 是一种网格化识别源区的方法^[62],通过计算源区格网 ij 的平均权重浓度 c_{ij} 来分析其对目标格网的污染贡献:

$$c_{ij} = \frac{1}{\sum_{k=1}^M \tau_{ijk}} \sum_{k=1}^M C_k \tau_{ijk} \quad (4)$$

式中, c_{ij} 为网格 ij 上的平均权重浓度, k 为气团轨迹, M 为气团轨迹总数, C_k 为轨迹 k 经过网格 ij 时对应的要素值, τ_{ijk} 为轨迹 k 在网格 ij 停留的时间。

因为 CWT 是一种条件概率函数,当各网格内气流滞留时间较短时(n_{ij} 值较小),CWT 值的不确定性就会较大。因此,需要引入经验权重函数 $[W(n_{ij})]$ 对其进行区间化赋权和降误差处理^[63], $W(n_{ij})$ 定义为:

$$W(n_{ij}) = \begin{cases} 1.0, & 120 < n_{ij} \\ 0.8, & 40 < n_{ij} \leq 120 \\ 0.4, & 20 < n_{ij} \leq 40 \\ 0.2, & n_{ij} \leq 20 \end{cases} \quad (5)$$

进而,可以对 CWT 进行加权计算:

$$WCWT_{ij} = c_{ij} \times W(n_{ij}) \quad (6)$$

2 结果与讨论

2.1 观测概述

由图 1 可知冬季海坨山山顶 PM 的浓度较低,浓度波动较小。PM 浓度中以 $PM_{2.5}$ 为主,主要是因为山顶海拔较高,植被较多,因此粗粒子较少。由表 1 可知 PM_{10} 与 $PM_{2.5}$ 的相关系数高达 0.95,但是与 PM_1 的相关系数仅为 0.49, $PM_{2.5}$ 与 PM_1 的相关系数高达 0.73。这主要是因为 PM 的粒径越小,则二次气溶胶的贡献越大。此外,可发现观测期间风速较大,平均为 $9.8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$,最大值可达 $21.1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$,这说明在山顶大气扩散条件较好,这也是 PM 浓度较低的原因之一。由表 1 可知风速与 PM 均为负相关,且相关系数随着粒径的减小而增大,与 PM_{10} 的相关系数为 -0.20,与 PM_1 的相关系数为 -0.53,这也说明风速对粗粒子的积累有一定的促进作用,但是对细粒子具有较强的清除作用。RH 相对较低,平均值为 42.6%。但是由图 1 可知观测期间 RH 多次出现短时的急剧增加现象,最大值可达 90.5%。这主要是因为海拔较高,因此冬季观测点多发生云雾现象造成。观测期间温度平均为 -11.0°C ,最低值为 -32.5°C ,温度较低。由表 1 可知 RH 与 PM 的相关

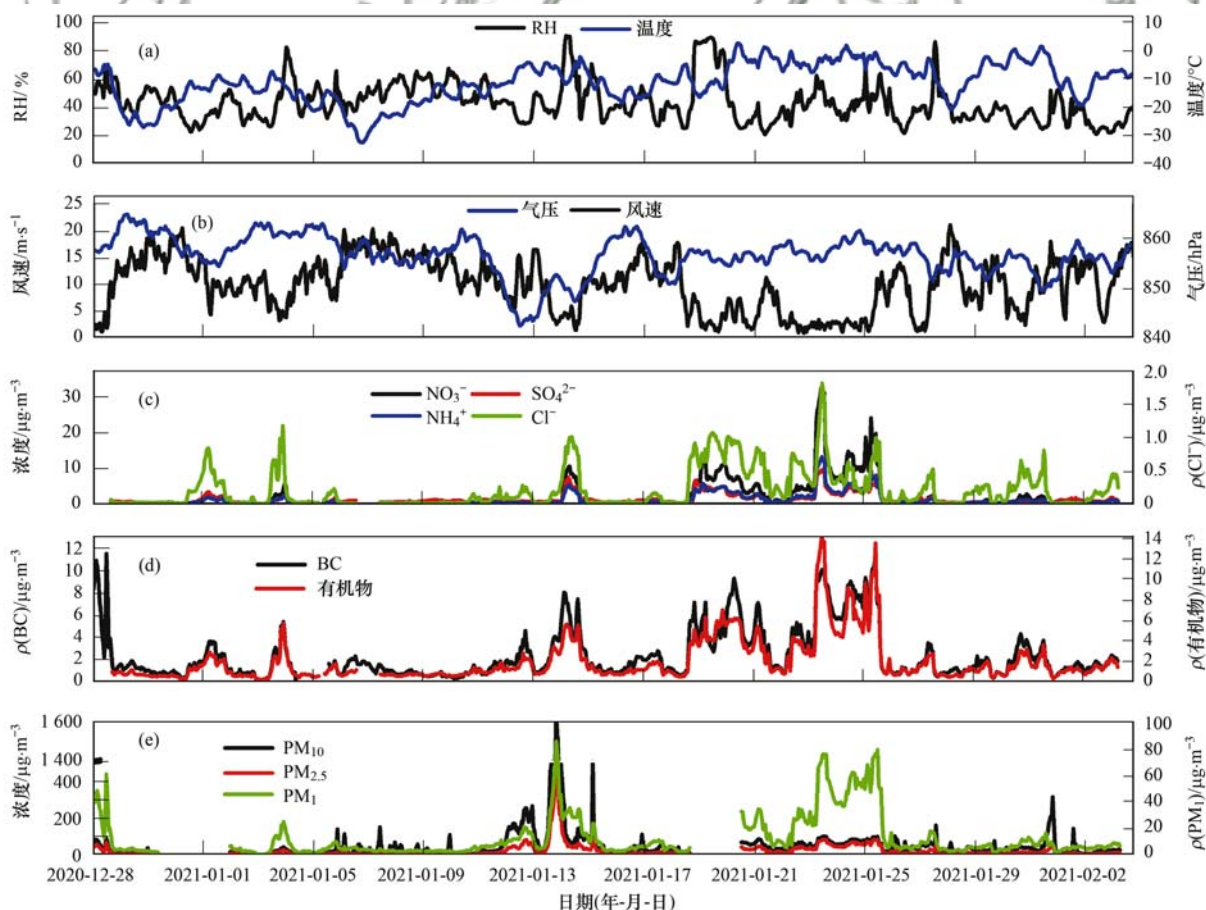


图 1 气象要素、PM 和化学组分时间序列

Fig. 1 Time series of meteorological elements, PM, and chemical components of aerosol

性较弱,而温度与 PM 均为正相关. 冬季温度较低, RH 较低,华北平原大气为干冷状态,因此 RH 对 PM 的影响较小. 而温度增加,一方面可以促进光化学反应的发生;另一方面温度增加意味着近地面的加热作用较强,湍流旺盛,边界层高度较高,因此有利于近地面的污染物往山顶的输送. 因此温度与 PM 呈现正相关关系,并且与 PM₁ 的相关性最强,可达 0.49. 能见度与 PM 均为负相关关系,这主要是由于气溶胶的消光作用影响.

由图 1 可知气溶胶不同化学组分的变化趋势类似,在山顶局地源的影响较小,污染物的来源类似,因此时间变化类似. 由表 1 也可知不同气溶胶化学组分之间均为比较高的正相关,这也说明不同化学组分的来源类似. 气溶胶化学组分与风速和能见度

呈负相关关系,与 RH 和温度呈正相关关系. 风速越大,有利于污染物的扩散,因此与风速呈负相关. RH 增加有利于非均相化学过程的发生,因此与 RH 为较好的正相关. 温度的增加有利于化学过程的转化,也有利于地面污染物的输送,因此与温度呈正相关. 而 PM 的消光作用,本质是由于化学组分的作用,例如 BC 为强光吸收性气溶胶组分,而 NO₃⁻ 和 SO₄²⁻ 则为光散射性气溶胶组分,因此这些化学组分的增加,会造成能见度降低.

由图 1 可知在观测期间出现了两次比较明显的污染过程,分别为 2021 年 1 月 13 ~ 15 日的沙尘过程和 2021 年 1 月 23 ~ 25 日的霾污染过程. 因此本研究将观测期间分为冬季干净天、沙尘天和霾污染这 3 个过程进行讨论.

表 1 观测期间 PM、化学组分和气象要素的相关系数汇总

	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM ₁	BC	有机物	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	Cl ⁻	风速	RH	气压	温度	能见度
PM ₁₀	1.00													
PM _{2.5}	0.95 **	1.00												
PM ₁	0.49 **	0.73 **	1.00											
BC	0.19 **	0.42 **	0.77 **	1.00										
有机物	0.16 **	0.39 **	0.78 **	0.94 **	1.00									
NO ₃ ⁻	0.04	0.27 **	0.72 **	0.85 **	0.95 **	1.00								
SO ₄ ²⁻	0.05	0.25 **	0.62 **	0.81 **	0.89 **	0.91 **	1.00							
NH ₄ ⁺	0.04	0.27 **	0.71 **	0.86 **	0.95 **	0.99 **	0.95 **	1.00						
Cl ⁻	0.04	0.20 **	0.47 **	0.80 **	0.84 **	0.77 **	0.79 **	0.81 **	1.00					
风速	-0.20 **	-0.36 **	-0.53 **	-0.61 **	-0.62 **	-0.54 **	-0.54 **	-0.57 **	-0.62 **	1.00				
RH	-0.05	-0.03	0.02	0.14 **	0.19 **	0.28 **	0.43 **	0.31 **	0.19 **	-0.02	1.00			
气压	-0.31 **	-0.27 **	-0.11 **	-0.12 **	-0.09 *	0.00	-0.10 **	-0.04	-0.16 **	0.03	0.03	1.00		
温度	0.21 **	0.34 **	0.49 **	0.50 **	0.51 **	0.38 **	0.34 **	0.41 **	0.48 **	-0.66 **	-0.34 **	-0.37 **	1.00	
能见度	-0.52 **	-0.63 **	-0.68 **	-0.63 **	-0.62 **	-0.57 **	-0.61 **	-0.59 **	-0.43 **	0.37 **	-0.39 **	0.37 **	-0.30 **	1.00

1) ** 表示在 0.01 水平(双侧)上显著相关,* 表示在 0.05 水平(双侧)上显著相关

2.2 不同污染过程气溶胶化学组分平均浓度

由图 2(a) 可知, $\rho(\text{PM}_{10})$ 和 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 大小均为:沙尘天>霾污染>干净天,沙尘天平均 $\rho(\text{PM}_{10})$ 和 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 分别为 $316.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $108 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别是霾污染的 4.0 倍和 1.7 倍,分别是干净天的 9.1 倍和 8.1 倍. 但是 $\rho(\text{PM}_1)$ 大小为:霾污染>沙尘天>干净天,霾污染过程中平均 $\rho(\text{PM}_1)$ 为 $55.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别是沙尘天和干净天的 1.8 倍和 7.0 倍. 沙尘过程主要影响粗粒子,对细粒子的影响较小;而霾污染正好相反,主要影响细粒子.

由图 2(b) 可知, 不同过程中气溶胶化学组分浓度大小均为:霾污染>沙尘天>干净天,这主要是因为所观测的气溶胶化学组分为 $<1 \mu\text{m}$ 的粒径段,因此在霾污染过程中最大. 在霾污染过程中,平均 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 最大,为 $14.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 PM₁ 的 25.2%; 其次是 $\rho(\text{BC})$, 平均值为 $7.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 PM₁ 的

14.2%; $\rho(\text{有机物})$ 为 $7.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 PM₁ 的 14.0%. 在沙尘污染过程中,平均 $\rho(\text{BC})$ 最大,为 $3.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 PM₁ 的 12.8%; 其次为 $\rho(\text{有机物})$, 平均值为 $3.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 PM₁ 的 10.1%; $\rho(\text{NO}_3^-)$ 为 $2.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 PM₁ 的 9.4%. 在干净天 PM₁ 中化学组分的浓度大小分布与沙尘天一致,平均 $\rho(\text{BC})$ 最大,为 $1.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 PM₁ 的 24.1%; 其次为 $\rho(\text{有机物})$, 平均值为 $1.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 PM₁ 的 19.2%; $\rho(\text{NO}_3^-)$ 为 $1.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 PM₁ 的 14.9%. 观测到的化学组分在干净天和霾污染过程中占 PM₁ 的比例分别为 85.0% 和 73.4%,而在沙尘过程中仅占 PM₁ 的 47.4%. 在沙尘过程中 BC 和离子的化学组分分布更加均匀,而矿尘等组分占比更高.

BC 作为一次气溶胶,主要来自含碳物质的不完全燃烧过程^[12-14]. 因此,大气中的 BC 气溶胶的粒径分布特征可以近似地反映一次污染源和大气老化

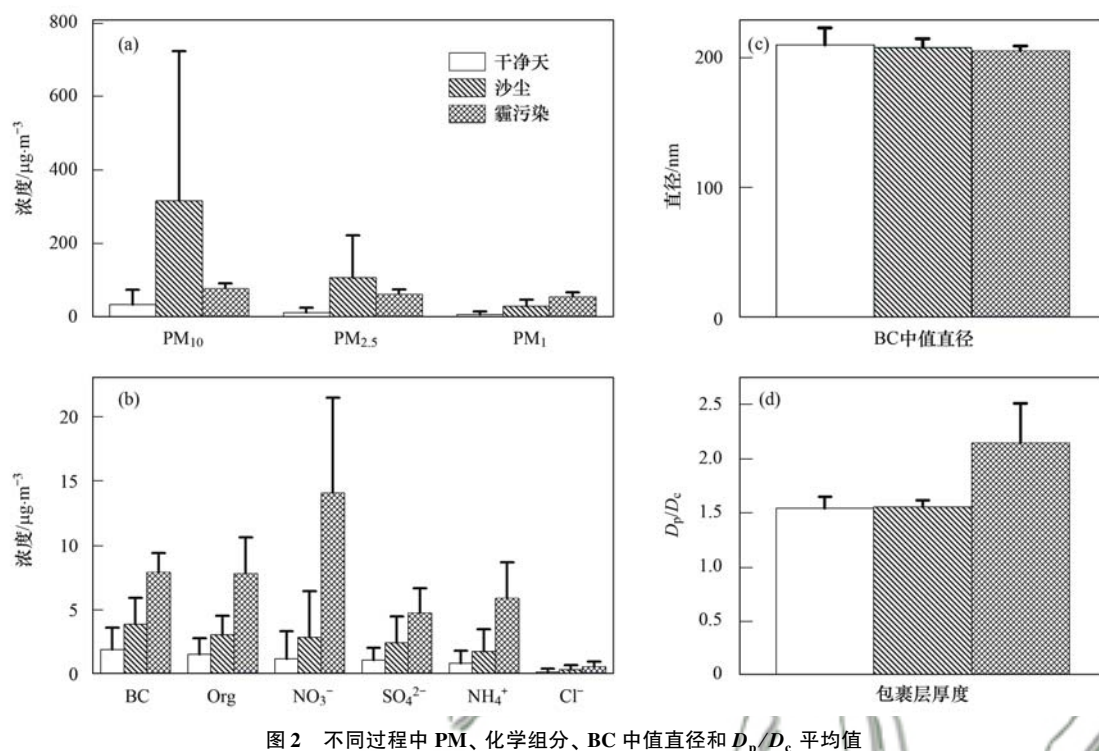


图2 不同过程中PM、化学组分、BC中值直径和 D_p/D_c 平均值

Fig. 2 Average values of PM, chemical components of aerosol, median diameter, and D_p/D_c of BC during different processes

过程的贡献变化. 由图2(c)可知BC气溶胶的中值直径在干净天最大为209.7 nm, 其次为沙尘天为207.5 nm, 霾污染过程中最小为204.7 nm. BC在不同过程中的中值粒径分布变化大, 这说明在不同过程中BC的来源变化较小. 但是由图2(d)可知 D_p/D_c 的分布正好相反, 在霾污染过程中最大为2.15, 分别是沙尘天和干净天的1.38和1.39倍. D_p/D_c 反映了BC气溶胶的老化程度, 可以发现在霾污染过程中BC气溶胶更加老化, 因此其有机物和二次无机气溶胶组分的浓度较高, 并且霾污染过程中BC气溶胶的老化可能主要是硝酸盐和有机物的影响. 而在沙尘过程中 D_p/D_c 与干净天相比几乎没有变化, 这说明在沙尘过程中老化过程较弱. 沙尘过程中粗粒子浓度急剧增加, 会增加非均相化学过程的反应界面, 与细粒子的老化过程产生竞争, 因此总体表现为BC几乎没有发生老化.

2.3 不同污染过程气溶胶化学组分日变化

由图3(a)可知沙尘天 PM_{10} 在夜间浓度较大, 在白天浓度较小, 由观测记录可知沙尘过程主要是集中在1月13日夜间. 由图3(a)可知在沙尘影响最严重的21:00, $\rho(PM_{10})$ 是干净天的22.5倍, 而在11:00仅是干净天的1.8倍. 由图3(a)可知在干净天 $\rho(PM_{10})$ 的日变化特征为白天低夜间高, 在10:00最低为 $25.7 \mu g \cdot m^{-3}$, 在13:00时也出现一个小的谷值为 $27.6 \mu g \cdot m^{-3}$. 由图4可知在干净天温度为明显的单峰型分布, 白天较高, 夜晚较低; 对

应的RH在白天较低, 夜间较高, 而风速则呈现三峰型分布, 在04:00、13:00和23:00分别出现峰值. 因此虽然风速与 PM_{10} 呈正相关, 但是在日变化过程中气象条件对 PM_{10} 的影响比较复杂, 白天较大的风速和较高的温度, 对应较高的边界层高度, 湍流旺盛, 因此有利于 PM_{10} 的扩散. 而在夜间稳定边界层控制下, 较大的风速、较低的温度, 使得观测点周边的粗粒子容易进入大气, 进而使得 $\rho(PM_{10})$ 增加. 由图3(a)可知在霾污染过程中 $\rho(PM_{10})$ 的日变化为单峰型分布, 峰值位于14:00, 为 $94.3 \mu g \cdot m^{-3}$. 霾污染过程中污染物主要来自地面的输送, 因此在白天 $\rho(PM_{10})$ 较高. 由图4可知霾污染过程中白天风速较高, 此外温度的日变化

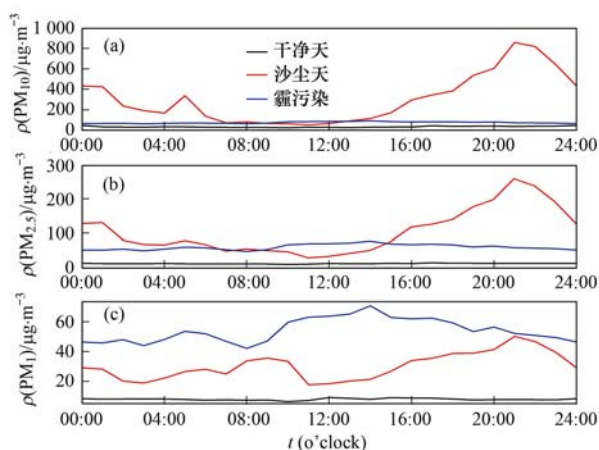


图3 不同过程中PM的日变化

Fig. 3 Diurnal variations in PM during different processes

较小,全天温度均较高,这意味着在霾污染过程中边界层高度较高.而温度的日变化减弱,又影响到 RH 的日变化,霾污染过程中白天 RH 也较高,高温高湿有利于非均相化学过程的发生,进而又加剧了霾污染.

由图 3 可知不同过程中 $PM_{2.5}$ 的日变化与 PM_{10} 类似,但是不同过程下 PM_{10} 的日变化出现了显著差

异.霾污染过程中 PM_{10} 的浓度最高,尤其是在 10:00 ~ 14:00 分别是沙尘天和干净天的 3.2 ~ 3.5 倍和 6.9 ~ 9.2 倍.沙尘天 PM_{10} 的日变化为双峰型分布,峰值出现在 09:00 和 21:00.干净天 PM_{10} 的日变化与霾污染天类似,也呈现白天高夜间低的分布.这说明不同污染过程对 PM_{10} 的日变化的影响较小,主要是影响其浓度大小.

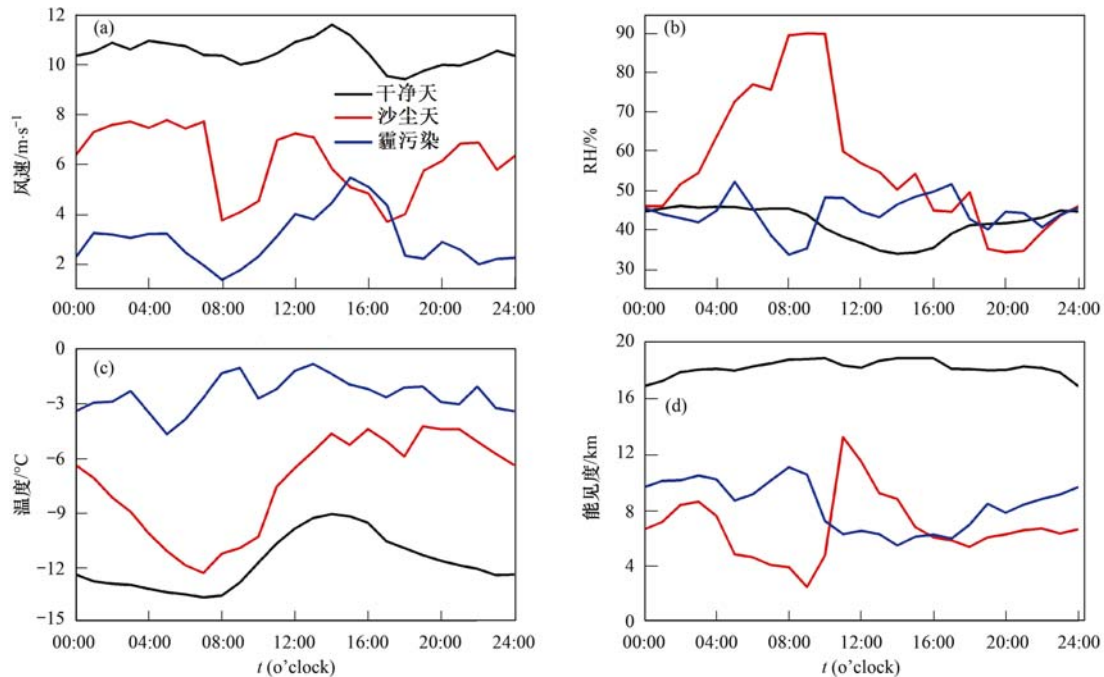


图 4 不同过程下气象要素日变化

Fig. 4 Diurnal variations in meteorological elements during different processes

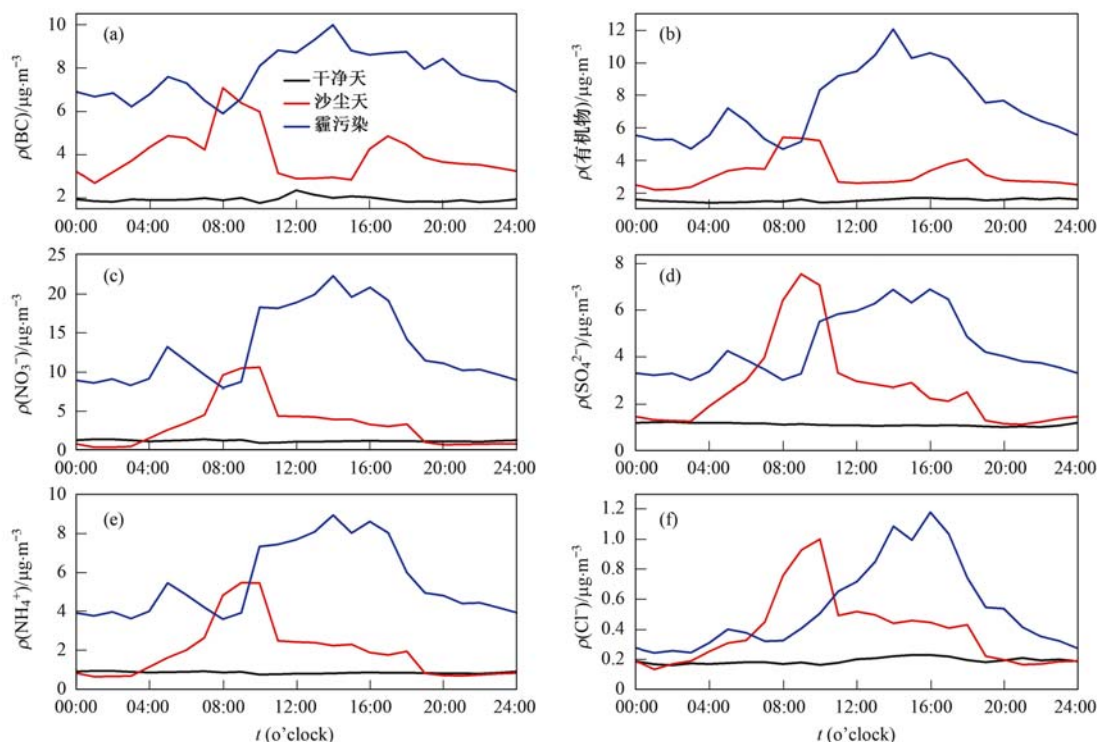
由图 5(a) 可知 BC 日变化在干净天为单峰型分布,峰值位于 12:00;在沙尘天为双峰型分布,峰值位于 08:00 和 17:00;在霾污染过程中也为双峰型分布,峰值位于 05:00 和 14:00.由此可知 BC 的日变化与 PM_{10} 的日变化并不一致,BC 主要来自污染源的直接排放,因此主要受到局地污染的影响.在干净天,白天温度高,RH 低,地面 BC 输送至山顶,因此 BC 在 14:00 达到峰值.在沙尘天,BC 的高值恰好出现在风速低值区[图 4(a)],在沙尘期间气团主要来自外来输送,风速越大,代表外来输送越强,而沙尘源区的 BC 源较少,因此风速较大时一方面有利于本地 BC 的扩散,另一方面外来气团也对本地 BC 起到稀释的作用,因此反而是在风速较小时 $\rho(\text{BC})$ 较大.霾污染过程中 BC 的日变化与 PM_{10} 的日变化分布基本一致,原因已在上文分析,在此不再赘述.

由图 6(a) 可知在干净天和霾污染过程中 BC 的中值直径在夜晚较高,在白天较低.由图 4 可知在夜间 RH 较高,风速较低,因此有利于 BC 的老化,BC 的中值直径较大.而在白天温度较高,边界层高

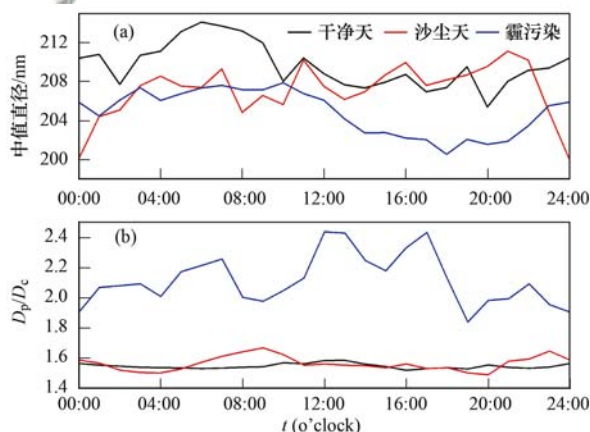
度较高,因此有利于地面新鲜排放的 BC 往山顶的输送,因此在白天 BC 的中值直径较小.在沙尘过程中 BC 的中值直径日变化呈现波动变化特征,没有明显的峰谷分布,这说明在沙尘天 BC 的来源比较稳定.

由图 5 可知在不同过程下有机物、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 和 Cl^- 的日变化与 BC 的日变化特征类似,只是浓度大小不同.值得注意的是在沙尘过程中 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 和 Cl^- 在 08:00 出现的浓度峰值较高,由图 4 可知在这一时间段 RH 较高,而这一时间段风速较低, PM_{10} 较低,主要是受到地形云的影响,因此能见度较低,这些吸湿性的化学组分的浓度较高.

由图 6(b) 可知在霾污染过程中 D_p/D_c 的日变化呈现波动状态,全天出现多个峰值,整体来看在白天较高,夜晚较低,与 BC 的日变化相反,与有机物、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 等二次化学组分的日变化分布类似.当 $\rho(\text{BC})$ 较高时,新鲜 BC 粒子较多,因此老化程度较低,反之当 BC 粒子较少,二次气溶胶组分较多时,BC 粒子表面的包裹层较厚,因此 D_p/D_c 的

图5 不同过程下 PM_1 中气溶胶化学组分日变化Fig. 5 Diurnal variations in chemical components of PM_1 during different processes

值较高. 在沙尘天 D_p/D_c 的日变化与化学组分的日变化类似, 但是其峰值滞后于 BC 的峰值, 与二次气溶胶组分的基本一致. 在干净天 D_p/D_c 的日变化为单峰型分布, 峰值位于 13:00. 总体来说, D_p/D_c 的日变化与 BC 的变化相反, 与有机物、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 等二次化学组分的日变化类似.

图6 不同过程下 BC 中值直径和 D_p/D_c 的日变化Fig. 6 Diurnal variations in median diameter of BC and D_p/D_c during different processes

2.4 二次气溶胶与 BC 老化相关性

由上文分析可知, BC 的包裹层与二次气溶胶组分有密切的相关性. 由图 7 可知在不同过程中 D_p/D_c 与二次气溶胶组分的相关性存在较大差异. 在干净天 D_p/D_c 与 NO_3^- 和 NH_4^+ 的相关性较高, 均为

0.48, 这说明在干净天 BC 的包裹层可能主要是 NH_4NO_3 . 冬季温度较低, 也有利于气溶胶态 NH_4NO_3 的存在. 在干净天 D_p/D_c 与有机物和 SO_4^{2-} 的相关性分别为 0.43 和 0.41, 略低于 NO_3^- 和 NH_4^+ , 这与杨一帆等^[19]和 Riemer 等^[64]的研究结果一致. 大气中的 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 主要是由 NO_x 和 SO_2 转换生成, 而 NO_x 和 SO_2 则主要来自汽车尾气和煤的燃烧^[65]. 观测点海拔较高, 位于北京的西北方, 而在冬天华北平原主要盛行西北风, 因此冬季取暖季燃煤的影响有限. 而观测点位于河北与北京交界处, 货运卡车较多, 因此汽车尾气的影响较大.

在沙尘天 D_p/D_c 与 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 的相关性较高, 为 0.54, 这说明在沙尘天 BC 的包裹层可能主要是 $(NH_4)_2SO_4$. 有研究表明, 在沙尘远距离输送过程中, 在城市污染大气中观测到了硫酸盐快速增加的现象^[66,67]. 在沙尘过程中 BC 疏松多孔的表面结构提供了较多的反应界面, BC 粒子捕获了矿尘成分进而促进了硫酸盐的生成, 与大气中铵盐的结合. 在沙尘天 D_p/D_c 与 NO_3^- 的相关性略低, 为 0.53. 这表明即使在沙尘这种以外来输送为主的污染过程中, 本地的交通源的影响仍然不容忽视. 沙尘天 D_p/D_c 与有机物的相关性最低, 仅为 0.32. 沙尘过程主要气溶胶粒子主要是土壤矿尘元素, $\rho(\text{有机物})$ 较低, 因此 BC 的包裹层中 $\rho(\text{有机物})$ 较少.

在霾污染天 D_p/D_c 与有机物的相关性最高, 为

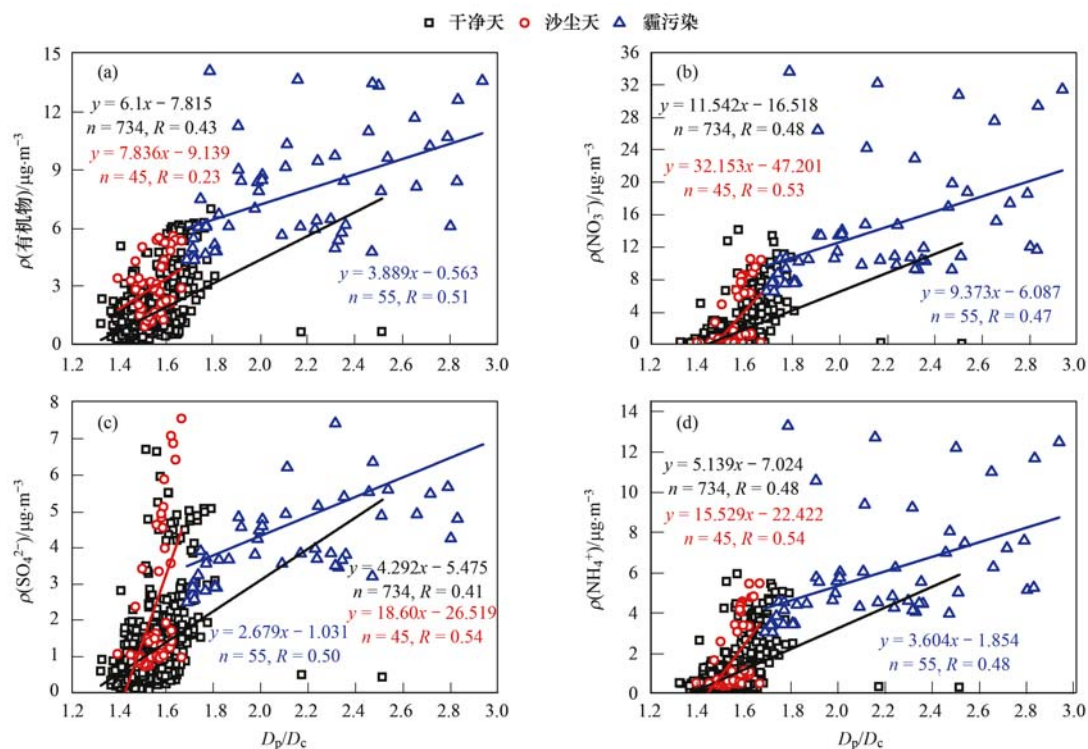


图7 不同过程下 D_p/D_c 与二次气溶胶的相关性

Fig. 7 Correlation coefficients between D_p/D_c and secondary chemical components of aerosol during different processes

0.51. 霾污染过程主要是以局地污染为主,天气形势比较稳定,在华北平原地区冬季霾污染过程往往是一些区域污染过程,在污染过程中大城市的污染物输送对周边地区的影响较大^[44,52]. 在霾污染过程中,周边城市的污染物正好随着地形抬升,进而影响到山顶. 霾污染天 D_p/D_c 与 SO_4^{2-} 的相关性略低,为0.50. 这也说明了周边城市污染物传输的影响,主要是受到周边城市集中取暖季燃煤的影响. 霾污染天 D_p/D_c 与 NH_4^+ 和 NO_3^- 的相关性分别0.48和0.47. 这可能与在霾污染过程中周边城市执行的机动车限

行政策有关.

2.5 潜在来源分析

由图8可知不同过程中 PM_{10} 的 PSCF 分布不同. 在干净天 PSCF 高值区主要分布在观测点的西北方,随着距观测点的距离的加大 PSCF 值迅速降低. 在张家口-乌兰察布-大同一带 PSCF 的值较高,超过0.9. 而在外围的朔州、呼和浩特、锡林郭勒盟以及到蒙古国的乌兰巴托一带的 PSCF 值集中在0.7~0.9. 而在外围的鄂尔多斯等地的 PSCF 值则只有0.4~0.5. 而在沙尘天 PM_{10} 的 PSCF 高值区并

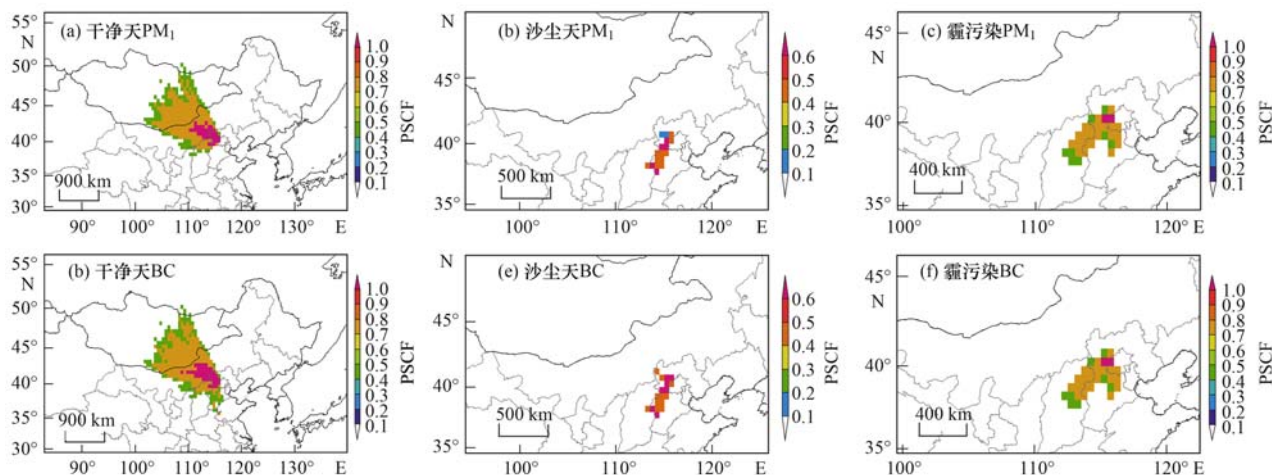


图8 不同过程下 PM_{10} 和 BC 的 PSCF 分布

Fig. 8 Source region of PM_{10} and BC identified by PSCF under different processes

没有来自西北方的沙尘源地,而是来自于西南方的保定和石家庄一带,PSCF 值大于 0.4. 此外在沙尘期间张家口地区也存在 PM_{10} 的 PSCF 值,但是值比较低仅为 0.1~0.2. 这也与上文分析一致,沙尘过程对于超细粒子的影响较小. 在霾污染过程中 PM_{10} 的 PSCF 高值区分为西南和东南两个路径. 在霾污染天观测点周边的 PSCF 贡献最大,延庆、怀来和昌平一带的 PSCF 贡献超过 0.9. 这也说明在霾污染过程中,山顶的污染物主要是来自周边地区的输送. 在霾污染过程中 PSCF 的西南路径主要集中在大同、忻州、保定和太原一带,PSCF 的值为 0.7~0.9; 东南路径则主要集中在保定-沧州一带,PSCF 的值也为 0.7~0.9. 由图 8 可知不同过程下 BC 的 PSCF 分布与 PM_{10} 的分布特征类似,其余污染物的 PSCF 分布也如 BC 的 PSCF 分布(图略).

由于潜在源区贡献因子分析法只能反映潜在源区贡献率的大小,无法模拟数值的大小. 为此,本研究引入浓度权重轨迹分析法(CWT)计算潜在源区的权重浓度(浓度数值),以反映潜在污染源区的污染程度.

由图 9(a)可知干净天 PM_{10} 的 CWT 分布与 PSCF 不同,高值区分布在张家口-大同一带,CWT > $18 \mu g \cdot m^{-3}$. 在大同-乌兰察布三省交界处一带 CWT 的值也较高,权重浓度为 $12 \sim 18 \mu g \cdot m^{-3}$. PM_{10} 的

CWT 分布在呼和浩特-包头-巴彦淖尔以及到了蒙古国境内一部分其权重浓度进一步降低,为 $4 \sim 8 \mu g \cdot m^{-3}$. 在蒙古国境内的卡腾布莱格-乌拉巴托一带 PM_{10} 的 CWT 值较低,权重浓度为 $2 \sim 4 \mu g \cdot m^{-3}$. 可知在干净天 PM_{10} 的 CWT 是集中在观测点周边人口较多的地区,在西北远距离输送的贡献较小.

由图 9(b)可知 BC 的 CWT 分布与 PM_{10} 的 CWT 分布也存在差异,高值区主要集中在张家口-大同一带,权重浓度 > $3.5 \mu g \cdot m^{-3}$. 值得注意的是,BC 的 CWT 在观测点的南部保定-石家庄-邢台-衡水一带的权重浓度也较高,为 $2 \sim 3.5 \mu g \cdot m^{-3}$. 在西部的乌兰察布-呼和浩特一带的权重浓度也为 $2 \sim 3.5 \mu g \cdot m^{-3}$. 再往西北方向 BC 的 CWT 值迅速降低,权重浓度多为 < $1.5 \mu g \cdot m^{-3}$,在蒙古国境内权重浓度多为 < $1 \mu g \cdot m^{-3}$. BC 主要来自不完全燃烧过程,因此与经济、人口等密切相关,在华北平原地区人为源多,因此贡献大,而在西北人为源少的地区贡献较少.

由图 9(c)可知有机物的 CWT 分布与 BC 的分布类似,在河北境内的权重浓度较高,尤其是在邢台-邯郸一带,权重浓度 > $3.6 \mu g \cdot m^{-3}$. 图 9(d)可知 NH_4^+ 的 CWT 高值区主要集中在观测点南部的北京以及河北的保定-石家庄-邢台-邯郸一带,权重浓度 > $1.8 \mu g \cdot m^{-3}$. 此外值得注意的是 NH_4^+ 的 CWT 在

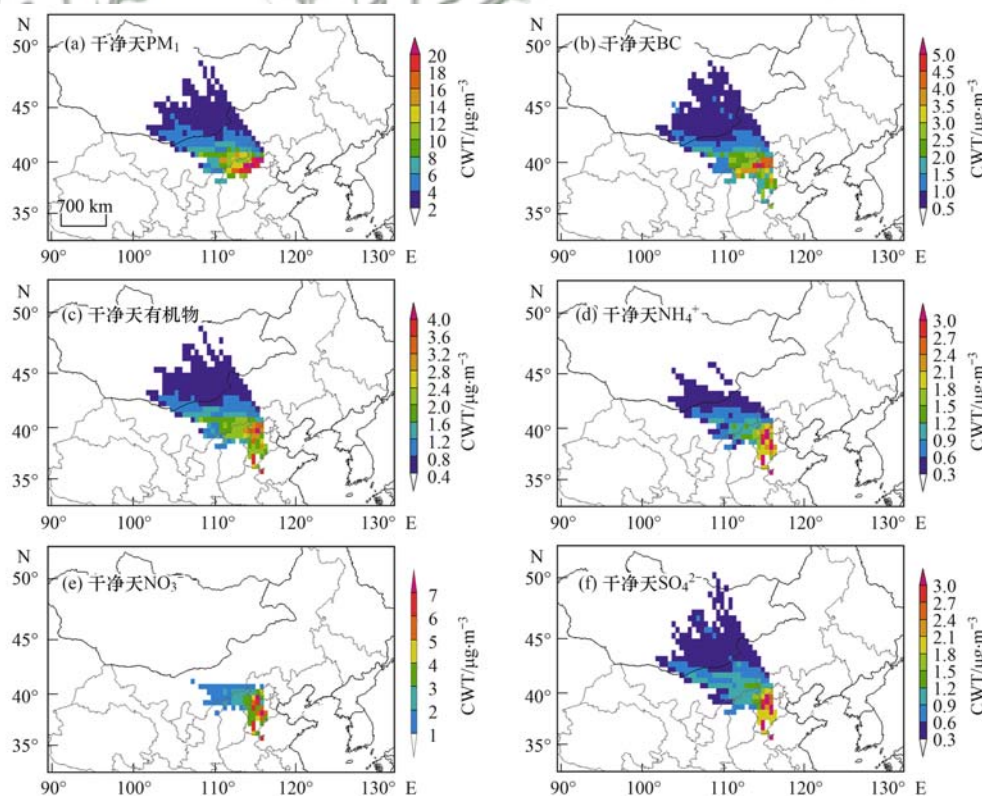


图 9 干净天 PM_{10} 和气溶胶化学组分的 CWT 分布

Fig. 9 Source region of PM_{10} and chemical components of aerosol identified by CWT on clean days

蒙古国境内的分布范围较小,主要集中在与我国相邻的地区,这可能与 NH_4^+ 的停留时间相关. 由图 9 (e) 可知 NO_3^- 的 CWT 分布范围较小,主要集中在观测点西部的张家口-乌兰察布-呼和浩特-大同一带,权重浓度为 $1 \sim 4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 观测点南部的北京以及河北的保定-石家庄-邢台-邯郸一带,权重浓度较高,超过 $3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. NO_3^- 主要来自 NO_x 的转化,因此主要来自交通源较多的城市地区. 由图 9 (f) 可知 SO_4^{2-} 的 CWT 分布与 NH_4^+ 的类似,但是分布范围更

大,此外蒙古国境内的分布范围较大.

由图 10 (a) 可知沙尘天 PM_{10} 的 CWT 高值区主要集中在观测点的西南部的北京-保定-石家庄-阳泉一带,主要集中在河北与山西两省交界处,权重浓度超过 $12 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 值得注意的是在观测点的西北部也有 PM_{10} 的零星的 CWT 贡献,例如在中国的张家口及大同、蒙古国的苏格塞斯和巴彦淖尔地区与蒙古国交界处等,权重浓度较低为 $3 \sim 6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,这些地区的 CWT 贡献即为沙尘的贡献.

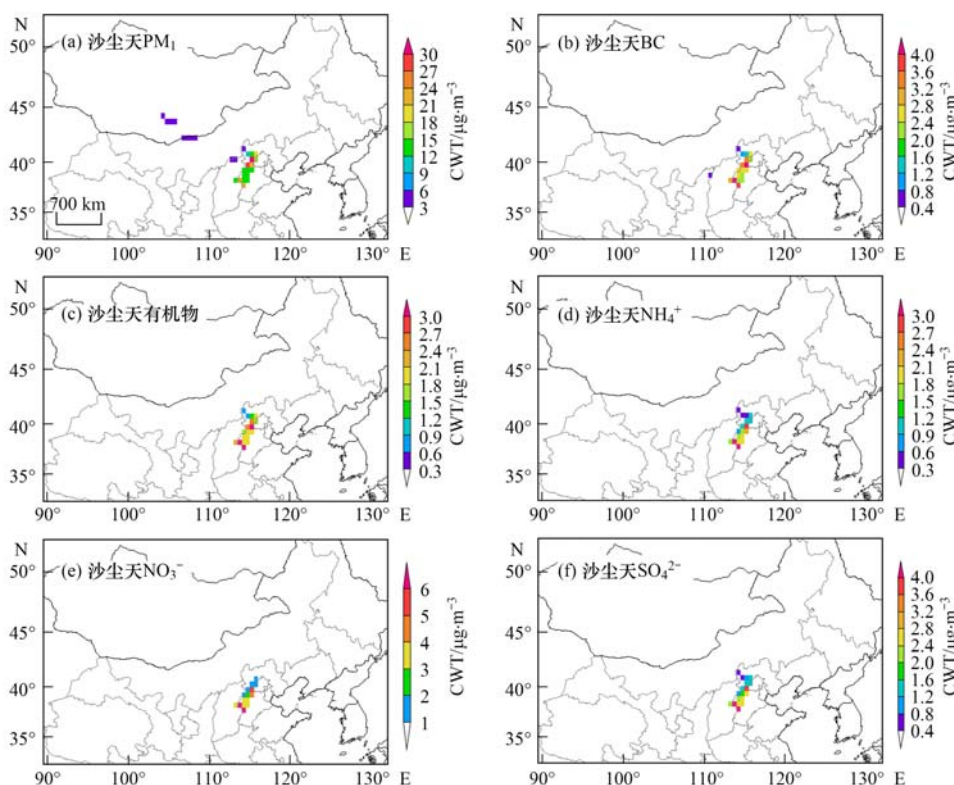


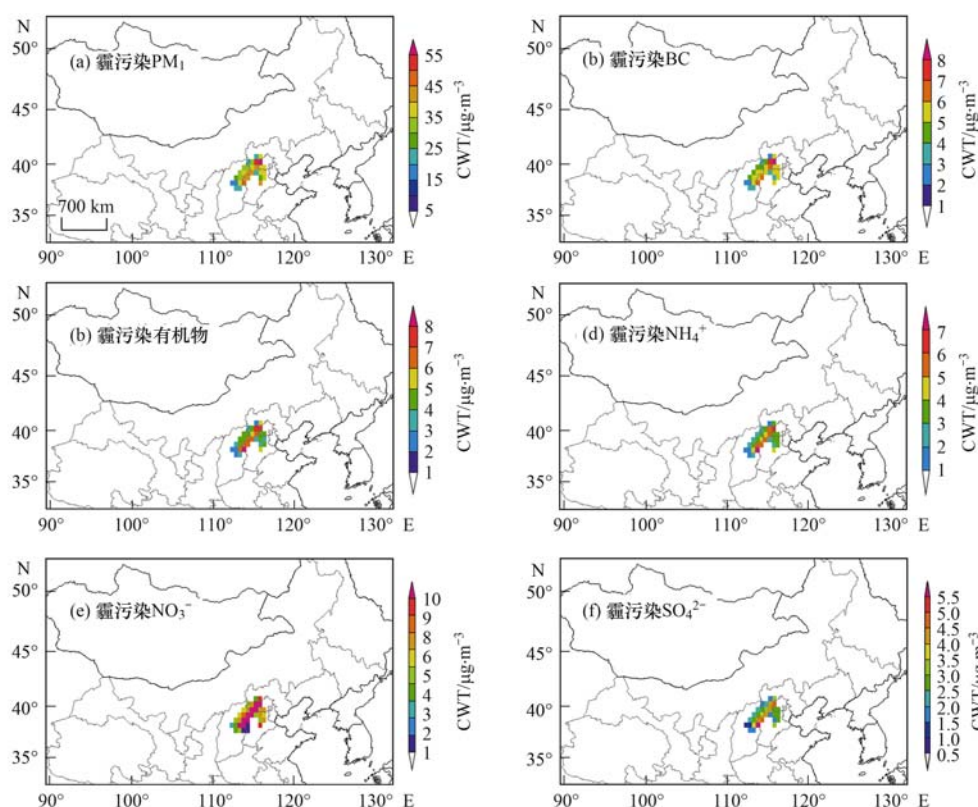
图 10 沙尘天 PM_{10} 和气溶胶化学组分的 CWT 分布

Fig. 10 Source region of PM_{10} and chemical components of aerosol identified by CWT on dust days

由图 10 可知沙尘天 PM_{10} 中的化学组分的 CWT 分布基本类似,高值区主要集中在观测点的西南部的北京-保定-石家庄-阳泉一带,主要集中在河北与山西两省交界处,在沙尘传输路径的贡献基本可以忽略,仅仅是在张家口一带有所贡献. 这也说明了沙尘过程对于下游地区超细粒子的影响有限,细粒子中的化学组分主要来自观测点周边地区的输送.

由图 11 (a) 可知霾污染过程 PM_{10} 的 CWT 分布范围较小,与 PSCF 的分布类似. 在霾污染过程观测点周边对 PM_{10} 的 CWT 贡献最大,延庆、怀来和昌平一带的权重浓度超过 $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 在霾污染过程中 PM_{10} 的 CWT 高值区主要集中在西南方在大同、忻州、保定和太原一带,权重浓度为 $20 \sim 50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$;

东南路径则主要集中在保定-沧州一带,权重浓度为 $25 \sim 45 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 由图 11 (b) 可知在霾污染过程中 BC 的 CWT 分布与 PM_{10} 的基本类似. 由图 11 可知霾污染过程中有机物、 NH_4^+ 和 SO_4^{2-} 的 CWT 高值区分布与其他污染物不同,虽然这 3 种化学组分的 CWT 分布范围与 BC 类似,但是高值区分布存在显著差异. 这 3 种化学组分的 CWT 高值区主要集中在观测点西南方大同、忻州、保定和太原一带的狭长的分布带,在其余地区的 CWT 较低. 由图 11 (e) 可知霾污染过程中 NO_3^- 的 CWT 分布范围与其他组分的范围一致,但是权重浓度均较高,在西南方大同、忻州、保定和太原一带,权重浓度超过 $9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 东南路径则主要集中在保定-沧州一带,权重浓度为 $6 \sim 9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.

图 11 霾污染 PM_{10} 和气溶胶化学组分的 CWT 分布Fig. 11 Source region of PM_{10} and chemical components of aerosol identified by CWT on haze days

3 结论

(1) 海坨山冬季沙尘过程主要影响 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$, 对 PM_{10} 的影响较小; 而霾污染正好相反, 主要影响 PM_{10} . 化学组分在干净天和霾污染中占 PM_{10} 的比例分别为 85.0% 和 73.4%, 而在沙尘天仅占 PM_{10} 的 47.4%. 风速与 PM 均为负相关, 且相关系数随着粒径的减小而增大. RH 与 PM 的相关性较弱, 而温度与 PM 均为正相关. 气溶胶化学组分与风速和能见度呈负相关关系, 与 RH 和温度呈正相关关系.

(2) 霾污染中 $\rho(NO_3^-)$ 最大, 占 PM_{10} 的 25.2%; 在干净天和沙尘天 $\rho(BC)$ 最大, 占 PM_{10} 的 24.1% 和 12.8%. BC 气溶胶的中值直径在干净天、沙尘天和霾污染中分别为 209.7、207.5 和 204.7 nm. D_p/D_c 在霾污染中最大为 2.15, 分别是沙尘天和干净天的 1.38 和 1.39 倍.

(3) 不同过程下 PM 和气溶胶化学组分的日变化特征不同. PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 的日变化在干净天和沙尘天为夜间高白天低, 在霾污染为单峰型分布, 峰值位于 14:00. 霾污染过程中 PM_{10} 的浓度最高, 尤其是在 10:00~14:00 分别时沙尘天和干净天的 3.2~3.5 倍和 6.9~9.2 倍. 沙尘天 PM_{10} 的日变化为双峰型分布, 峰值出现在 09:00 和 21:00. 干净天 PM_{10} 的日

变化与霾污染天类似, 也呈现白天高夜间低的分布. 化学组分日变化在干净天为单峰型分布, 在沙尘天和霾污染过程为双峰型分布. 不同过程下 BC 的包裹层成分不同. BC 的包裹层在干净天主要是 NH_4NO_3 , 在沙尘天主要是 $(NH_4)_2SO_4$, 在霾污染天主要是有机物.

(4) 不同过程中 PM_{10} 及其化学组分的潜在来源分布不同. 在干净天 PSCF 高值区主要分布在观测点的西北方, 随着距观测点的距离的加大 PSCF 值迅速降低, CWT 高值区主要集中在张家口-大同一带, 化学组分在南部保定-石家庄-邢台-衡水一带的权重浓度也较高. 在沙尘天 PM_{10} 的 PSCF 高值区位于西南方的保定和石家庄一带, CWT 高值区主要位于西南部的河北与山西两省交界处. 在霾污染天观测点周边的延庆、怀来和昌平一带的 PSCF 贡献最大超过 0.9, 除周边地区外, CWT 高值区还集中在西南方的大同、忻州、保定和太原一带.

参考文献:

- [1] Paasonen P, Asmi A, Petäjä T, et al. Warming-induced increase in aerosol number concentration likely to moderate climate change [J]. *Nature Geoscience*, 2013, 6(6): 438-442.
- [2] Bellouin N, Boucher O, Haywood J, et al. Global estimate of aerosol direct radiative forcing from satellite measurements [J]. *Nature*, 2005, 438(7071): 1138-1141.
- [3] Schmale J, Zieger P, Ekman A M L. Aerosols in current and future Arctic climate [J]. *Nature Climate Change*, 2021, 11

- (2): 95-105.
- [4] Lohmann U, Feichter J. Global indirect aerosol effects: a review [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2005, **5**(3): 715-737.
- [5] Shen L J, Wang H L, Cheng M T, *et al.* Chemical composition, water content and size distribution of aerosols during different development stages of regional haze episodes over the North China Plain [J]. *Atmospheric Environment*, 2021, **245**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.118020.
- [6] 廉涵阳, 杨欣, 张普, 等. 北京 2019 年冬季一次典型霾污染特征与成因分析[J]. *环境科学*, 2021, **42**(5): 2121-2132.
Lian H Y, Yang X, Zhang P, *et al.* Analysis of characteristics and causes of a typical haze pollution in Beijing in the winter of 2019 [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(5): 2121-2132.
- [7] 王振彬, 刘安康, 卢文, 等. 霾不同发展阶段下污染气体和水溶性离子变化特征分析[J]. *环境科学*, 2019, **40**(12): 5213-5223.
Wang Z B, Liu A K, Lu W, *et al.* Change in characteristics of pollution gas and water-soluble ions at different development stages of haze [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(12): 5213-5223.
- [8] Huang R J, Zhang Y L, Bozzetti C, *et al.* High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China [J]. *Nature*, 2014, **514**(7521): 218-222.
- [9] Chowdhury P H, He Q, Male T L, *et al.* Exposure of lung epithelial cells to photochemically aged secondary organic aerosol shows increased toxic effects [J]. *Environmental Science & Technology Letters*, 2018, **5**(7): 424-430.
- [10] Tellier R. Aerosol transmission of influenza A virus: a review of new studies [J]. *Journal of the Royal Society Interface*, 2009, **6**(S6): S783-S790.
- [11] Cowling B J, Ip D K M, Fang V J, *et al.* Aerosol transmission is an important mode of influenza A virus spread [J]. *Nature Communications*, 2013, **4**(1), doi:10.1038/ncomms2922.
- [12] Liu D, Allan J D, Young D E, *et al.* Size distribution, mixing state and source apportionment of black carbon aerosol in London during wintertime [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14**(18): 10061-10084.
- [13] 许黎, 王亚强, 陈振林, 等. 黑碳气溶胶研究进展 I: 排放, 清除和浓度 [J]. *地球科学进展*, 2006, **21**(4): 352-360.
Xu L, Wang Y Q, Chen Z L, *et al.* Progress of black carbon aerosol research I: Emission, removal and concentration [J]. *Advances in Earth Science*, 2006, **21**(4): 352-360.
- [14] 曹国良, 张小曳, 王亚强, 等. 中国大陆黑碳气溶胶排放清单 [J]. *气候变化研究进展*, 2007, **3**(S1): 75-81.
Cao G L, Zhang X Y, Wang Y Q, *et al.* Inventory of black carbon emission from China [J]. *Advances in Climate Change Research*, 2007, **3**(S1): 75-81.
- [15] Wang Z L, Huang X, Ding A J. Dome effect of black carbon and its key influencing factors: a one-dimensional modelling study [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(4): 2821-2834.
- [16] Ding A J, Huang X, Nie W, *et al.* Enhanced haze pollution by black carbon in megacities in China [J]. *Geophysical Research Letters*, 2016, **43**(6): 2873-2879.
- [17] Ma Y J, Ye J H, Xin J Y, *et al.* The stove, dome, and umbrella effects of atmospheric aerosol on the development of the planetary boundary layer in hazy regions [J]. *Geophysical Research Letters*, 2020, **47**(13), doi: 10.1029/2020GL087373.
- [18] Huang X, Ding A J, Wang Z L, *et al.* Amplified transboundary transport of haze by aerosol-boundary layer interaction in China [J]. *Nature Geoscience*, 2020, **13**(6): 428-434.
- [19] 杨一帆, 汤莉莉, 许潇锋, 等. 南京冬夏硫酸盐和硝酸盐对黑碳混合态的影响 [J]. *中国环境科学*, 2018, **38**(4): 1221-1230.
Yang Y F, Tang L L, Xu X F, *et al.* Impact of sulfate and nitrate on black carbon aerosols at Nanjing in winter and summer [J]. *China Environmental Science*, 2018, **38**(4): 1221-1230.
- [20] Schwarz J P, Spackman J R, Gao R S, *et al.* The detection efficiency of the single particle soot photometer [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2010, **44**(8): 612-628.
- [21] Zhang Y X, Su H, Ma N, *et al.* Sizing of ambient particles from a single-particle soot photometer measurement to retrieve mixing state of black carbon at a regional site of the North China Plain [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2018, **123**(22): 12778-12795.
- [22] Wentzel M, Gorzawski H, Naumann K H, *et al.* Transmission electron microscopical and aerosol dynamical characterization of soot aerosols [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2003, **34**(10): 1347-1370.
- [23] Streets D G, Gupta S, Waldhoff S T, *et al.* Black carbon emissions in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(25): 4281-4296.
- [24] Wang Q Y, Cao J J, Han Y M, *et al.* Enhanced light absorption due to the mixing state of black carbon in fresh biomass burning emissions [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **180**: 184-191.
- [25] Saathoff H, Naumann K H, Schnaiter M, *et al.* Coating of soot and $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ particles by ozonolysis products of α -pinene [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2003, **34**(10): 1297-1321.
- [26] Shen L J, Wang H L, Gao W K, *et al.* Real-time physicochemistry of urban aerosols during a regional haze episode by a single-particle aerosol mass spectrometer: Mixing state, size distribution and source apportionment [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2020, **11**(8): 1329-1338.
- [27] Wang H L, Shen L J, Yin Y, *et al.* Characteristics and mixing state of aerosol at the summit of Mount Tai (1534 m) in Central East China: First measurements with SPAMS [J]. *Atmospheric Environment*, 2019, **213**: 273-284.
- [28] Schwarz J P, Spackman J R, Fahey D W, *et al.* Coatings and their enhancement of black carbon light absorption in the tropical atmosphere [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2008, **113**(D3), doi: 10.1029/2007JD009042.
- [29] Shiraiwa M, Kondo Y, Moteki N, *et al.* Evolution of mixing state of black carbon in polluted air from Tokyo [J]. *Geophysical Research Letters*, 2007, **34**(16), doi: 10.1029/2007GL029819.
- [30] Jacobson M Z. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols [J]. *Nature*, 2001, **409**(6821): 695-697.
- [31] Dusek U, Reischl G P, Hitznerberger R. CCN activation of pure and coated carbon black particles [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(4): 1223-1230.
- [32] Furutani H, Dall'osto M, Roberts G C, *et al.* Assessment of the relative importance of atmospheric aging on CCN activity derived from field observations [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(13): 3130-3142.
- [33] Dalirian M, Ylisirniö A, Buchholz A, *et al.* Cloud droplet activation of black carbon particles coated with organic compounds of varying solubility [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(16): 12477-12489.
- [34] Bond T C, Habib G, Bergstrom R W. Limitations in the enhancement of visible light absorption due to mixing state [J].

- Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2006, **111** (D20), doi: 10.1029/2006JD007315.
- [35] 高杰, 乔利平, 楼晟荣, 等. 上海城区二次气溶胶的形成: 光化学氧化与液相反应对二次气溶胶形成的影响[J]. 环境科学, 2019, **40**(6): 2510-2518.
- Gao J, Qiao L P, Lou S R, *et al.* Secondary aerosol formation in urban shanghai: Insights into the roles of photochemical oxidation and aqueous-phase reaction[J]. Environmental Science, 2019, **40**(6): 2510-2518.
- [36] 张周祥, 张养梅, 张小曳, 等. 秋冬季节华北背景地区 PM₁ 污染特征及来源[J]. 环境科学, 2017, **38**(7): 2647-2655.
- Zhang Z X, Zhang Y M, Zhang X Y, *et al.* Sources and characteristics of regional background PM₁ in north china during the autumn and winter polluted period [J]. Environmental Science, 2017, **38**(7): 2647-2655.
- [37] Singh A, Satish R V, Rastogi N. Characteristics and sources of fine organic aerosol over a big semi-arid urban city of western India using HR-ToF-AMS[J]. Atmospheric Environment, 2019, **208**: 103-112.
- [38] Li Y J, Sun Y L, Zhang Q, *et al.* Real-time chemical characterization of atmospheric particulate matter in China: A review[J]. Atmospheric Environment, 2017, **158**: 270-304.
- [39] 刘瑜存, 朱雯雯, 王毓旻, 等. 基于高质量分辨率质谱仪研究上海城区秋季大气亚微米级颗粒物化学特性[J]. 环境科学学报, 2018, **38**(7): 2746-2756.
- Liu Y C, Zhu W F, Wang Y M, *et al.* Characterization of atmospheric submicron particles at an urban site in Shanghai in autumn using a high-resolution aerosol mass spectrometer[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018, **38**(7): 2746-2756.
- [40] Sun Y L, Zhang Q, Anastasio C, *et al.* Insights into secondary organic aerosol formed via aqueous-phase reactions of phenolic compounds based on high resolution mass spectrometry [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, **10** (10): 4809-4822.
- [41] Sun J Y, Zhang Q, Canagaratna M R, *et al.* Highly time-and size-resolved characterization of submicron aerosol particles in Beijing using an aerodyne aerosol mass spectrometer [J]. Atmospheric Environment, 2010, **44**(1): 131-140.
- [42] Huang X F, He L Y, Hu M, *et al.* Highly time-resolved chemical characterization of atmospheric submicron particles during 2008 Beijing Olympic Games using an aerodyne high-resolution aerosol mass Spectrometer[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, **10**(18): 8933-8945.
- [43] Sun Y L, Wang Z F, Dong H B, *et al.* Characterization of summer organic and inorganic aerosols in Beijing, China with an aerosol chemical speciation Monitor [J]. Atmospheric Environment, 2012, **51**: 250-259.
- [44] 王跃思, 张军科, 王莉莉, 等. 京津冀区域大气霾污染研究意义、现状及展望[J]. 地球科学进展, 2014, **29**(3): 388-396.
- Wang Y S, Zhang J K, Wang L L, *et al.* Researching significance, status and expectation of haze in Beijing-Tianjin-Hebei region[J]. Advances in Earth Science, 2014, **29**(3): 388-396.
- [45] Wang Y H, Gao W K, Wang S, *et al.* Contrasting trends of PM_{2.5} and surface-ozone concentrations in China from 2013 to 2017[J]. National Science Review, 2020, **7**(8): 1331-1339.
- [46] Wang H L, Shen L J, Zhu B, *et al.* Spatial and temporal distributions of air pollutants and size distribution of aerosols over central and eastern China [J]. Archives of Environmental Contamination and Toxicology, 2017, **72**(4): 481-495.
- [47] Bai D P, Wang H L, Cheng M T, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} and its optical properties during a regional haze episode over north China plain [J]. Atmospheric Pollution Research, 2021, **12**(1): 89-99.
- [48] 王耀庭, 李青春, 郑祚芳, 等. 北京春季一次霾-沙天气污染特性与成因分析[J]. 环境科学, 2019, **40**(6): 2582-2594.
- Wang Y T, Li Q C, Zheng Z F, *et al.* Research on the pollution characteristics and causality of haze-sand air pollution in Beijing in spring [J]. Environmental Science, 2019, **40**(6): 2582-2594.
- [49] 张南, 熊黑钢, 葛秀秀, 等. 北京市冬季雾霾天人体呼吸高度 PM_{2.5} 变化特征对气象因素的响应[J]. 环境科学, 2016, **37**(7): 2419-2427.
- Zhang N, Xiong H G, Ge X X, *et al.* Response of human respiratory height PM_{2.5} variation characteristics to meteorological factors during winter haze days in Beijing [J]. Environmental Science, 2016, **37**(7): 2419-2427.
- [50] 姚森, 张晗宇, 王晓琦, 等. 2016 年 1 月京津冀地区大气污染特征与多尺度传输量化评估[J]. 环境科学, 2021, **42**(2): 534-545.
- Yao S, Zhang H Y, Wang X Q, *et al.* Air pollution characteristics and quantitative evaluation of multi-scale transport in the Beijing-Tianjin-Hebei region in January, 2016 [J]. Environmental Science, 2021, **42**(2): 534-545.
- [51] 朱媛媛, 高愈霄, 汪巍, 等. 2019 年 10~12 月京津冀及周边“2+26”城市重污染减排效果评估[J]. 环境科学, 2020, **41**(10): 4402-4412.
- Zhu Y Y, Gao Y X, Wang W, *et al.* Assessment of emergency emission reduction effect during the heavy air pollution episodes in Beijing, Tianjin, Hebei, and its surrounding area ("2+26" cities) from October to December 2019 [J]. Environmental Science, 2020, **41**(10): 4402-4412.
- [52] Wang Y S, Yao L, Wang L L, *et al.* Mechanism for the formation of the January 2013 heavy haze pollution episode over central and eastern China[J]. Science China Earth Sciences, 2014, **57**(1): 14-25.
- [53] Baumgardner D, Kok G, Raga G. Warming of the Arctic lower stratosphere by light absorbing particles [J]. Geophysical Research Letters, 2004, **31** (6), doi: 10.1029/2003GL018883.
- [54] Schwarz J P, Gao R S, Fahey D W, *et al.* Single-particle measurements of midlatitude black carbon and light-scattering aerosols from the boundary layer to the lower stratosphere [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2006, **111** (D16), doi: 10.1029/2006JD007076.
- [55] Huang X F, Sun T L, Zeng L W, *et al.* Black carbon aerosol characterization in a coastal city in South China using a single particle soot photometer[J]. Atmospheric Environment, 2012, **51**: 21-28.
- [56] DeCarlo P F, Kimmel J R, Trimborn A, *et al.* Field-deployable, high-resolution, time-of-flight aerosol mass spectrometer [J]. Analytical Chemistry, 2006, **78**(24): 8281-8289.
- [57] Canagaratna M R, Jayne J T, Jimenez J L, *et al.* Chemical and microphysical characterization of ambient aerosols with the aerodyne aerosol mass spectrometer [J]. Mass Spectrometry Reviews, 2007, **26**(2): 185-222.
- [58] Stein A F, Draxler R R, Rolph G D, *et al.* NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system [J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 2015, **96**(12): 2059-2077.
- [59] Wang Y Q, Zhang X Y, Draxler R R. TrajStat: GIS-based

- software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data [J]. *Environmental Modelling & Software*, 2009, **24**(8): 938-939.
- [60] Shen L J, Wang H L, Kong X C, *et al.* Characterization of black carbon aerosol at the summit of Mount Tai (1534 m) in central east China: Temporal variation, source appointment and transport [J]. *Atmospheric Environment*, 2021, **246**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.118152.
- [61] Lucey D, Hadjiiski L, Hopke P K, *et al.* Identification of sources of pollutants in precipitation measured at the mid-Atlantic US coast using potential source contribution function (PSCF) [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(23): 3979-3986.
- [62] Hsu Y K, Holsen T M, Hopke P K. Comparison of hybrid receptor models to locate PCB sources in Chicago [J]. *Atmospheric Environment*, 2003, **37**(4): 545-562.
- [63] Polissar A V, Hopke P K, Poirot R L. Atmospheric aerosol over Vermont: chemical composition and sources[J]. *Environmental Science and Technology*, 2001, **35**(23): 4604-4621.
- [64] Riemer N, Vogel H, Vogel B. Soot aging time scales in polluted regions during day and night [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2004, **4**(7): 1885-1893.
- [65] 唐孝炎, 张远航, 邵敏. 大气环境化学[M]. 北京: 高等教育出版社, 2006. 63-70.
- [66] Shen L J, Hao F, Gao M, *et al.* Real-time geochemistry of urban aerosol during a heavy dust episode by single-particle aerosol mass spectrometer: Spatio-temporal variability, mixing state and spectral distribution[J]. *Particuology*, 2020, **53**: 197-207.
- [67] Wang L, Du H H, Chen J M, *et al.* Consecutive transport of anthropogenic air masses and dust storm plume: Two case events at Shanghai, China[J]. *Atmospheric Research*, 2013, **127**: 22-33.



CONTENTS

Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals in Urban Soils of Major Cities in China	PENG Chi, HE Ya-lei, GUO Zhao-hui, <i>et al.</i> (1)
Environmental Behaviors of Plant Growth Regulators in Soil: A Review	CHEN Liang, HOU Jie, HU Xiao-lei, <i>et al.</i> (11)
Preparation and Application of Magnetic Water Treatment Materials Based on Iron Sludge	ZENG Hui-ping, ZHAI Long-xue, LI Dong, <i>et al.</i> (26)
Meta-analysis of the Impact of Different Ozone Metrics on Total Mortality in China	RUAN Fang-fang, LIU Ji-xin, CHEN Zhi-wei, <i>et al.</i> (37)
Variation Characteristics and Potential Sources of the Mt. Haituo Aerosol Chemical Composition in Different Pollution Processes During Winter in Beijing, China	ZHAO De-long, WANG Fei, LIU Dan-tong, <i>et al.</i> (46)
Real-time Source Apportionment of PM _{2.5} and Potential Geographic Origins of Each Source During Winter in Wuhan	JIANG Shu-ning, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, <i>et al.</i> (61)
Spatiotemporal Distribution and Seasonal Characteristics of Regional Transport of PM _{2.5} in Yuncheng City	WANG Yun-tao, ZHANG Qiang, WEN Xiao-yu, <i>et al.</i> (74)
Three-dimensional Structure Variation of PM _{2.5} During Cold Front Advance in Eastern China	MOU Nan-nan, ZHU Bin, LU Wen (85)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Nitrated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Atmosphere of Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area	LI Yan-xi, XIE Dan-ping, LI Yu-qing, <i>et al.</i> (93)
Atmospheric VOCs Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Large-scale Integrated Industrial Area and Surrounding Areas in Southwest China	LI Ling, ZHANG Dan, HU Wei, <i>et al.</i> (102)
Characteristics and Source Apportionment of Ambient VOCs in Lhasa	YU Jia-yan, HAN Yan, CHEN Mu-lan, <i>et al.</i> (113)
Variation Characteristics of Ambient Volatile Organic Compounds (VOCs) Volume Fraction During Hangzhou COVID-19 Period	LIN Xu, YAN Ren-chang, JIN Jia-jia, <i>et al.</i> (123)
Role of Atmospheric VOCs in Ozone Formation in Summer in Shanghai Suburb	JIN Dan (132)
Characteristics of VOCs and Formation Potentials of O ₃ and SOA in Autumn and Winter in Tongchuan, China	YI Xiao-xiao, LI Jiang-hao, LI Guang-hua, <i>et al.</i> (140)
Emission Characteristics and Emission Factors of Volatile Organic Compounds from E-waste Dismantling and Recycling Processes	XIE Dan-ping, HUANG Zhong-hui, LIU Wang, <i>et al.</i> (150)
Nonlinear Response Relationship Between Ozone and Precursor Emissions in the Pearl River Delta Region Under Different Transmission Channels	WU Yong-kang, CHEN Wei-hua, YAN Feng-hua, <i>et al.</i> (160)
Characteristics of Ozone Pollution and Influencing Factors in Urban and Suburban Areas in Zibo	WANG Yu-yan, YANG Wen, WANG Xiu-yan, <i>et al.</i> (170)
Pollution Characteristics and Health Risk of Heavy Metals in Fugitive Dust Around Zhaotong City	PANG Xiao-chen, HAN Xin-yu, SHI Jian-wu, <i>et al.</i> (180)
Characteristics of Microplastic Present in Urban Road Dust	FANG Qin, NIU Si-ping, CHEN Yu-dong, <i>et al.</i> (189)
Stable Isotopes of Precipitation in the Eastern Tarim River Basin and Water Vapor Sources	SONG Yang, WANG Sheng-jie, ZHANG Ming-jun, <i>et al.</i> (199)
Characteristics and Risk Assessment of Antibiotic Contamination in Chishui River Basin, Guizhou Province, China	WU Tian-yu, LI Jiang, YANG Ai-jiang, <i>et al.</i> (210)
Hydrochemical Characteristics and Controlling Factors of Surface Water and Groundwater in Wuding River Basin	LI Shu-jian, HAN Xiao, WANG Wen-hui, <i>et al.</i> (220)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Nutrients and Heavy Metals in Sediments of the Fuhe River Influenced Area, Baiyangdian Lake	CHEN Xing-hong, LI Li-qing, ZHANG Mei-yi, <i>et al.</i> (230)
Occurrence Characteristics of Microplastics in Mangrove Sediments in the Jiulong River Estuary and the Association with Heavy Metals	LIU Chang-jun, LUO Zhuan-xi, YAN Yu, <i>et al.</i> (239)
Quantitative Analysis of the Correlation Between Macrobenenthos Community and Water Environmental Factors and Aquatic Ecosystem Health Assessment in the North Canal River Basin of Beijing	HU Xiao-hong, ZUO De-peng, LIU Bo, <i>et al.</i> (247)
Analysis on the Spatial Variability Mechanism of the Characteristic Water Quality Factors of Urban River Channel Reclaimed Water	LIU Quan-zhong, PENG Ke, SU Zhen-hua, <i>et al.</i> (256)
DOM Characteristics Analysis of Surface Sediment-overlying Water in Suzhou Landscape River Course	LI Chao-nan, HE Jie, ZHU Xue-hui, <i>et al.</i> (267)
Distribution of Typical Pollutants from Rainwater Sewer Sediments in Suzhou City	YE Rong, SHENG Ming-jun, JIANG Yong-bo, <i>et al.</i> (277)
Persistent Inhibition of Ammonium Released from Contaminated Sediments Through a Modified Zeolite and Biofilm System Enhanced by Signaling Molecules	XU Jin-lan, XU Yang, LI Xiu-min, <i>et al.</i> (285)
Effects of the Three Gorges Reservoir Operation on Vertical Distribution of Chlorophyll a and Environmental Factors in Tributaries	TIAN Pan, LI Ya-li, LI Ying-jie, <i>et al.</i> (295)
Characteristic Analysis of <i>nirS</i> Denitrifying Bacterial Community in Lijiahe Reservoir During Stratification	LIANG Wei-guang, HUANG Ting-lin, ZHANG Hai-han, <i>et al.</i> (306)
Spatial and Temporal Distribution of Aerobic Denitrification Bacterial Community in Sediments of Gangnan Reservoir	ZHANG Zi-wei, CHEN Zhao-ying, ZHANG Tian-na, <i>et al.</i> (314)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Metal Elements for Groundwater in the Ningxia Region of China	WANG Xiao-dong, TIAN Wei, ZHANG Xue-yan (329)
Geochemical Characteristics and Driving Factors of High-Iodine Groundwater in Rapidly Urbanized Delta Areas: A Case Study of the Pearl River Delta	LU Xiao-li, LIU Jing-tao, HAN Zhan-tao, <i>et al.</i> (339)
Multimedia Distribution Characteristics and Risk Assessment of 22 PPCPs in the Water Environment of Qingpu District, Yangtze River Delta Demonstration Area	ZHANG Zhi-bo, DUAN Yan-ping, SHEN Jia-hao, <i>et al.</i> (349)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of 209 Polychlorinated Biphenyls in Dongting Lake and the Inflow Rivers	HUANG Zhi-feng, ZHENG Bing-hui, YIN Da-qiang, <i>et al.</i> (363)
Estimation of Nitrous Oxide Emission from River System Based on Water Discharge and Dissolved Nitrous Oxide Concentration	LI Bing-qing, HU Min-peng, WANG Ming-feng, <i>et al.</i> (369)
Comparison Between Tributary and Main Stream and Preliminary Influence Mechanism of CO ₂ Flux Across Water-air Interface in Wanzhou in the Three Gorges Reservoir Area	QIN Yu, OUYANG Chang-yue, WANG Yu-xiao, <i>et al.</i> (377)
Preparation of Functional Attapulgite Composite and Its Adsorption Behaviors for Congo Red	LIAO Xiao-feng, ZHONG Jing-ping, CHEN Yun-nen, <i>et al.</i> (387)
Adsorption Characteristics and Long-term Effectiveness Evaluation of Iron-nitrogen Co-doped Biochar for Secondary Water-Soluble Organic Matter	WU Chen-xi, XU Lu, JIN Xin, <i>et al.</i> (398)
Nitrification Performance of Zeolite Moving Bed Biofilm Reactor for Ammonium Wastewater Treatment	DENG Cui-lan, GUO Lu, WANG Xiao-jun, <i>et al.</i> (409)
Effect of Temperature on ANAMMOX Process in Sequencing Batch Biofilm Reactors: Nitrogen Removal Performance and Bacterial Community	WU Shan, WANG Shu-ya, WANG Fen, <i>et al.</i> (416)
Effects of Carriers on ANAMMOX Sludge Activity Recovery and Microbial Flora Characteristics	LUO Jing-wen, YANG Jin-jin, LI Shao-kang, <i>et al.</i> (424)
Spatial Distribution and Source Analysis of Soil Heavy Metals in a Small Watershed in the Mountainous Area of Southern Ningxia Based on PMF Model	XIA Zi-shu, BAI Yi-ru, WANG You-qi, <i>et al.</i> (432)
Heavy Metal Concentration Characteristics and Health Risks of Farmland Soils in Typical Pyrite Mining Area of the Central Zhejiang Province, China	CHENG Xiao-meng, SUN Bin-bin, WU Chao, <i>et al.</i> (442)
Risk Zoning of Heavy Metals in a Peri-urban Area in the Black Soil Farmland Based on Agricultural Products	WU Song-ze, WANG Dong-yan, LI Wen-bo, <i>et al.</i> (454)
Main Control Factors of Cadmium Content in Rice in Carbonate Rock Region of Guangxi Based on the DGT Technique	SONG Bo, XIAO Nai-chuan, MA Li-jun, <i>et al.</i> (463)
Inhibitory Effects of Soil Amendment Coupled with Water Management on the Accumulation of Cd and Pb in Double-Cropping Rice	LI Lin-feng, WANG Yan-hong, LI Yi-chun, <i>et al.</i> (472)
Characteristics and Health Risk Assessment of Cadmium, Lead, and Arsenic Accumulation in Leafy Vegetables Planted in a Greenhouse	DONG Jun-wen, GAO Pei-pe, SUN Hong-xin, <i>et al.</i> (481)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Polychlorinated Biphenyls in E-waste Disposal Residue-Soil-Vegetable	ZHANG Ya-ping, LÜ Zhan-lu, WANG Xian-jiang, <i>et al.</i> (490)
Soil-crop Distribution and Health Risk Assessment of Organochlorine Pesticides on Typical Agricultural Land in Southern Leizhou Peninsula	LIANG Xiao-hui, XIE Qi-lai, ZHENG Qian, <i>et al.</i> (500)
Effects of Heavy Metal Content on Fungal Community Structure in Urban Soil	GUO Da-lu, ZHANG Jian, SHEN Si, <i>et al.</i> (510)
Effects of Long-term Fertilization on Soil Nutrient Characteristics and Microbial Resource Restrictions in a Terrace on the Loess Plateau	WU Chun-xiao, GAO Xiao-feng, YAN Ben-shuai, <i>et al.</i> (521)
Microbial Composition and Diversity in Soil of <i>Torreya grandis</i> cv. <i>Merrillii</i> Relative to Different Cultivation Years After Land Use Conversion	JIANG Ni-wen, LIANG Chen-fei, ZHANG Yong, <i>et al.</i> (530)
Effect of Combined Application of Biochar with Chemical Fertilizer and Organic Fertilizer on Soil Phosphatase Activity and Microbial Community	YANG Wen-na, YU Luo, LUO Dong-hai, <i>et al.</i> (540)
Extracellular Enzyme Stoichiometry and Microbial Metabolism Limitation During Vegetation Restoration Process in the Middle of the Qinling Mountains, China	XUE Yue, KANG Hai-bin, YANG Hang, <i>et al.</i> (550)
Effects of Biodegradable Film Raw Material Particles on Soil Properties, Wheat Growth, and Nutrient Absorption and Transportation	MIN Wen-hao, WANG Chun-li, WANG Li-wei, <i>et al.</i> (560)
Effects of Stalk Incorporation on Soil Carbon Sequestration, Nitrous Oxide Emissions, and Global Warming Potential of a Winter Wheat-Summer Maize Field in Guanzhong Plain	WAN Xiao-nan, ZHAO Ke-yue, WU Xiong-wei, <i>et al.</i> (569)