

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第9期

Vol.38 No.9

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

中国国道和省道机动车尾气排放特征	王人洁,王堃,张帆,高佳佳,李悦,岳涛(3553)
北偏西大风对北京冬季生物气溶胶的影响	闫威卓,王步英,Oscar Fajardo Montana,蒋靖坤,郝吉明(3561)
不同空气质量等级下环境空气颗粒物及其碳组分变化特征	方小珍,吴琳,张静,李怀瑞,毛洪钧,宋从波(3569)
大气颗粒物及降尘中重金属的分布特征与人体健康风险评价	王永晓,曹红英,邓雅佳,张倩(3575)
2014年6月南京大气复合污染观测	郝建奇,葛宝珠,王自发,张祥志,汤莉莉,徐丹卉(3585)
嘉兴市不同天气条件下大气污染物和气溶胶化学组分的分布特征	王红磊,沈利娟,唐倩,吕升,田旭东,李莉,张孝寒(3594)
应用扩散管测量霾污染期间大气氮硫化合物浓度的方法	田世丽,刘学军,潘月鹏,周焱博,许稳,王跃思(3605)
福建省地级市人为源活性氮排放及其特征分析	张千湖,高兵,黄葳,颜晓妹,崔胜辉(3610)
珠三角某高校室内灰尘重金属含量水平、来源及其健康风险评价	蔡云梅,黄涵书,任露陆,张艳林(3620)
贵金属和助剂负载量对柴油公交车 CDPF 颗粒净化性能的影响	谭丕强,仲益梅,郑源飞,楼狄明,胡志远(3628)
东营市北部海域沉积物中重金属的分布、来源及生态风险评价	刘群群,孟范平,王菲菲,崔鸿武,王曰杰(3635)
基于 MERIS 影像的洪泽湖叶绿素 a 浓度时空变化规律分析	刘阁,李云梅,吕恒,牟蒙,雷少华,温爽,毕顺,丁潇蕾(3645)
太湖蠡河小流域水质的空间变化特征及污染源解析	连慧姝,刘宏斌,李旭东,宋挺,雷秋良,任天志,武淑霞,李影(3657)
黄河高村至利津河段水体和沉积物中不同形态磷的分布特征	赵瞰,贾雁翔,姜兵琦,梅翔宇,李敏(3666)
三峡澎溪河流域消落区与岸边土壤磷形态特征	黄俊杰,王超,方博,冯磊,方芳,李哲,郭劲松(3673)
网湖沉积物正构烷烃分布特征及其记录的环境变化	沈贝贝,吴敬禄,曾海鳌,张永东,金苗(3682)
高地下水位地区透水停车场的水文控制效果	金建荣,李田,王圣思,陈子隽,周佳雯(3689)
北方典型设施蔬菜种植区地下水水质特征	于静,虞敏达,蓝艳,何小松,李敏(3696)
垃圾填埋水溶性有机物组成、演化及络合重金属特征	肖骁,何小松,席北斗,高如泰,李丹,张慧,崔东宇,袁志业(3705)
潜流人工湿地基质结构与微生物群落特征的相关性	李振灵,丁彦礼,白少元,李雪芬,游少鸿,解庆林(3713)
滑石矿开采对着生藻群落结构和水环境的影响	臧小苗,张远,林佳宁,王书平,高欣,赵茜,王靖淇(3721)
高铵条件下绿狐尾藻的生理与氮磷吸收特征	刘少博,冉彬,曾冠军,李宝珍,朱红梅,刘锋,肖润林,吴金水(3731)
活性炭吸附对藻类有机物的去除及其消毒副产物的控制	苗雨,翟洪艳,于珊珊,张婧,史常香(3738)
石墨烯凝胶电极的制备及电吸附 Pb^{2+} 的性能	王瑶,吉庆华,李永峰,胡承志(3747)
电流密度对 BDD 电极电化学矿化吡啶的影响与机制	张佳维,王婷,郑彤,蒋欢,倪晋仁(3755)
黄铁矿光化学氧化降解微囊藻毒素-LR 的机制	周薇,方艳芬,张钰,吴春红,黄应平(3762)
双氧水协同生化法强化处理印染废水	岳秀,唐嘉丽,于广平,吉世明,刘竹寒(3769)
基于 ABR-MBR 组合工艺不同进水 C/N 比对反硝化除磷性能的影响机制	吴鹏,程朝阳,沈耀良,赵诗惠,吕亮(3781)
利用好氧颗粒污泥持续增殖启动高性能亚硝化反应器	高军军,钱飞跃,王建芳,陈希,沈耀良,张泽宇,闫俞廷(3787)
零价铁自养反硝化过程活性污泥矿化及解决措施	张宁博,李祥,黄勇,张文静(3793)
低氧污泥丝状菌膨胀的呼吸图谱特征分析	马智博,李志华,杨成建,贺春博,秋亮,张晶(3801)
市政污泥接种焦化废水好氧降解能力及微生物群落演替的响应分析	刘国新,吴海珍,孙胜利,胡肖怡,吴晓英,陈华勇,范一文,胡成生,韦朝海(3807)
高效反硝化细菌的快速培养及群落结构多样性分析	孟婷,杨宏(3816)
两座污水处理系统中细胞态和游离态抗生素抗性基因的丰度特征	张衍,陈吕军,谢辉,李奥林,代天娇(3823)
生物炭对土壤 CH_4 、 N_2O 排放的影响	周凤,许晨阳,王月玲,林云,王强,张彤彤,耿增超(3831)
江西省耕地土壤碳氮比空间变异特征及其影响因素	江叶枫,郭熙,孙凯,饶磊,李婕,王澜珂,叶英聪,李伟峰(3840)
碳酸钙与生物炭对酸化菜地土壤持氮能力的影响	俞映惊,杨林章,Alfred Oduor Odindo,薛利红,何世颖,段婧婧(3851)
黄土丘陵区小流域不同整地措施长期影响下的土壤水力学特性	冯天骄,卫伟,陈利顶,陈蝶,干洋,杨磊(3860)
有机碳含量对多环芳烃在土壤剖面残留及迁移的影响	费佳佳,张枝焕,万甜甜,何奉朋(3871)
酸雨区不同用地类型土壤有效态 Cd 含量季节变化及关键影响因子	刘孝利,曾昭霞,铁柏清,叶长城,周俊驰,雷鸣(3882)
陕西潼关冶金污染土壤的修复评价及应用潜力	王姣,肖然,李荣华,宁西翠,蒋顺成,李晓龙,张增强,沈锋(3888)
甘肃白银东大沟铅锌铜复合污染场地水泥固化稳定化原位修复	吕浩阳,费杨,王爱勤,阎秀兰,李发生,李春萍,杜延军,郑梓铭(3897)
设施栽培对土壤与蔬菜中 PAHs 污染特征及其健康风险评价	金晓佩,贾晋璞,毕春娟,王薛平,郭雪,陈振楼,仇新莲(3907)
镉-铅复合污染下 AM 真菌对玉米生长和镉、铅吸收的影响	常青,郭伟,潘亮,王起凡,周昕南,杨亮,李娥(3915)
秸秆还田对水稻镉积累及其亚细胞分布的影响	段桂兰,王芳,岑况,王伯勋,程旺大,刘跃川,张红梅(3927)
<i>Pantoea</i> sp. IMH 介导土壤中砷锑的形态转化	张林,卢金锁(3937)
生物炭对土壤中重金属铅和锌的吸附特性	王红,夏雯,卢平,布雨薇,杨浩(3944)
浒苔生物炭的特征及其对 Cr(VI) 的吸附特点和吸附机制	陈友媛,惠红霞,卢爽,王报英,王志婕,王楠(3953)
灼烧净水污泥对外源磷的吸附和固定作用	于胜楠,李勇,李大鹏,黄勇(3962)
污泥生物炭制备吸附陶粒	李杰,潘兰佳,余广炜,汪印,尤甫天,谢胜禹(3970)
石墨相氮化碳-碘氧化铋层状异质结的构建及其光催化杀菌性能	黄建辉,林文婷,谢丽燕,陈建琴(3979)
《环境科学》征稿简则(3859)	《环境科学》征订启事(3952)
信息(3644, 3688, 3768)	

2014 年 6 月南京大气复合污染观测

郝建奇^{1,2}, 葛宝珠^{1*}, 王自发¹, 张祥志³, 汤莉莉³, 徐丹卉^{1,2}

(1. 中国科学院大气物理研究所, 大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 江苏省环境监测中心, 南京 210036)

摘要: 二次无机盐是 $\text{PM}_{2.5}$ 的重要组成部分, 厘清污染过程中二次无机盐的演变过程和影响因素, 是提高对污染过程认识的关键. 以 2014 年 6 月南京地区两次污染事件为例, 研究了污染过程中二次无机盐的演变过程和影响因素. 结果表明, 两次污染过程均表现出显著的大气复合污染特征; 污染初期, 臭氧浓度较高, 大气氧化性强, 气态硝酸具有较高的生成潜势, 为细颗粒物中 NO_3^- 的快速生成创造前提条件, 后期相对湿度(RH)升高对 NO_3^- 的生成起决定性作用; 当 RH 大于多组分的共同潮解相对湿度(DRH^*)时, NH_4NO_3 潮解平衡时 NH_3 和 HNO_3 的理论分压积显著降低, 低于观测得到的分压积, 有利于 NO_3^- 生成, 同时, 观测和理论的分压积差异能够很好地表征 NO_3^- 的浓度变化特征.

关键词: 大气复合污染; 潮解相对湿度; 硝酸盐; 分压积; 气溶胶液态水

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)09-3585-09 DOI: 10.13227/j.hj.kx.201702026

Observational Study of Air Pollution Complex in Nanjing in June 2014

HAO Jian-qi^{1,2}, GE Bao-zhu^{1*}, WANG Zi-fa¹, ZHANG Xiang-zhi³, TANG Li-li³, XU Dan-hui^{1,2}

(1. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. Jiangsu Environmental Monitoring Center, Nanjing 210036, China)

Abstract: Studying the evolution of secondary inorganic aerosols, which are important components of $\text{PM}_{2.5}$, is crucial to improving our understanding about the air pollution in big cities. This study investigates the evolution and factors of secondary inorganic aerosols based on two pollution incidences in Nanjing in June 2014. A significant characteristic of air pollution complex with the coexistence of higher concentrations of both $\text{PM}_{2.5}$ and ozone is observed. In the earlier stage of the pollution episode, ozone concentrations were high, which could exceed 250, triggering a stronger oxidation in the atmosphere and a higher production potential of nitric acid that leads to the quick production of nitrate. In the later period of the pollution episode, relative humidity played an essential role. An increase in relative humidity would result in a sharp decrease in the theoretical product of the partial pressures of NH_3 and HNO_3 , especially when relative humidity exceeds the mutual deliquesce relative humidity that makes it easier to form nitrate. The difference in the theoretical and observational partial pressure product could characterize the evolution of nitrate perfectly.

Key words: air pollution complex; deliquesce relative humidity; nitrate; partial pressure product; aerosol liquid water content

随着经济的快速发展,城市化进程加快,我国能源消耗居高不下,机动车保有量持续上升,我国面临严重的空气污染,以京津冀、长三角和珠三角地区最为突出. 而 2013 年国务院办公厅发布的《大气污染防治行动计划》(“国十条”)明确要求切实改善空气质量,到 2017 年,长三角地区可吸入的细颗粒物的浓度相对于 2012 年下降 20% 以上. 为达到国十条要求,江苏省采取了严格的减排措施,2014 年二氧化硫和氮氧化物的排放总量分别削减 3.7 万 t 和 10.5 万 t, 2015 年减排强度增加到 6.96 万 t 和 16.5 万 t,但是从减排效果来看,并不是十分显著, O_3 甚至出现逐年上升趋势(2014 上升 8%, 2015 上升 11%)^[1]. 因此切实掌握污染形成时的特征、厘清污染形成的机制,并做好预防措施,才能有效改善空气质量.

然而,北京和珠三角地区的观测表明,较高浓度的细颗粒物和臭氧共同存在^[2,3], 污染物之间相互作用^[4], 表现出显著的大气复合污染特征. 细颗粒物和臭氧虽属于不同类型的污染物,但两者可在化学生成上通过多种途径相互作用. 吸收性细颗粒物可以减少到达地面的紫外辐射,抑制了大气的光化学作用^[5-7], 削弱了臭氧的生成和累积,进一步减少大气中二次有机物(SOA)的浓度. 同时,溶解在云水中的 O_3 能够促进 SO_2 向硫酸根离子的转化^[8]. 此外,实验室研究和外场观测均表明,细颗粒物表面

收稿日期: 2017-02-08; 修订日期: 2017-03-27

基金项目: 中国科学院战略性先导科技专项(XDB05030203); 国家自然科学基金项目(41305113, 41575123); 国家科技支撑计划项目(2014BAC22B04)

作者简介: 郝建奇(1992~),男,硕士研究生,主要研究方向为大气环境数值模拟, E-mail: kylinhao@mail.iap.ac.cn

* 通信作者, E-mail: gebz@mail.iap.ac.cn

的非均相化学作为细颗粒物和臭氧相互作用的另一种途径,可以改变大气中臭氧浓度^[9]和颗粒物的化学组分^[10],促进大气复合污染的形成^[11]. 水汽的存在通过影响水溶性有机物的气粒分配、气溶胶表面的化学反应、气溶胶的粒径分布以及二次无机盐的浓度^[12~14],增大了研究非均相化学反应机制的难度.

此外,大气化学研究热点和难点之一便是鉴定和分析 $\text{PM}_{2.5}$ 的化学组分,对水溶性离子进行分析有助于增加对大气污染形成机制的认识. 然而受污染物之间相互作用的影响,不同的地区污染物比例不同、RH 不同,其水溶性离子的形成也存在显著差异. 以硝酸根离子的形成为例, Sun 等^[15,16] 发现纽约地区夏季 NH_4NO_3 主要是 HNO_3 和 NH_3 通过气粒转换而来,其反应平衡常数 K_p 能够很好地刻画硝酸根离子的形成;而 Ge 等^[17] 在北京的研究发现, K_p 的变化与硝酸根离子的变化存在一定的位相差,并不能很好地刻画硝酸根离子的生消. 究其原因因为 NH_4NO_3 在相对较高的 RH 下易于潮解,以离子形式存在于气溶胶液滴中, Sun 等^[15,16] 的研究中 RH 均小于 60%,最低可达 20%,而 Ge 等^[17] 的研究中 RH 最高可达 80%,因此使用单一相解释气态硝酸盐的快速形成是不合理的. 本文基于 2014 年 6 月南京地区两次污染个例,对比分析了两次个例中二次无机盐组分的变化差异,以及 RH 在二次无机盐形成过程中的作用,并利用后向轨迹对比分析了两次污染个例的来源差异等.

1 材料与方法

1.1 数据介绍

6 项常规污染物 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 O_3 、 NO_2 、 SO_2 、CO 浓度;常规气象要素如温度、气压、风向风速和降水等观测结果以及其余污染物的基础数据如 NO 、 NO_x 、UV、硫酸根离子(SO_4^{2-})、硝酸根离子(NO_3^-)、铵根离子(NH_4^+)、气态硝酸(HNO_3)和氨气(NH_3)的浓度均来源于江苏省省中心多参数站^[18],其位置如图 1 所示,其中 NO_x 排放的空间分布为清华大学提供的 multi-resolution emission inventory for China (MEIC) 排放源. 时间段为 2014 年 6 月 1 日 00:00 至 7 月 3 日 23:00. 其中, $\text{PM}_{2.5}$ 的质量浓度是使用 MET ONE 1020 (BAM) 在线监测仪观测得到,其通过测量射线衰减程度来计算颗粒物浓度. $\text{PM}_{2.5}$ 中 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 等水溶性离子的小时浓度是由 monitoring instrument for aerosols

and gases (Marga 1S) 在线检测仪得到. Marga 是一台全自动半连续测量的在线检测仪器,使用旋转式液体气蚀器(wet rotating denuder, WRD) 获取逐时的气体浓度数据,同时,利用蒸汽喷射气溶胶收集器(steam jet aerosol collector, SJC) 获取逐时的气溶胶浓度数据,能监测大气中部分污染气体及气溶胶水溶性离子成分的浓度.

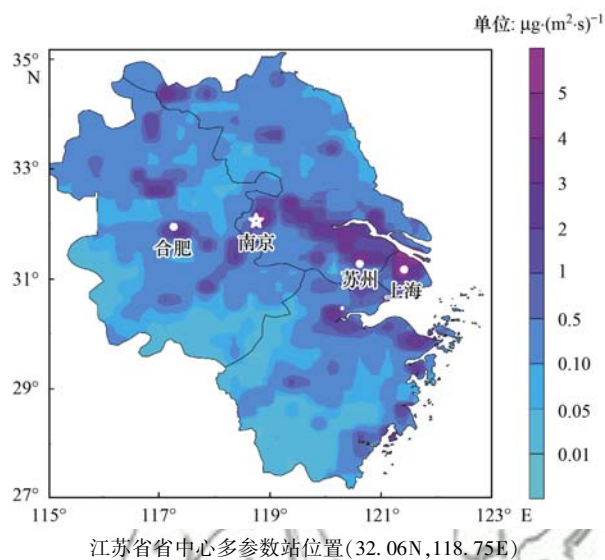


图 1 长三角地区 NO_x 排放源的空间分布示意图

Fig. 1 Spatial distribution of NO_x emission in Yangtze River Delta

1.2 研究方法

1.2.1 SO_2 、 NO_2 的氧化能力

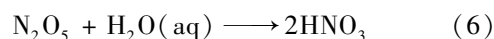
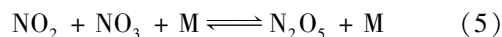
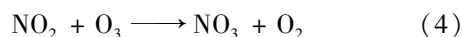
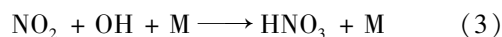
在污染过程中, SO_2 、 NO_2 等在大气中演变形成的二次无机盐,是 $\text{PM}_{2.5}$ 的重要组成部分,本文使用式(1)、(2)表征 SO_2 、 NO_2 向 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 二次无机盐的转化能力,并进一步分析 SO_2 、 NO_2 氧化能力在不同的污染过程中表现出来的共性和个性差异.

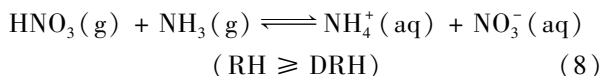
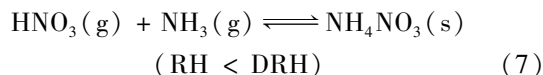
$$\text{SOR} = \frac{[\text{SO}_4^{2-}]}{[\text{SO}_2] + [\text{SO}_4^{2-}]} \quad (1)$$

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

式中, SOR 和 NOR 分别表征 SO_2 、 NO_2 的氧化能力. $[\text{SO}_4^{2-}]$ 、 $[\text{NO}_3^-]$ 分别为硫酸盐、硝酸盐的浓度, $[\text{SO}_2]$ 、 $[\text{NO}_2]$ 分别为气态 SO_2 、 NO_2 的浓度,其单位均为 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.

1.2.2 不同相态下 NO_3^- 的生成能力的评估





NO_3^- 的主要产生途径主要为:①光化学反应 + 气粒分配: NO_2 和 OH 在催化剂的作用下生成气态 HNO_3 [式(3)], 后在不同相态下, HNO_3 与 NH_3 形成不同相态的硝酸盐 [式(7) ~ (8)]; ②非均相化学反应: NO_2 与 O_3 反应生成 NO_3 , 进一步与 NO_2 结合形成 N_2O_5 后溶解在颗粒物表面的液滴中, 形成硝酸气, 进一步形成硝酸盐 [式(4) ~ (6)].

为研究 NO_3^- 演变的成因, 本文计算了在气粒分配过程中 [式(7) ~ (8)], 硝酸气体转化为硝酸铵的化学平衡常数 K , 又 K 与 RH 、温度有关, 当 RH 小于潮解相对湿度 DRH (NO_3^- 发生相态转变时对应的 RH) 时, 其化学平衡常数为 K_p [式(7)], 单位为 10^{-18} , 其计算公式见式(5); 当 RH 大于 DRH 时, 其化学平衡常数为 K_{an} [式(8)], 单位为 $\text{mol}^2 \cdot (\text{kg} \cdot \text{atm})^{-2}$, 其计算公式见式(6)^[9] 所示,

$$\text{DRH} = \frac{723.7}{e^{T+273.15}} + 1.6954 \quad (9)$$

$$\text{Theory } \xi_{\text{NH}_3} \times \xi_{\text{HNO}_3} =$$

$$\begin{cases} K_p & (\text{RH} < \text{DRH}) \\ \frac{\gamma_{\text{NH}_4\text{NO}_3}^2 \times m_{\text{NH}_4^+} \times m_{\text{NO}_3^-}}{K_{\text{an}}} & (\text{RH} \geq \text{DRH}) \end{cases} \quad (10)$$

表 1 不同 n 时对应的 $k_0 \sim k_6$ 的值^[19]

Table 1 Value of $k_0 \sim k_6$ in equation (17) for different n values

n	k_0	k_1	k_2	k_3	k_4	k_5
4	1.968 06	-8.893 87	30.218 4	-52.718 3	43.331 6	-13.701 7
2	8.150 67	-68.275 5	255.253	-472.832	429.489	-153.574
1	1.321 02	-2.299 29	3.703 63	-1.617 99	-4.236 49	3.525 29
1/2	1.030 17	0.908 123	2.484 50	-6.820 38	7.557 14	-3.257 72
1/3	7.695 87	-56.610 5	185.478	-303.385	244.992	-78.444 3
1/5	-6.035 19	63.897 1	-233.696	418.542	-370.394 7	130.001

由式(8)和式(10)可知, 潮解平衡时 NH_3 和 HNO_3 的理论分压积主要是由 NH_4NO_3 的活度系数以及 NH_4^+ 和 NO_3^- 在液滴中的质量浓度决定, 由于以上均不能直接测量, 由式(13) ~ (15) 计算得到^[20], 其中气溶胶液态水含量 W 的计算是关键, 考虑到使用 ZSR 关系^[21] 计算时需要使用到迭代, 而 Chan 等^[19] 利用总溶质的摩尔分数和水的活度系数的关系简化了这一算法, 且结果具有较好的一致性。文中使用者, 如式(15) ~ (17) 所示。

此外, 当多种组分共存时, 水的活度显著降低,

$$K_p = e^{84.6 - \frac{24220}{T+273.15} - 6.1 \times \ln\left(\frac{T+273.15}{298}\right)} \quad (11)$$

$$K_{\text{an}} = 4 \times 10^{17} e^{64.7 \times \left(\frac{298}{T+273.15} - 1\right) + 11.51 \left[1 + \ln\left(\frac{298}{T+273.15}\right) - \frac{298}{T+273.15}\right]} \quad (12)$$

$$\gamma_{\text{NH}_4\text{NO}_3} = 10^{\frac{-0.5108T}{T-0.034786T} + 0.0925T + 1.1978 \times 10^{-3}T^2 - 1.9075 \times 10^{-5}T^3} \quad (13)$$

$$I = 1/2 \sum_i z_i^2 \bar{m} \quad (14)$$

$$m_i = \frac{c_i}{W} \quad (15)$$

$$W = \frac{1 - \text{mfs}}{\text{mfs}} \times \sum_i c_i \quad (16)$$

$$\text{mfs} = k_0 + k_1 a_w + k_2 a_w^2 - k_3 a_w^3 - k_4 a_w^4 + k_5 a_w^5 \quad (17)$$

式中, T 为温度 (K), ξ_{NH_3} 和 ξ_{HNO_3} 分别代表 NH_3 和 HNO_3 在大气中所占的分压, 单位为 $\times 10^{-9}$; $\gamma_{\text{NH}_4\text{NO}_3}$ 为 NH_4NO_3 的活度系数, I 为溶质的离子强度, z_i 为不同离子的化合价, m_i 为气溶胶液滴中不同离子的质量摩尔浓度, 单位为 $\text{mol} \cdot \text{kg}^{-1}$, i 为 NH_4^+ 、 NO_3^- 等, $\bar{m}$ 为平均质量浓度, c_i 为不同离子的浓度, 单位为 $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$, W 为气溶胶水含量, 单位为 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, mfs 为总溶质的摩尔分数, 单位为%, a_w 为水的活度, 等于 $\text{RH}(0 \sim 1)$, $k_0 \sim k_5$ 为常数, 其大小由硝酸根离子和硫酸根离子浓度的摩尔比 n 决定, 如表 1 所示。

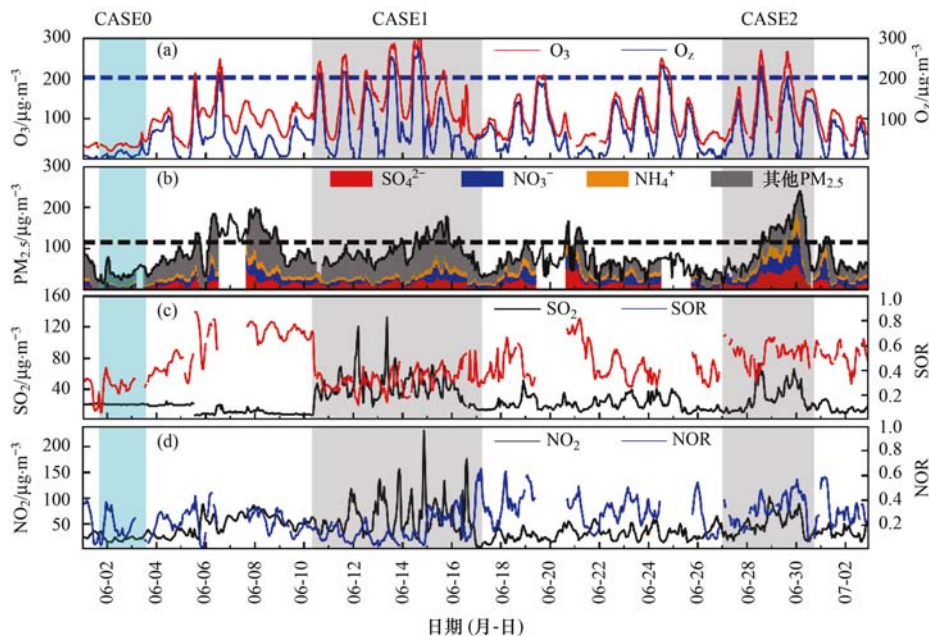
更多的气溶胶颗粒暴露在大 气中, 多组分的共同潮解相对湿度 (DRH^*) 随之降低^[8]。根据观测得到的 NH_4^+ 、 Na^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 Cl^- 等的浓度数据, 利用热力平衡模式 ISORROPIA II^[22] 计算出本研究的个例均属于 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ - NH_4NO_3 - Na_2SO_4 - NH_4Cl 平衡系统, 在 25 时其 DRH^* 为 46%, 当实际的 RH 大于 46%, 且小于 NH_4NO_3 的潮解相对湿度 (62%) 时, 无论是模式还是观测结果, 均能发现离子态的 NH_4^+ 和 NO_3^- , 说明在研究单一组分浓度的变化时需要考虑其他组分的影响。

2 结果与讨论

2.1 污染的总体特征

本文以 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度高于 $115 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (中度污染, 四级) 为标准进行污染个例筛选. 2014 年 6 月, 南京地区一共出现 4 次细颗粒物污染过程, 每次污染过程前后都出现不同程度的臭氧污染, 表明南京地区的污染具有显著的复合性污染特征. 鉴于 6 月 7 日和 6 月 20 日这两次个例中 $\text{PM}_{2.5}$ 的无机盐组分 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 存在观测缺失, 本文不对其进行进一步的讨论. 除去以上两次个例, 本研究筛选了两次污染个例, 分别为 6 月 10 日 08:00 至 6 月 17 日 08:00 (CASE1)、6 月 27 日 00:00 至 6 月 30 日 18:00 (CASE2), 筛选结果如图 2 灰色阴影所示. 为表征污染期间各污染物浓度的变化相对于清洁时期

的变化特征, 探讨污染形成的机制和来源, 进一步选取 6 月 01 日 16:00 至 6 月 03 日 14:00 (CASE0) 这个清洁时间 (污染物浓度较低的时段) 作为比对. 由图 2(a) 和 2(b) 可知, CASE1 和 CASE2 这两次污染个例发生时, 其 O_3 的小时浓度均超过 $200.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (轻度污染, 三级), 最高小时浓度分别可达 $273.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $228.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 8 h 滑动平均浓度最高分别可达 $248.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (中度污染, 四级) 和 $183 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (轻度污染, 三级). 图 2(c) 和 2(d) 显示了 SO_2 和 NO_2 浓度的时间序列和其在大气中的氧化程度 (SOR、NOR), 其计算如公式 (1) ~ (2) 所示, CASE1 和 CASE2 对应的 SOR 和 NOR 别为 0.3、0.2 和 0.6、0.4. 虽然 CASE1 中 SO_2 和 NO_2 的平均浓度均大于 CASE2, 但无论是 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 的浓度还是 SO_2 和 NO_2 的氧化程度, CASE1 远低于 CASE2.



(a) O_3 和 O_2 ($\text{O}_3 + \text{NO}_2$), (b) $\text{PM}_{2.5}$ 及其组分, (c) SO_2 和 SOR, (d) NO_2 和 NOR

图 2 2014 年 6 月不同污染物浓度的变化

Fig. 2 Time series of different pollutants in June 2014

此外, 从二次无机盐 ($\text{SNA} = [\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-] + [\text{NH}_4^+]$) 在 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度中所占的比例来看 (图 3), 相对于清洁时期的 SNA 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中所占的比例 41.7%, 两次污染个例中的比例均有不同程度地上升, 以 CASE2 最为突出, 可达 74.4% (SO_4^{2-} : 30.1%、 NO_3^- : 26.1% 和 NH_4^+ : 18.2%). 这一结果与周瑶瑶等^[23]得到的南京北郊雾-霾发生时 SO_2 和 NO_2 利于向 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 转化的结论类似. 然而, 对比 CASE1 和 CASE2 这两次个例, 其 SNA 在 $\text{PM}_{2.5}$ 的浓度占比相差较大. CASE2 中, SNA 所占的比例, 与

Ge 等^[17]、银燕等^[24]在南京市测得的结果相近, 而 CASE1 仅仅只有 47.3%, 显著低于 CASE2. SNA 中, CASE2 的 SO_4^{2-} 比 CASE1 大 10.4%, NO_3^- 大 10.5%, NH_4^+ 大 6.3%, 即 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 的差异最为显著.

2.2 CASE1 和 CASE2 中气象要素的差异

污染物浓度较高时, 总是伴随较低的风速、温度等, 以及较高的 RH^[25-27]. 因此, 为揭示以上现象的形成原因, 首先需要了解其天气形势和气象要素的变化. 图 4 显示了两污染个例中发生时对应的天气

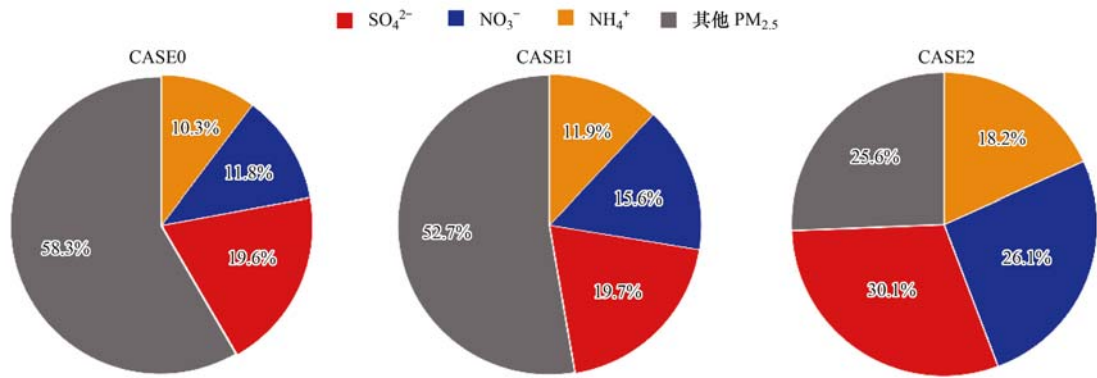
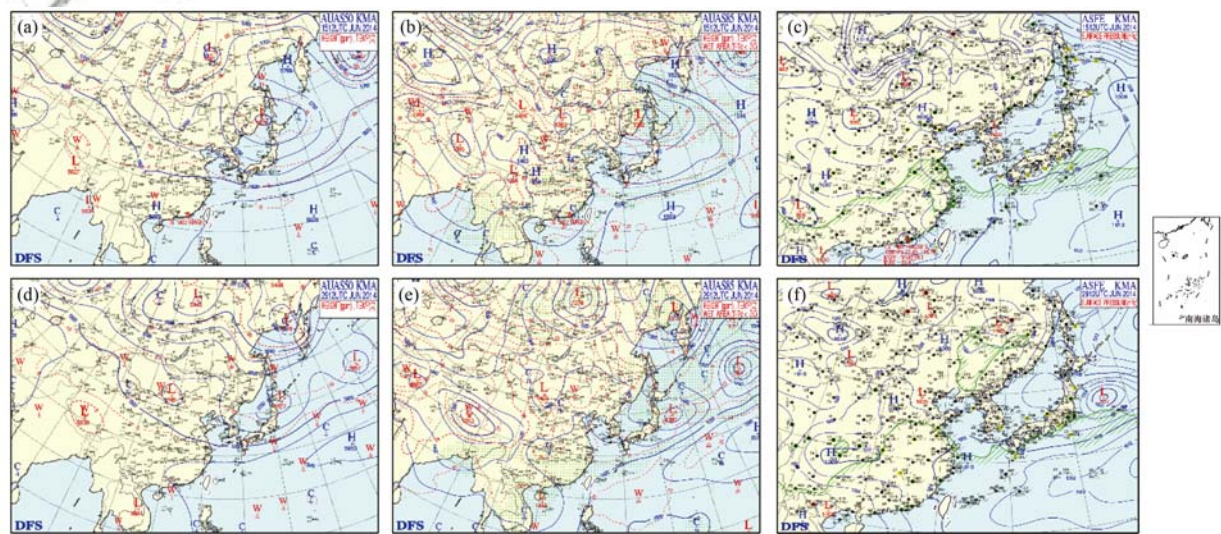


图 3 3 次个例中二次无机盐组分所占比例
Fig. 3 Ratio of secondary inorganic aerosols in different cases

形势, 图 4(a) ~ 4(c) 对应 CASE1, 图 4(d) ~ 4(f) 对应 CASE2. CASE1 初期, 南京地区主要受副高控制, 主要以晴好天气为主, RH 较低, 风速较小; 随后 500 hPa 河套地区小槽东移, 副热带高压西伸, 850 hPa 华北地区浅槽出现, 地面台风中心侧从广东登陆移向东北, 地面形成明显的倒槽, 南京地区出于倒槽的底部, 受台风影响, 水汽含量增多, RH 增大, 风速增大[图 4(a) ~ 4(c)], 后期逐渐产生降水, 即 CASE1 的水汽变化主要是台风的影响所致. CASE2 初期, 由于 850 hPa 南京地区处于槽的底部, 水汽比较充足, 地面受副热带高压西伸北抬的影响, 南京地区位于副热带高压的西北侧, 主要受弱的均压场影响, 风速较小[图 4(d) ~ 4(f)], 随后 850 hPa 浙江北部切变线的形成, 南京地区处于切变线的北部, 出现降水趋势, 即 CASE2 受 850 hPa 槽线和切变线的影响,

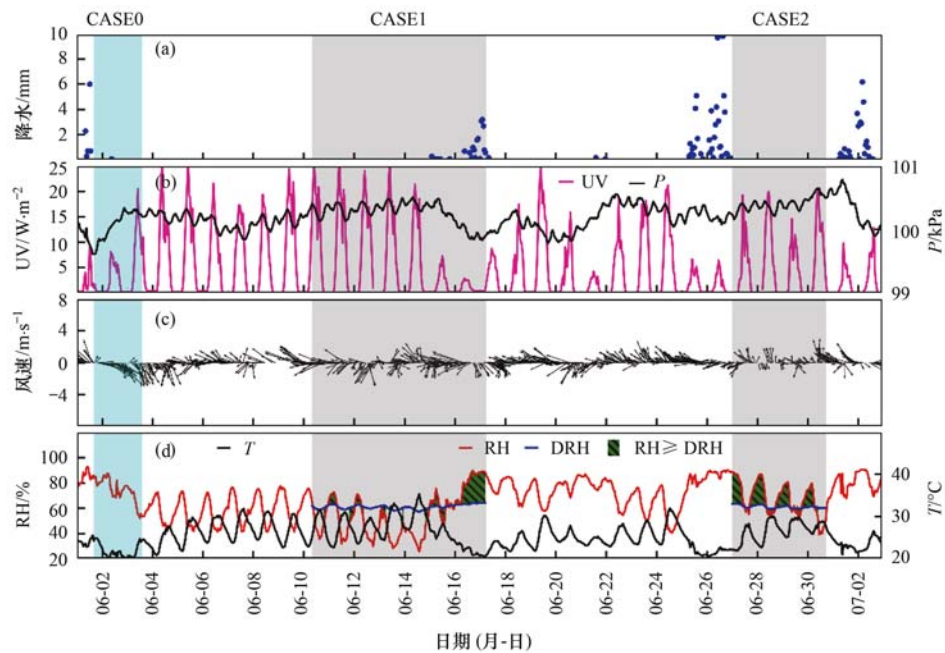
水汽含量较高, RH 较大. 图 5 显示了降水量、UV 辐射、气压、风向风速、RH 以及气压变化的时间序列. 从中可知, CASE1 发生在降水前, UV 辐射几近于 6 月的 UV 辐射最大值, O₃ 几乎处于本月最高水平[图 2(a)], 平均风速为 1.5 m·s⁻¹, 平均风向分别为东东北, 平均相对湿度为 49.8%. 而 CASE2 处于两次降水时间之间, UV 辐射相对降低, 平均风速为 0.5 m·s⁻¹, 平均风向分别为东东北, 平均相对湿度为 67.3%. 由 O₃ 的光化学产生途径可知, 相对 CASE2, CASE1 发生时的大气具有较高的氧化性, 这与 CASE1 中的 SO₂ 和 NO₂ 的氧化程度比 CASE2 小这一现象相悖, 本文 2.3 与 2.4 节将进一步讨论这种相悖现象的产生原因. 从风向风速来看, CASE1 的污染物输送能力高于 CASE2. 因此, 两次污染个例发生时气象要



(a) ~ (c) 为 2014 年 6 月 15 日 20:00 (北京时间) 500 hPa、850 hPa 和地面的天气形势;
(d) ~ (f) 为 2014 年 6 月 29 日 20:00 (北京时间) 500 hPa、850 hPa 和地面的天气形势

图 4 两次个例污染发生时对应的天气形势

Fig. 4 Meteorological condition in CASE1 and CASE2



(a)降水量,(b)UV 辐射和气压,(c)风速,(d) RH、T 和 DRH

图 5 2014 年 6 月不同气象要素的变化

Fig. 5 Time variation of meteorological factors

素中最大的差异体现 RH、UV 辐射以及风向风速的变化上。

2.3 SNA 对 RH 的敏感性

为进一步研究 RH 和 UV 辐射强度在两次污染个例中的作用,首先统计了 RH 对二次无机盐变化的影响。图 6 显示了不同 RH 下 SNA 总浓度占比、

SNA 组分浓度占比以及 SOR 和 NOR 的变化。从中可知,随着 RH 的增大,二次无机盐在 $PM_{2.5}$ 中的比例逐渐增大。在二次无机盐随 RH 的变化而变化的过程中, SO_4^{2-} 在 $PM_{2.5}$ 中的比例虽有增大趋势,但幅度较小, NH_4^+ 和 NO_3^- 在 $PM_{2.5}$ 中的比例均显著上升,其中硝酸盐的变化幅度更为显著,RH 在 80% ~

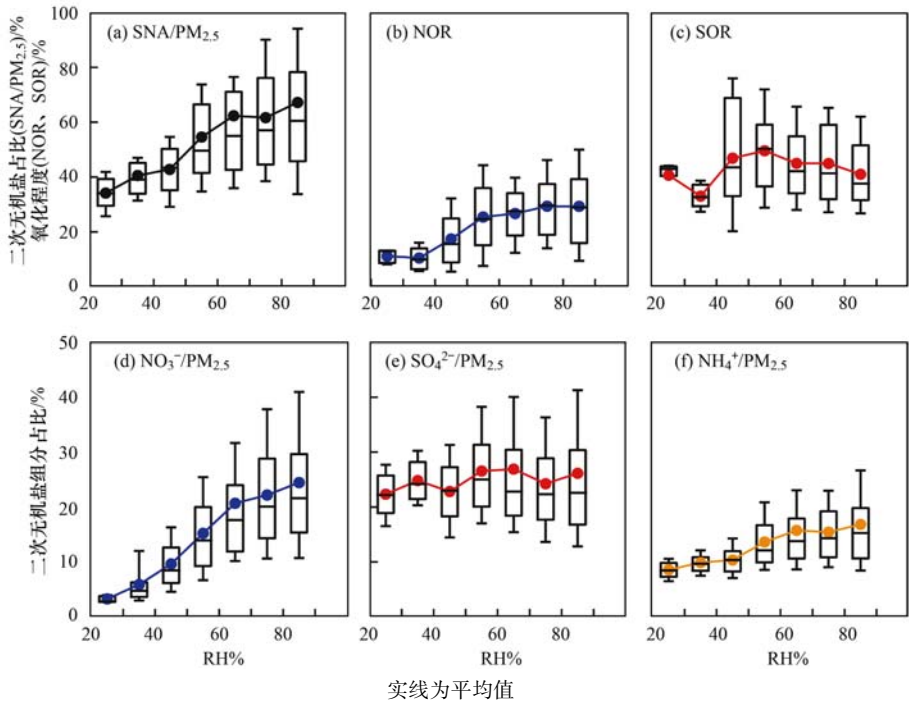


图 6 不同 RH 下,SNA/ $PM_{2.5}$ 、NOR、SOR、 $SO_4^{2-}/PM_{2.5}$ 、 $NO_3^-/PM_{2.5}$ 、 $NH_4^+/PM_{2.5}$ 的盒须图

Fig. 6 Variations in SNA/ $PM_{2.5}$, NOR, SOR, $SO_4^{2-}/PM_{2.5}$, $NO_3^-/PM_{2.5}$, and $NH_4^+/PM_{2.5}$ as a function of RH

90% 之间时对应的 NO_3^- 浓度占比约为 RH 在 20% ~ 30% 之间的 6 倍, NH_4^+ 占比也提升将近 2 倍左右. 这表明相对于 SO_4^{2-} , NH_4^+ 和 NO_3^- 的生成对 RH 敏感. 此外, 通过比较 SO_2 和 NO_2 的氧化程度[图 6 (b) 和 6(c)], 发现 SOR 和 NOR 随 RH 的变化中, NO_2 的氧化程度也与 RH 的大小呈现一个显著的正相关: 随着 RH 的增高, NO_2 的氧化程度显著上升, 最高可达到 50% 以上. 进一步, 本文计算了不同 RH 下 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 的浓度变化, 结果表明当 RH 在 70% ~ 80% 时对应的 NO_3^- 和 NH_4^+ 浓度相对于 RH 在 20% ~ 30% 时分别增加 $16.1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ($0.26 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$) 和 $4.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ($0.25 \mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$), SO_4^{2-} 变化不显著.

2.4 复合型污染过程中 NH_4NO_3 的形成机制研究

由图 5(d) 可知, 整个 CASE2 期间以及 CASE1 后期的 RH 高于 NH_4NO_3 的 DRH (62%), 因此 CASE2 以式(8)反应为主, 而 CASE1 前期以式(7)反应为主, 后期以式(8)反应为主. 为进一步明确 CASE1、CASE2 中 NO_3^- 的不同形成途径对 NO_3^- 浓度的影响, 本文计算了观测得到的 $\xi_{\text{NH}_3} \times \xi_{\text{HNO}_3}$ 与理论结果的 $\xi_{\text{NH}_3} \times \xi_{\text{HNO}_3}$ 差值[当观测值大于理论值, 反应式(7)、式(8)向正方向进行], 以及 $\text{UV} \times \text{NO}_2$ (表征白天气态 HNO_3 的光化学产生速率)^[8], 结果

如图 7 所示, 其中灰色表示理论结果小于观测结果, 红色反之; 正斜线表示 RH 大于潮解相对湿度, 反斜线反之. 从图 5 可知, 当 RH 小于潮解相对湿度时, 观测得到的 HNO_3 和 NH_3 的分压之积均小于理论结果(灰色), 这表明即使白天 R1 能产生较高浓度的 $\text{HNO}_3(\text{g})$ [图 7(b)], 仍不能使反应式(7)向正方向进行. 反之, 当 RH 大于潮解相对湿度时, HNO_3 和 NH_3 的理论分压积(蓝色实线)显著低于相对湿度较低时对应的分压积(绿色实线), 这表明相对湿度升高, 可以引起理论分压积的显著降低, 即使不能观测到很高浓度的 HNO_3 , 也会有一定浓度的 NO_3^- 生成[图 7(b), CASE2].

对比两次个例发现, CASE1 前夕, UV 辐射较强[图 5(b)], HNO_3 具有较高的生成能力, HNO_3 的浓度白天较高, 能够为后期 NH_4NO_3 的形成提供充足的前体物. 6 月 14 日 19:00 至 6 月 15 日 09:00, NO_3^- 浓度也存在显著升高趋势, 此时相对湿度较高, 同时对应着 $\xi_{\text{NH}_3} \times \xi_{\text{HNO}_3}$ 的观测值大于理论值[式(8)], 随后 RH 下降, 低于 DRH^* , NH_4NO_3 以固体形式析出, 停留在气溶胶表面, 使式(7)向反方向移动, NO_3^- 浓度呈下降的趋势. 在 CASE2 中, 6 月 29 日 19:00 至 6 月 30 日 06:00, NO_3^- 浓度迅速升高, 最大可超过 $80 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 也对应着 $\xi_{\text{NH}_3} \times \xi_{\text{HNO}_3}$ 的观

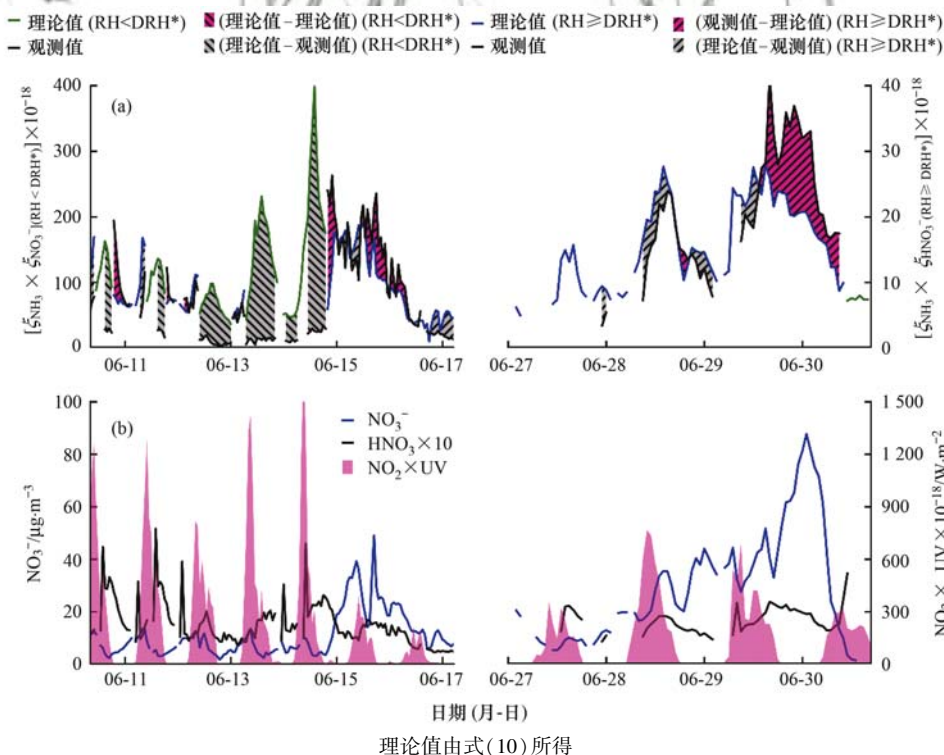


图 7 CASE1 和 CASE2 中、 NO_2 UV 及 NO_3^- 、 HNO_3 浓度的变化趋势

Fig. 7 Time series of, NO_2 UV, NO_3^- and HNO_3 in different cases

测值大于理论值. 这表明式(8)在两次个例中对 NO_3^- 浓度的升高都有着不可或缺的作用. 综上可知, 使用 $\xi_{\text{NH}_3} \times \xi_{\text{HNO}_3}$ 的观测值与不同相态下的理论值进行比对, 可以定性评估 NO_3^- 的变化方向.

2.5 CASE1 和 CASE2 污染物来源差异

为探讨 2014 年 6 月南京地区 CASE1、CASE2 两次污染形成过程的成因, 本文使用 HYSPLIT 模型对南京地区污染时期进行后向轨迹分析. 从图 5(c) 可知, CASE1 的平均风速大于 CASE2, 因此其污染物的来源可能存在一定的差异. 本文利用 HYSPLIT 后向轨迹模型对 CASE1 和 CASE2 中的污染来源进行分析. 图 8 显示了 100、380 和 800 m 南京上空 CASE1 和 CASE2 两次个例的污染物输送轨

迹图. 时间分别为 2016 年 6 月 15 日 04:00 和 2016 年 6 月 30 日 04:00 (污染物浓度最高的时刻), 时长均为前 72 h. 两次个例中气团的来向与图 3(c) 中得到的风向一致, 说明结果可信. 在 100 m (红色) 和 380 m (蓝色) 高度处 CASE2 的气团路径明显近于 CASE1 的气团路径, 主要集中在南京和上海之间, 结合图 5(c) 中 CASE2 的风速整体较小可知, CASE2 主要是由局地累积形成. 而 CASE1, 前期处于低压的边缘, 风速较小, 随着倒槽的形成, 移向东北, 南京地区的风速开始增大, 地面风速可达 $3 \sim 4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 其 100 m 和 380 m 上的气团路径相对较长, 说明来自东南方向的气团可能对 CASE1 中南京地区污染的形成产生一定影响.

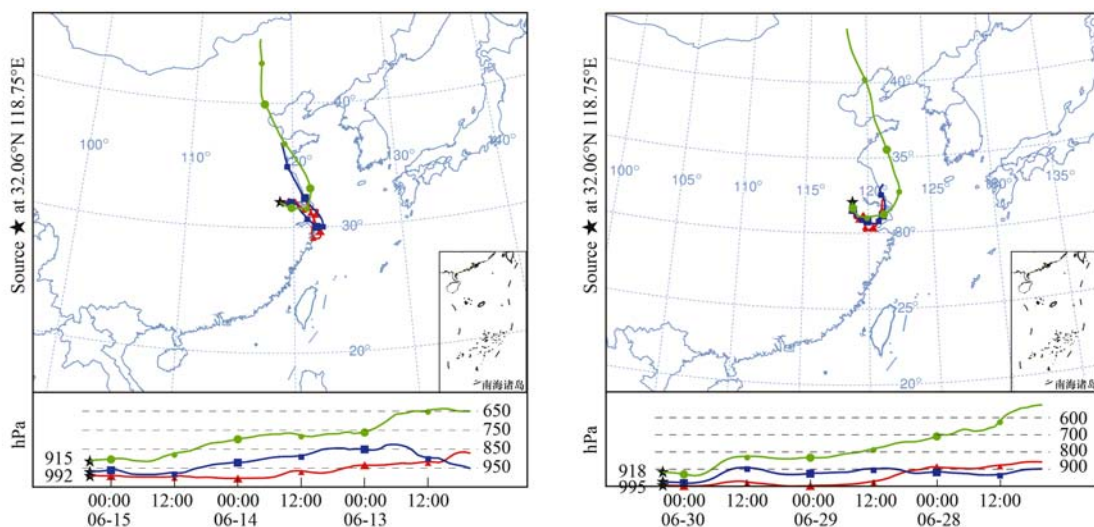


图 8 HYSPLIT 后向轨迹分析

Fig. 8 Analysis of HYSPLIT backward trajectories

3 结论

(1) CASE1 受台风相对位置的影响, 前期相对湿度低, 后期高; CASE2 受 850 hPa 北部槽线和南部切边线的影响, 相对湿度一直处于较高的水平.

(2) 二次无机盐 SNA 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中的占比随 RH 的增大而增大, 呈现一个近线性关系; 在 SNA 组分中, NO_3^- 随 RH 的增大而增大最为显著, 最高可增大 6 倍.

(3) CASE1 和 CASE2 两次污染个例中, 除 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度较高外, O_3 浓度均处在较高的水平; 受 RH 的影响, 两次个例中 SNA 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中的占比差异显著, 其中 NO_3^- 的差异最为显著.

(4) 当 RH 大于污染物的共同潮解相对湿度 DRH^* 时, 平衡时 $\xi_{\text{NH}_3} \times \xi_{\text{HNO}_3}$ 显著下降, 利于 $\text{HNO}_3(\text{g})$ 和 $\text{NH}_3(\text{g})$ 向 NO_3^- 的转化; 此外, 不同相态下

$\xi_{\text{NH}_3} \times \xi_{\text{HNO}_3}$ 的观测和理论值的相对关系, 能很好地表征 NO_3^- 的浓度变化趋势.

参考文献:

- [1] 江苏环境保护厅. 环境状况年度公报 [EB/OL]. <http://www.jshb.gov.cn/jshbw/hbzl/ndhjzkgb/>.
- [2] Takegawa N, Miyakawa T, Kuwata M, *et al.* Variability of submicron aerosol observed at a rural site in Beijing in the summer of 2006 [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2009, **114**(D2): D00G05.
- [3] Zhang Y H, Su H, Zhong L J, *et al.* Regional ozone pollution and observation-based approach for analyzing ozone-precursor relationship during the PRIDE-PRD2004 campaign [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(25): 6203-6218.
- [4] Wang G, Zhang R, Gomez M E, *et al.* Persistent sulfate formation from London fog to Chinese haze [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2016, **113**(48): 13630-13635.
- [5] Tie X X, Brasseur G, Emmons L, *et al.* Effects of aerosols on tropospheric oxidants: a global model study [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2001, **106**(D19): 22931-

- 22964.
- [6] Tie X X, Madronich S, Walters S, *et al.* Assessment of the global impact of aerosols on tropospheric oxidants[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2005, **110** (D3): D03204.
- [7] Li J, Wang Z, Wang X, *et al.* Impacts of aerosols on summertime tropospheric photolysis frequencies and photochemistry over central Eastern China [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(10): 1817-1829.
- [8] Seinfeld J H, Pandis S N. *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*[M]. New York: Wiley, 2006. 306-483.
- [9] Jacob D J. Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone[J]. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**: 2131-2159.
- [10] Deng J J, Wang T J, Liu L, *et al.* Modeling heterogeneous chemical processes on aerosol surface[J]. *Particuology*, 2010, **8** (4): 308-318.
- [11] 朱彤, 尚静, 赵德峰. 大气复合污染及灰霾形成中非均相化学过程的作用[J]. *中国科学: 化学*, 2010, **40**(12): 1731-1740.
- Zhu T, Shang J, Zhao D F. The roles of heterogeneous chemical processes in the formation of an air pollution complex and gray haze[J]. *Science China Chemistry*, 2011, **54**(1): 145-153.
- [12] Ge X L, Zhang Q, Sun Y L, *et al.* Effect of aqueous-phase processing on aerosol chemistry and size distributions in Fresno, California, during wintertime [J]. *Environmental Chemistry*, 2012, **9**(3): 221-235.
- [13] Zhang X L, Liu J M, Parker E T, *et al.* On the gas-particle partitioning of soluble organic aerosol in two urban atmospheres with contrasting emissions; 1. Bulk water-soluble organic carbon [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2011, **117** (D21): D00V16.
- [14] Sun Y L, Wang Z F, Fu P Q, *et al.* The impact of relative humidity on aerosol composition and evolution processes during wintertime in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **77**: 927-934.
- [15] Sun Y L, Zhang Q, Schwab J J, *et al.* A case study of aerosol processing and evolution in summer in New York City [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11** (24): 25751-25784.
- [16] Sun Y L, Zhang Q, Schwab J J, *et al.* Characterization of the sources and processes of organic and inorganic aerosols in New York city with a high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometer[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11** (4): 1581-1602.
- [17] Ge B Z, Sun Y L, Liu Y, *et al.* Nitrogen dioxide measurement by cavity attenuated phase shift spectroscopy (CAPS) and implications in ozone production efficiency and nitrate formation in Beijing, China [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2013, **118**(16): 9499-9509.
- [18] 葛顺, 汤莉莉, 秦玮, 等. 南京地区秋季灰霾天气特征及其水溶性离子分析[J]. *环境科学与技术*, 2015, **38**(2): 99-104.
- Ge S, Tang L L, Qin W, *et al.* Characteristics analysis of haze and water-soluble ion in Nanjing in autumn[J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **38**(2): 99-104.
- [19] Chan C K, Flagan R C, Seinfeld J H. Water activities of $\text{NH}_4\text{NO}_3/(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ solutions[J]. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1992, **26**(9): 1661-1673.
- [20] Hamer W J, Wu Y C. Osmotic coefficients and mean activity coefficients of uni-univalent Electrolytes in Water at 25°C [J]. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 1972, **1**(4): 1047-1100.
- [21] Stokes R H, Robinson R A. Interactions in aqueous nonelectrolyte solutions. I. Solute-solvent equilibria [J]. *The Journal of Physical Chemistry*, 1966, **70**(7): 2126-2131.
- [22] Fountoukis C, Nenes A. ISORROPIA II: a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for $\text{K}^+ - \text{Ca}^{2+} - \text{Mg}^{2+} - \text{NH}_4^+ - \text{Na}^+ - \text{SO}_4^{2-} - \text{NO}_3^- - \text{Cl}^- - \text{H}_2\text{O}$ aerosols [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2007, **7**(17): 4639-4659.
- [23] 周瑶瑶, 马嫣, 郑军, 等. 南京北郊冬季霾天 $\text{PM}_{2.5}$ 水溶性离子的污染特征与消光作用研究[J]. *环境科学*, 2015, **36** (6): 1926-1934.
- Zhou Y Y, Ma Y, Zheng J, *et al.* Pollution characteristics and light extinction effects of water-soluble ions in $\text{PM}_{2.5}$ during winter hazy days at north suburban Nanjing[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(6): 1926-1934.
- [24] 银燕, 童尧青, 魏玉香, 等. 南京市大气细颗粒物化学成分分析[J]. *大气科学学报*, 2009, **32**(6): 723-733.
- Yin Y, Tong Y Q, Wei Y X, *et al.* The analysis of chemistry composition of fine-mode particles in Nanjing[J]. *Transactions of Atmospheric Sciences*, 2009, **32**(6): 723-733.
- [25] Elminir H K. Dependence of urban air pollutants on meteorology [J]. *Science of the Total Environment*, 2005, **350**(1-3): 225-237.
- [26] Pearce J L, Beringer J, Nicholls N, *et al.* Quantifying the influence of local meteorology on air quality using generalized additive models[J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(6): 1328-1336.
- [27] 高怡, 张美根. 2013 年 1 月华北地区重雾霾过程及其成因的模拟分析[J]. *气候与环境研究*, 2014, **19**(2): 140-152.
- Gao Y, Zhang M G. Numerical simulation of a heavy fog-haze episode over the North China plain in January 2013[J]. *Climatic and Environmental Research*, 2014, **19**(2): 140-152.

CONTENTS

Emission Characteristics of Vehicles from National Roads and Provincial Roads in China	WANG Ren-jie, WANG Kun, ZHANG Fan, <i>et al.</i> (3553)
Impact of Gustly Northwesterly Winds on Biological Particles in Winter in Beijing	YAN Wei-zhuo, WANG Bu-ying, Oscar Fajardo Montana, <i>et al.</i> (3561)
Characteristics of Particulate Matter and Carbonaceous Species in Ambient Air at Different Air Quality Levels	FANG Xiao-zhen, WU Lin, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (3569)
Distribution and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particulate Matter and Dust	WANG Yong-xiao, CAO Hong-ying, DENG Ya-jia, <i>et al.</i> (3575)
Observational Study of Air Pollution Complex in Nanjing in June 2014	HAO Jian-qi, GE Bao-zhu, WANG Zi-fa, <i>et al.</i> (3585)
Distribution Characteristics of Air Pollutants and Aerosol Chemical Components Under Different Weather Conditions in Jiaxing	WANG Hong-lei, SHEN Li-juan, TANG Qian, <i>et al.</i> (3594)
Observations of Reactive Nitrogen and Sulfur Compounds During Haze Episodes Using a Demuder-based System	TIAN Shi-li, LIU Xue-jun, PAN Yue-peng, <i>et al.</i> (3605)
Analysis of Anthropogenic Reactive Nitrogen Emissions and Its Features on a Prefecture-level City in Fujian Province	ZHANG Qian-hu, GAO Bing, HUANG Wei, <i>et al.</i> (3610)
Levels, Sources, and Health Risk Assessments of Heavy Metals in Indoor Dust in a College in the Pearl River Delta	CAI Yun-mei, HUANG Han-shu, REN Lu-lu, <i>et al.</i> (3620)
Influence of Noble Metal and Promoter Capacity in CDPF on Particulate Matter Emissions of Diesel Bus	TAN Pi-qiang, ZHONG Yi-mei, ZHENG Yuan-fei, <i>et al.</i> (3628)
Spatial Distribution, Source and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in the Coastal Sediments of Northern Dongying City	LIU Qun-qun, MENG Fan-ping, WANG Fei-fei, <i>et al.</i> (3635)
Remote Sensing of Chlorophyll-a Concentrations in Lake Hongze Using Long Time Series MERIS Observations	LIU Ge, LI Yun-mei, LÜ Heng, <i>et al.</i> (3645)
Analysis of Spatial Variability of Water Quality and Pollution Sources in Lihe River Watershed, Taihu Lake Basin	LIAN Hui-shu, LIU Hong-bin, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (3657)
Distribution of Different Phosphorus Species in Water and Sediments from Gaocun to Lijin Reaches of the Yellow River	ZHAO Tun, JIA Yan-xiang, JIANG Bing-qi, <i>et al.</i> (3666)
Characterization of Phosphorus Fractions in the Soil of Water-Level-Fluctuation Zone and Unflooded Bankside in Pengxi River, Three Gorges Reservoir	 HUANG Jun-jie, WANG Chao, FANG Bo, <i>et al.</i> (3673)
Distribution of <i>n</i> -alkanes from Lake Wanghu Sediments in Relation to Environmental Changes	SHEN Bei-bei, WU Jing-lu, ZENG Hai-ao, <i>et al.</i> (3682)
Hydrological Performance Assessment of Permeable Parking Lots in High Water Areas	JIN Jian-rong, LI Tian, WANG Sheng-si, <i>et al.</i> (3689)
Analysis of the Characteristics of Groundwater Quality in a Typical Vegetable Field, Northern China	YU Jing, YU Min-da, LAN Yan, <i>et al.</i> (3696)
Composition, Evolution, and Complexation of Dissolved Organic Matter with Heavy Metals in Landfills	XIAO Xiao, HE Xiao-song, XI Bei-dou, <i>et al.</i> (3705)
Correlations Between Substrate Structure and Microbial Community in Subsurface Flow Constructed Wetlands	LI Zhen-ling, DING Yan-li, BAI Shao-yuan, <i>et al.</i> (3713)
Impact of Talc Ore Mining on Periphyton Community Structure and Water Environment	ZANG Xiao-miao, ZHANG Yuan, LIN Jia-ning, <i>et al.</i> (3721)
Physiological Characteristics and Nitrogen and Phosphorus Uptake of <i>Myriophyllum aquaticum</i> Under High Ammonium Conditions	LIU Shao-bo, RAN Bin, ZENG Guan-jun, <i>et al.</i> (3731)
Removal of Algal Organic Matter and Control of Disinfection By-products by Powder Activated Carbon	MIAO Yu, ZHAI Hong-yan, YU Shan-shan, <i>et al.</i> (3738)
Preparation and Pb ²⁺ Electrosorption Characteristics of Graphene Hydrogels Electrode	WANG Yao, JI Qing-hua, LI Yong-feng, <i>et al.</i> (3747)
Influence of Current Densities on Mineralization of Indole by BDD Electrode	ZHANG Jia-wei, WANG Ting, ZHENG Tong, <i>et al.</i> (3755)
Mechanism of Photochemical Degradation of MC-LR by Pyrite	ZHOU Wei, FANG Yan-fen, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (3762)
Enhanced Treatment of Printing and Dyeing Wastewater Using H ₂ O ₂ -Biochemical Method	YUE Xiu, TANG Jia-li, YU Guang-ping, <i>et al.</i> (3769)
Effects of Influent C/N Ratios on Denitrifying Phosphorus Removal Performance Based on ABR-MBR Combined Process	WU Peng, CHENG Chao-yang, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (3781)
Start-up of a High Performance Nitrosation Reactor Through Continuous Growth of Aerobic Granular Sludge	GAO Jun-jun, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (3787)
Activated Sludge Mineralization and Solutions in the Process of Zero-Valent Iron Autotrophic Denitrification	ZHANG Ning-bo, LI Xiang, HUANG Yong, <i>et al.</i> (3793)
Analysis of Respirogram Characteristics of Filamentous Bulking Caused by Low Dissolved Oxygen	MA Zhi-bo, LI Zhi-hua, YANG Cheng-jian, <i>et al.</i> (3801)
Aerobic Degradation and Microbial Community Succession of Coking Wastewater with Municipal Sludge	LIU Guo-xin, WU Hai-zhen, SUN Sheng-li, <i>et al.</i> (3807)
Rapid Culture, Microbial Community Structure, and Diversity of High-Efficiency Denitrifying Bacteria	MENG Ting, YANG Hong (3816)
Abundance of Cell-associated and Cell-free Antibiotic Resistance Genes in Two Wastewater Treatment Systems	ZHANG Yan, CHEN Lü-jun, XIE Hui, <i>et al.</i> (3823)
Effect of Biochar on CH ₄ and N ₂ O Emissions from Lou Soil	ZHOU Feng, XU Chen-yang, WANG Yue-ling, <i>et al.</i> (3831)
Spatial Variability of C-to-N Ratio of Farmland Soil in Jiangxi Province	JIANG Ye-feng, GUO Xi, SUN Kai, <i>et al.</i> (3840)
Influence of Calcium Carbonate and Biochar Addition on Soil Nitrogen Retention in Acidified Vegetable Soil	YU Ying-liang, YANG Lin-zhang, Alfred Oduor Odindo, <i>et al.</i> (3451)
Comparison of Soil Hydraulic Characteristics Under the Conditions of Long-term Land Preparation and Natural Slope in Longtan Catchment of the Loess Hilly Region	 FENG Tian-jiao, WEI Wei, CHEN Li-ding, <i>et al.</i> (3860)
Effects of Organic Carbon Content on the Residue and Migration of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Soil Profiles	 FEI Jia-jia, ZHANG Zhi-huan, WAN Tian-tian, <i>et al.</i> (3871)
Major Factors Influencing the Cd Content and Seasonal Dynamics in Different Land Cover Soils in a Typical Acid Rain Region	LIU Xiao-li, ZENG Zhao-xia, TIE Bai-qing, <i>et al.</i> (3882)
Application Potential and Assessment of Metallurgical Contaminated Soil After Remediation in Tongguan of Shaanxi	WANG Jiao, XIAO Ran, LI Rong-hua, <i>et al.</i> (3888)
Effects and Mechanisms of In-situ Cement Solidification/Stabilization on a Pb-, Zn-, and Cd-Contaminated Site at Baiyin, China	LÜ Hao-yang, FEI Yang, WANG Ai-qin, <i>et al.</i> (3897)
Concentrations and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Soils and Vegetables influenced by Facility Cultivation	 JIN Xiao-pei, JIA Jin-pu, BI Chun-juan, <i>et al.</i> (3907)
Effects of Arbuscular Mycorrhizal Fungi on the Growth and Uptake of La and Pb by Maize Grown in La and Pb-Contaminated Soil	CHANG Qing, GUO Wei, PAN Liang, <i>et al.</i> (3915)
Effects of Straw Incorporation on Cadmium Accumulation and Subcellular Distribution in Rice	DUAN Gui-lan, WANG Fang, CEN Kuang, <i>et al.</i> (3927)
Redox Transformation of Arsenic and Antimony in Soils Mediated by <i>Pantoea</i> sp. IMH	 ZHANG Lin, LU Jin-suo (3937)
Adsorption Characteristics of Biochar on Heavy Metals (Pb and Zn) in Soil	WANG Hong, XIA Wen, LU Ping, <i>et al.</i> (3944)
Characteristics of <i>Enteromorpha prolifera</i> Biochars and Their Adsorption Performance and Mechanisms for Cr(VI)	CHEN You-yuan, HUI Hong-xia, LU Shuang, <i>et al.</i> (3953)
External Phosphorus Adsorption and Immobility with the Addition of Ignited Water Purification Sludge	YU Sheng-nan, LI Yong, LI Da-peng, <i>et al.</i> (3962)
Preparation of Adsorption Ceramsite Derived from Sludge Biochar	LI Jie, PAN Lan-jia, YU Guang-wei, <i>et al.</i> (3970)
Construction of Graphitic Carbon Nitride-Bismuth Oxyiodide Layered Heterostructures and Their Photocatalytic Antibacterial Performance	 HUANG Jian-hui, LIN Wen-ting, XIE Li-yan, <i>et al.</i> (3979)