

方知库  
Eco-Environmental  
Knowledge Web

# 环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV  
HUANJING KEXUE

- 主办 中国科学院生态环境研究中心
- 出版 科学出版社



2020

Vol.41 No.3  
第41卷 第3期

目次

长江经济带 PM<sub>2.5</sub> 分布格局演变及其影响因素 ..... 黄小刚, 赵景波, 曹军骥, 辛未冬 (1013)

中国东海近海岛屿冬季与夏季气溶胶中水溶性离子化学组分特征及来源解析 ..... 方言, 曹芳, 范美益, 章炎麟 (1025)

阳泉市秋冬季 PM<sub>2.5</sub> 化学组分及来源分析 ..... 王成, 闫雨龙, 谢凯, 李如梅, 徐扬, 彭林 (1036)

泰安市夏季 PM<sub>2.5</sub> 中正构烷烃和糖类化合物的化学组成及其来源 ..... 衣雅男, 侯战方, 杨千才, 刘晓迪, 李政, 孟静静, 燕丽, 魏本杰, 伏梦璇 (1045)

黄山秋季大气颗粒物理化特性 ..... 卞逸舒, 银燕, 王红磊, 陈魁 (1056)

北碚区气溶胶光学厚度特征及其与颗粒物浓度的相关性 ..... 曾唯, 郝庆菊, 赵仲婧, 熊维霞, 陈俊江, 辛金元, 江长胜 (1067)

淄博市重点工业行业 VOCs 排放特征 ..... 王雨燕, 王秀艳, 杜森, 白瑾丰, 杨文 (1078)

鄂州市大气 VOCs 污染特征及来源解析 ..... 付昱萌, 杨红刚, 卢民瑜, 曾颜, 邹迎新 (1085)

浙江省汽车整车制造业挥发性有机物产排污系数 ..... 滕富华, 杨忠平, 董事壁, 付超, 缪孝平, 顾震宇 (1093)

基于工艺过程的金属包装业 VOCs 污染特征 ..... 王迪, 聂磊, 赵文娟, 张玮琦, 党鸿雁, 邵霞, 张新民 (1099)

薪柴和经济作物秸秆燃烧 VOCs 排放特征 ..... 牛真真, 孔少飞, 严沁, 郑淑睿, 郑煌, 曾昕, 姚立全, 吴剑, 张颖, 吴方琪, 程溢, 覃思, 刘坚, 甄莹莹, 祁士华 (1107)

精细化工园区工艺过程 VOCs 产生量核算方法 ..... 叶茵韵, 田金平, 陈吕军 (1116)

2017 年春季常州 HONO 观测及对大气氧化能力影响的评估 ..... 施晓雯, 戈逸峰, 张玉婵, 马嫣, 郑军 (1123)

中国工程机械使用特征及其尾气排放趋势 ..... 庞莉莉, 张凯山, 马帅, 王帆 (1132)

京津冀机场群飞机 LTO 大气污染物排放清单 ..... 韩博, 孔魏凯, 姚婷玮, 王愚 (1143)

在用汽油和柴油车排放颗粒物的粒径分布特征实测 ..... 王瑞宁, 胡馨遥, 任洪娟, 马冬, 徐冲, 赵奎乾, 王孟昊, 徐为标, 安静宇, 黄成 (1151)

参数选取对畜禽养殖业大气气排放的影响: 以长三角地区为例 ..... 张琪, 黄凌, 殷可佳, 王倩, 李红丽, 王杨君, 王军, 陈勇航, 李莉 (1158)

乌海市煤矿区及周边春季降尘污染特征及来源分析 ..... 吴红璇, 史常青, 张艳, 赵廷宁, 胡平, 刘韵, 陈童 (1167)

长江中下游地区丰水期河、湖水氢氧同位素组成特征 ..... 李静, 吴华武, 周永强, 赵中华, 王晓龙, 蔡永久, 贺斌, 陈雯, 孙伟 (1176)

伊洛河流域河水来源及水化学组成控制因素 ..... 刘松韬, 张东, 李玉红, 杨锦媚, 邹耀, 王永涛, 黄兴宇, 张忠义, 杨伟, 贾保军 (1184)

城镇化进程中新疆塔城盆地浅层地下水化学演变特征及成因 ..... 吕晓立, 刘景涛, 韩占涛, 周冰, 朱亮, 陈坚 (1197)

基于 Sentinel-2 MSI 影像的河湖系统水体悬浮物空间分异遥感监测: 以安徽省升金湖与连接长江段为例 ..... 王行行, 王杰, 崔玉环 (1207)

黄土高原高浑浊水体 CDOM 光学特性及影响因素 ..... 梁晓文, 邵田田, 王涛 (1217)

人工强制混合充氧及诱导自然混合对水源水库水质改善效果分析 ..... 温成成, 黄廷林, 李楠, 张海涵, 林子深, 李衍庆, 杨尚业, 董亚军 (1227)

滤速与水质对低温含铁锰氨地下水中氨去除的影响 ..... 张杰, 梅宁, 刘孟浩, 叶雪松, 李冬 (1236)

太湖梅梁湾浮游动物群落结构长期变化特征 (1997 ~ 2017 年) ..... 杨佳, 周健, 秦伯强, 权秋梅, 黎云祥 (1246)

汤旺河水生硅藻群落及其与环境因子的关系 ..... 薛浩, 王业耀, 孟凡生, 郑丙辉, 张铃松, 程佩璋 (1256)

盐龙湖水源生态净化系统 FG 和 MBFG 演替特征及水质响应性评价 ..... 王莲, 李璇, 马卫星, 邹立航, 赵强强, 丁成, 吴向阳 (1265)

三峡库区石盘丘小流域氮磷输出形态及流失通量 ..... 陈仕奇, 龙翼, 严冬春, 高明, 黎嘉成, 徐国鑫, 黄容 (1276)

化肥减量配施生物炭对紫色土坡耕地磷流失的影响 ..... 罗东海, 王子芳, 龙翼, 严冬春, 徐国鑫, 李娇, 高明 (1286)

利用铁改性方解石作为活性覆盖材料控制水体内源磷的释放 ..... 柏晓云, 林建伟, 詹艳慧, 常明玥, 辛慧敏, 吴俊麟 (1296)

茶渣生物炭制备及其对溶液中四环素的去除特性 ..... 范世锁, 刘文浦, 王锦涛, 胡红梅, 杨伊宁, 周娜 (1308)

3 种典型多孔高温改性固废材料对磺胺二甲嘧啶的吸附特性 ..... 王静, 朱晓丽, 韩自玉, 胡健, 秦之瑞, 焦文涛 (1319)

新制和老化微塑料对多溴联苯醚的吸附 ..... 徐鹏程, 郭健, 马东, 葛蔚, 周震峰, 柴超 (1329)

三峡库区支流汝溪河沉积物重金属空间分布及生态风险 ..... 方志青, 王永敏, 王训, 谢德体, 王定勇 (1338)

固城湖及出入河道表层水体、沉积物和鱼体中有机氯农药分布及风险评估 ..... 阙可聪, 谷孝涛, 李红敏, 陈辉辉, 毛志刚, 曾庆飞 (1346)

衡水湖沉积物中典型持久性有机污染物污染特征与风险评估 ..... 张嘉雯, 魏健, 吕一凡, 段亮, 刘利, 王俭, 孟淑锦 (1357)

北京某污水处理厂及接纳水体中典型有机磷酸酯的污染特征和风险评估 ..... 张振飞, 吕佳佩, 裴莹莹, 王春英, 郭昌胜, 徐建 (1368)

基于短程反硝化厌氧氨氧化的低碳源城市污水深度脱氮特性 ..... 马斌, 许鑫鑫, 高茂鸿, 委燕, 彭永臻 (1377)

PD-DPR 系统处理城市污水与高硝酸盐废水实现稳定亚硝酸盐积累和磷去除的特性 ..... 王秋颖, 于德爽, 赵骥, 王晓霞, 袁梦飞, 巩秀珍, 楚光玉, 何彤晖 (1384)

中试 MBBR 反应器启动 CANON 工艺及其短程硝化 ..... 付昆明, 杨宗玥, 廖敏辉, 靳怡然, 张晓航 (1393)

抗生素对耐药型反硝化菌反硝化过程及微生物群落结构的影响 ..... 代莎, 李彭, 彭五庆, 刘玉学, 王拯, 何义亮, 沈根祥, 胡双庆 (1401)

多次进水-曝气的好氧颗粒污泥系统实验 ..... 张杰, 王玉颖, 李冬, 刘志诚, 曹思雨 (1409)

剩余污泥碱性发酵产物对硝化过程及性能的影响 ..... 邱圣杰, 刘瑾瑾, 李夕耀, 彭永臻 (1418)

硫酸盐对污泥高级厌氧消化过程中甲基汞迁移转化的影响 ..... 何湘琳, 刘吉宝, 阴永光, 谭颖锋, 朱爱玲, 左壮, 高山, 解立平, 魏源送 (1425)

工业城市农田土壤重金属时空变异及来源解析 ..... 李艳玲, 卢一富, 陈卫平, 杨阳, 蔡斌 (1432)

耕地土壤重金属健康风险空间分布特征 ..... 姬超, 侯大伟, 李发志, 包广静, 邓爱萍, 沈红军, 孙华 (1440)

黄河三角洲盐碱土根际微环境的微生物多样性及理化性质分析 ..... 赵娇, 谢慧君, 张建 (1449)

不同土地利用方式对土壤细菌分子生态网络的影响 ..... 李冰, 李玉双, 魏建兵, 宋雪英, 史荣久, 侯永侠, 刘△瑶 (1456)

红壤丘陵区土壤有机碳组分对土地利用方式的响应特征 ..... 章晓芳, 郑生猛, 夏银行, 胡亚军, 苏以荣, 陈香碧 (1466)

有机肥与无机肥配施对潮土 N<sub>2</sub>O 排放的影响 ..... 孙赫阳, 万忠梅, 刘德燕, 廖霞, 丁维新 (1474)

冬小麦吸收重金属特征及与影响因素的定量关系 ..... 王怡雯, 芮玉奎, 李中阳, 苏德纯 (1482)

钙镁磷肥对石灰、海泡石组配修复镉污染稻田土壤的影响 ..... 鄢德梅, 郭朝晖, 黄凤莲, 冉洪珍, 张鹏 (1491)

桉树遗态磷灰石材料对铅污染土壤的钝化修复效应 ..... 方雅莉, 朱宗强, 赵宁宁, 朱义年, 李超, 张立浩 (1498)

外源亚精胺对 As<sup>5+</sup> 胁迫下水稻种子萌发和 As 吸收积累的影响 ..... 刘书锦, 黄益宗, 保琼莉, 黄永春, 张盛楠, 韩甘, 刘玉荣, 胡红青 (1505)

《环境科学》征订启事 (1024) 《环境科学》征稿简则 (1092) 信息 (1226, 1264, 1417)

## 黄山秋季大气颗粒物理化特性

卞逸舒, 银燕\*, 王红磊, 陈魁

(南京信息工程大学气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室, 南京 210044)

**摘要:** 为了研究华东背景地区大气单颗粒的理化特性, 利用单颗粒飞行时间质谱仪 (SPAMS) 于 2012 年 9 月 5 日至 10 月 28 日在黄山对大气颗粒物进行了观测, 并结合 Hysplit 后向轨迹模式探究了不同气团对颗粒物性质的影响. 结果表明, 黄山地区颗粒物可分为老化碳 (Aged-EC)、富钾 (K)、元素碳-有机碳混合物 (ECOC)、有机碳 (OC)、钠-钾混合物 (NaK)、元素碳 (EC)、元素碳-重金属混合物 (ECHM)、重金属 (HM)、矿物质 (Minerals) 共 9 类, 其中 Aged-EC 占比最高, K 其次, 且含碳颗粒物老化程度较为严重. 含碳颗粒物 Aged-EC、ECOC 和 OC 集中在积聚模态 ( $0.2 \sim 1.4 \mu\text{m}$ ), HM、NaK 和 Minerals 则集中于粗粒子模态 ( $> 1.4 \mu\text{m}$ ). 除 K、ECHM 和 ECOC 外, 较高风速下不利于颗粒物的累积; 相对湿度越高, 含碳颗粒物的占比越大, 而 K、OC、Minerals 和 NaK 的占比越小. 聚类分析结果表明, 采样时段内黄山地区主要受西北气团、海洋气团和局地气团影响. 周边地区的工业排放、燃煤等活动是 Aged-EC 的首要贡献源.

**关键词:** 单颗粒飞行时间质谱仪; 黄山; 粒径分布; 质谱特征; 后向轨迹

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)03-1056-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.201906185

## Physical and Chemical Characteristics of Atmospheric Particles in Autumn in Mt. Huangshan

BIAN Yi-shu, YIN Yan\*, WANG Hong-lei, CHEN Kui

(Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China)

**Abstract:** To study the physical and chemical characteristics of single-particle aerosols in the background area of east China, a single-particle time-of-flight mass spectrometer (SPAMS) was used to observe the atmospheric particles in Mt. Huangshan from September 5, 2012 to October 28, 2012 and explore the influence of different air masses on the types and proportions of particles in combination with the HYSPLIT backward trajectory model. The results showed that the particles in Mt. Huangshan area can be divided into nine categories: Aged-EC, K, ECOC, OC, NaK, EC, ECHM, HM, and Minerals. Aged-EC accounted for the highest proportion, followed by K, and the aging degree of carbon particles was critical. The carbon particles classified as Aged-EC, ECOC, and OC were concentrated in the accumulation mode ( $0.2\text{-}1.4 \mu\text{m}$ ), whereas HM, NaK, and Minerals were concentrated in the coarse particle mode ( $> 1.4 \mu\text{m}$ ). Apart from K, ECHM, and ECOC, higher wind speed was unfavorable to the accumulation of particles. The higher RH was, the higher the proportion of carbon particles was, while the proportions of K, OC, Minerals, and NaK were smaller. Cluster analysis results showed that the Mt. Huangshan area was mainly affected by northwest air mass, marine air mass, and local air mass. Industrial emissions and coal-burning activities in the surrounding areas were the primary contribution sources of Aged-EC.

**Key words:** single-particle time-of-flight mass spectrometer; Mt. Huangshan; size distribution; mass spectral characteristics; backward trajectory

大气颗粒物的污染效应取决于其化学组分、粒径分布和形成机制等理化性质<sup>[1~4]</sup>, 因此对颗粒物进行深入地了解、研究是非常有必要的<sup>[5,6]</sup>. 相比传统的离线采样技术, 在线气溶胶质谱仪因其具备高时间、空间分辨率等优点而广泛应用于气溶胶理化特性的研究<sup>[7,8]</sup>. Lawler 等<sup>[9]</sup> 利用热解吸化学电离质谱仪 (TDCIMS) 在芬兰西南部观测了新粒子生成事件; Robinson 等<sup>[10]</sup> 利用气溶胶质谱仪 (AMS) 在宾夕法尼亚州匹兹堡进行观测, 发现该地区的餐馆烹饪排放是重要污染源. 比起 TDCIMS 和 AMS 等整体测量仪器, 单颗粒在线气溶胶质谱仪可以更好地提供颗粒物特性信息<sup>[11,12]</sup>. Healy 等<sup>[13]</sup> 利用单颗粒质谱仪 (aerosol time-of-flight mass spectrometry, ATOFMS) 等仪器在巴黎一城市背景站观测时发现

ATOOFMS 测得的有机碳 EC、黑碳 BC 浓度与其它仪器的测量结果吻合度较好, 并根据 ATOOFMS 数据进一步细化了 EC 粒子的分类. Arndt 等<sup>[14]</sup> 利用 ATOOFMS 在地中海盆地观测, 结果表明 ATOOFMS 测得的  $\text{PM}_{2.5}$  数占  $\text{PM}_{10}$  总数目的 70%~90%, 主要为有机碳 EC 和富钾颗粒, 但 ATOOFMS 对沙尘的采集效率不高. SPAMS (single particle aerosol mass spectrometry) 作为新兴单颗粒质谱仪近年来也投入到国内外气溶胶观测研究中<sup>[15]</sup>, 研究结果显示 SPAMS 采集到的颗粒数与同期  $\text{PM}_{2.5}$  浓度数据相关

收稿日期: 2019-06-24; 修订日期: 2019-10-13

基金项目: 国家自然科学基金项目 (91644224, 41805096, 41575132)

作者简介: 卞逸舒 (1995~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气气溶胶, E-mail: lylobian@gmail.com

\* 通信作者, E-mail: yinyan@nuist.edu.cn

性很高<sup>[16,17]</sup>,一定程度上反映了大气污染状况. Hu 等<sup>[18]</sup>利用 SPAMS 在南京北郊监测雾、霾污染事件,发现霾过程中含碳颗粒物和 Na-K 粒子混有更多二次组分和酸. Chen 等<sup>[19]</sup>利用 SPAMS 研究了西安夏季气溶胶的化学组分和混合状态,发现高达 83% 的颗粒物来源于交通排放,且粒径越小的颗粒物酸性更强.

国内外对大气颗粒物的理化特性已开展了诸多研究,但是研究区域主要集中于城市地区,对高山和背景地区的颗粒物特性研究相对较少. 有学者在泰山、鹤山等高山站点对单颗粒进行了观测研究<sup>[20~23]</sup>,银燕等<sup>[24]</sup>在黄山也进行了一系列研究,如光学特性<sup>[25]</sup>、水溶性离子<sup>[26]</sup>、吸湿性<sup>[27]</sup>、雨滴谱<sup>[28]</sup>和新粒子生成<sup>[29,30]</sup>等,但对单颗粒的研究仍然存在不足. 黄山位于我国华东地区安徽省南部黄山市境内,作为高山地区,其高海拔和以旅游业为主的区域特征使它受到较小的人为污染影响,可以看作华东背景地区,对其进行观测研究有助于加深了解华东背景地区颗粒物的理化特性. 本研究利用 SPAMS 于 2012 年 9~10 月在黄山的连续观测数据,分析黄山秋季大气颗粒物的理化特性,结合气象资料探讨气象要素对颗粒物理化特性的影响,并通过后向轨迹模型分析不同气团下颗粒物性质的异同及潜在来源.

## 1 材料与方 法

### 1.1 采样地点和时间

本次实验的采样点位于黄山后坡的云谷山庄(30°12'N, 118°19'E),海拔高约 890 m,四周云雾缭绕,距黄山市中心 40 km 左右,周边地区没有明显的人为污染源<sup>[31]</sup>. 观测时间为 2012 年 9 月 5 日至 10 月 28 日.

### 1.2 仪器介绍及质控

本研究利用单颗粒飞行时间质谱仪(SPAMS, 广州禾信分析仪器有限公司)进行观测,它是基于国际领先的单颗粒气溶胶飞行时间质谱技术,具备高时间分辨率并可以实时在线检测颗粒物粒径信息的质谱分析设备. SPAMS 主要由三部分组成,分别是气雾剂入口的空气动力学透镜,双激光测径系统和双极飞行时间质谱仪. 大气中的颗粒物以约 75 mL·min<sup>-1</sup>的速率引入空气动力学透镜,以其为界面聚焦成准直粒子束进入真空系统,随后通过双激光测径系统测量颗粒物的空气动力学直径,并利用电离激光将颗粒物打击电离,产生的正负离子由双极飞行时间质谱仪接收检测得到颗粒物的化学组分<sup>[32]</sup>. SPAMS 的仪器质控分为粒径校准和质谱校

准,分别用于保证颗粒物粒径及质谱的准确性<sup>[15]</sup>.

### 1.3 数据处理

本实验共采集到 11 544 445 个颗粒物,打击率为 21.3%,其中有效数据(有正负离子质谱信息的颗粒物)共 1 885 361 个. 利用基于 MATLAB 平台的单颗粒质谱数据软件包 YAADA (Version 3. 2. 1) 对采集到的有效数据处理. 该软件包对颗粒物的分析采用聚类算法<sup>[15]</sup>,即自适应共振此算法神经网络分类算法(ART-2a),算法中参数设置为相似度 0.8,学习效率 0.05,迭代次数为 19,根据单个粒子的质谱和粒子的质量浓度相似度对其进行初步分类<sup>[33]</sup>,所有颗粒物被分为 4 305 类,随后人工合并为 9 类:老化碳(Aged-EC)、富钾(K)、有机碳和元素碳混合物(ECOC)、有机碳(OC)、钠-钾颗粒物(NaK)、元素碳(EC)、元素碳与重金属混合物(ECHM)、重金属(HM)和矿物质(Minerals).

### 1.4 后向轨迹

本文采用美国国家海洋和大气管理局(NOAA)的 HYSPLIT-4 (2018 年 4 月更新)输送和扩散模式. 该模式是一种欧拉和拉格朗日型相结合的计算模式,可以用于处理多种气象要素输入场、多种物理过程和不同类型污染物的排放源等. 本模式所用的气象资料来自美国国家环境预报中心(NCEP)提供的全球资料同化系统(GDAS)数据,轨迹起始点为云谷山庄(30°12'N, 118°19'E),后推 48 h. 考虑到观测点的海拔高度在 890 m 左右,将模式的模拟高度设置为 1 000 m,计算 2012 年 9 月 5 日至 10 月 28 日期间 6 h 间隔的聚类轨迹.

## 2 结果与讨论

### 2.1 观测概述

观测期间气象要素及 SPAMS 颗粒物数浓度变化如图 1 所示,时间分辨率为 0.5 h. 由于气象自动站的数据并未覆盖整个观测时段,所以图 1 中时间序列为 9 月 10 日至 10 月 16 日. 温度和湿度呈现明显的日变化,温度均值为 17.3℃,湿度均值为 72.2%,平均风速仅为 0.4 m·s<sup>-1</sup>,不利于污染物的扩散. 观测期间采样点主要受北风和西北风控制.

9 月有两次降水,根据国家气象局发布的降水强度等级表,9 月 12~13 日的降水可划分为大雨,此次大雨过程是高空槽东移加强、低空切变线东移南压及地面冷锋共同造成的<sup>[34]</sup>,9 月 21~22 日的降水划分为中雨. 降雨期间均以西南风为主导风向,两次降水期间湿度均值都高于 93%,大雨过程中平均温度和风速分别为 22.5℃和 0.56 m·s<sup>-1</sup>,中雨过

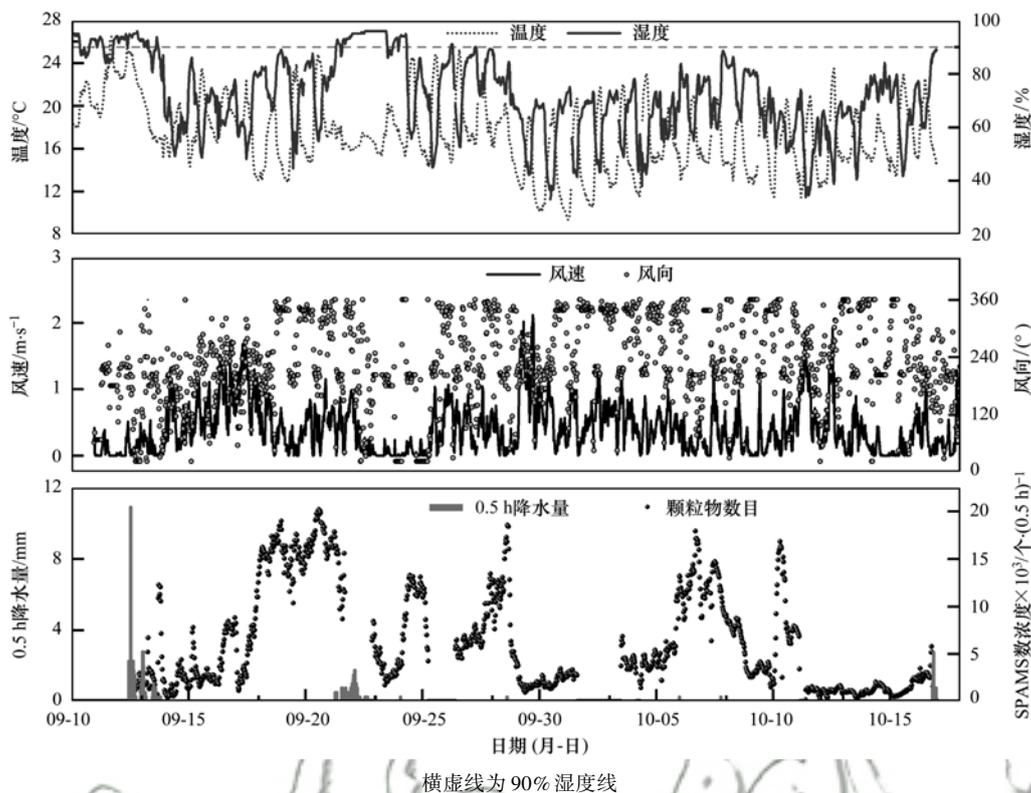


图1 观测期间气象要素及 SPAMS 颗粒物数浓度的 0.5 h 时间序列

Fig. 1 Temporal trend of meteorological parameters and counts of particles detected by SPAMS, half-hour time resolution

程中平均温度和风速分别为  $16.7^{\circ}\text{C}$  和  $0.38\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . 9月22日降水停止后直至9月23日,相对湿度仍保持95%以上,期间风速处于低值,均值仅为  $0.25\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,温度均值也较低,仅为  $16.6^{\circ}\text{C}$ ,推断该时段内出现了云雾过程.进入10月后,10月16日晚有一次降水过程,由于自动站数据不足,无法得知此次降水的时长及强度.

SPAMS 测得颗粒物数浓度在9月17日呈明显增长趋势,并在高值区 [ $>10^4\text{ 个}\cdot(0.5\text{ h})^{-1}$ ] 持续至9月21日,随后由于中雨过程,颗粒物被降水清除,数浓度开始波动减小.10月5日至10月7日也出现了数浓度高值现象,根据 Chen 等<sup>[31]</sup>的研究,该时段内黄山地区受来自长江三角洲工业区的气团控制,随气团输送而来的工业排放颗粒物是数浓度增长的重要原因.

## 2.2 颗粒物化学组成及质谱特征

根据颗粒物的谱图特征将它们分为表1中所示的9类,分别是重金属、无明显硝酸信号的老化碳、有明显硝酸信号的元素碳、有明显硝酸信号的有机碳、无明显硝酸信号的元素碳与有机碳混合物、无明显硝酸信号的元素碳与重金属混合物、有明显硝酸信号的钠-钾混合物、富钾颗粒物、矿物质以及其他类颗粒.老化碳占比最高,富钾其次,这与 Wang 等<sup>[21]</sup>在泰山和 Lin<sup>[35]</sup>等在南岭山脉的分类结果一致.

表1 颗粒物分类及占比

Table 1 Summary of classifications and proportions of each single particle class

颗粒物类别	颗粒物数目/个	颗粒物占比/%
老化碳	784 867	43.4
元素碳	91 004	5.0
元素碳-重金属混合物	6 418	0.4
有机碳	113 818	6.3
元素碳-有机碳混合物	164 954	9.1
重金属	87 936	4.9
矿物质	6 018	0.3
富钾	452 434	25.0
钠-钾	101 457	5.6
其他类	1 179	0.1

由图2可知,Aged-EC、EC、ECOC和ECHM谱图都存在大量碳簇 $\pm^{12n}\text{C}$ 的特征峰, $n$ 一般为 $1\sim 10$ <sup>[36]</sup>.EC谱图中有明显的 $\pm^{36}\text{C}_3$ 、 $\pm^{48}\text{C}_4$ 、 $\pm^{60}\text{C}_5$ 以及较弱的 $^{-46}\text{NO}_2^-$ 和 $^{-62}\text{NO}_3^-$ 信号,说明EC颗粒刚排放不久,较为新鲜.Aged-EC质谱图中除了一系列明显的碳簇信号峰之外,还有很强的 $^{39}\text{K}^+$ 和 $^{-97}\text{HSO}_4^-$ 硫酸盐信号,它主要源于机动车尾气、燃煤以及生物质燃烧排放等二次排放颗粒物<sup>[37]</sup>.ECHM仅占总颗粒数的0.4%,从图2(c)中可看出其谱图同时具备EC和HM的特征峰,如 $^{12}\text{C}$ 、 $\pm^{36}\text{C}_3$ 和 $\pm^{48}\text{C}_4$ 等碳簇峰,伴随着较强的 $^{56}\text{Fe}^+$ 峰,负谱图中还有明显的 $^{-97}\text{HSO}_4^-$ 硫酸盐信号.ECOC谱图有EC和OC两者

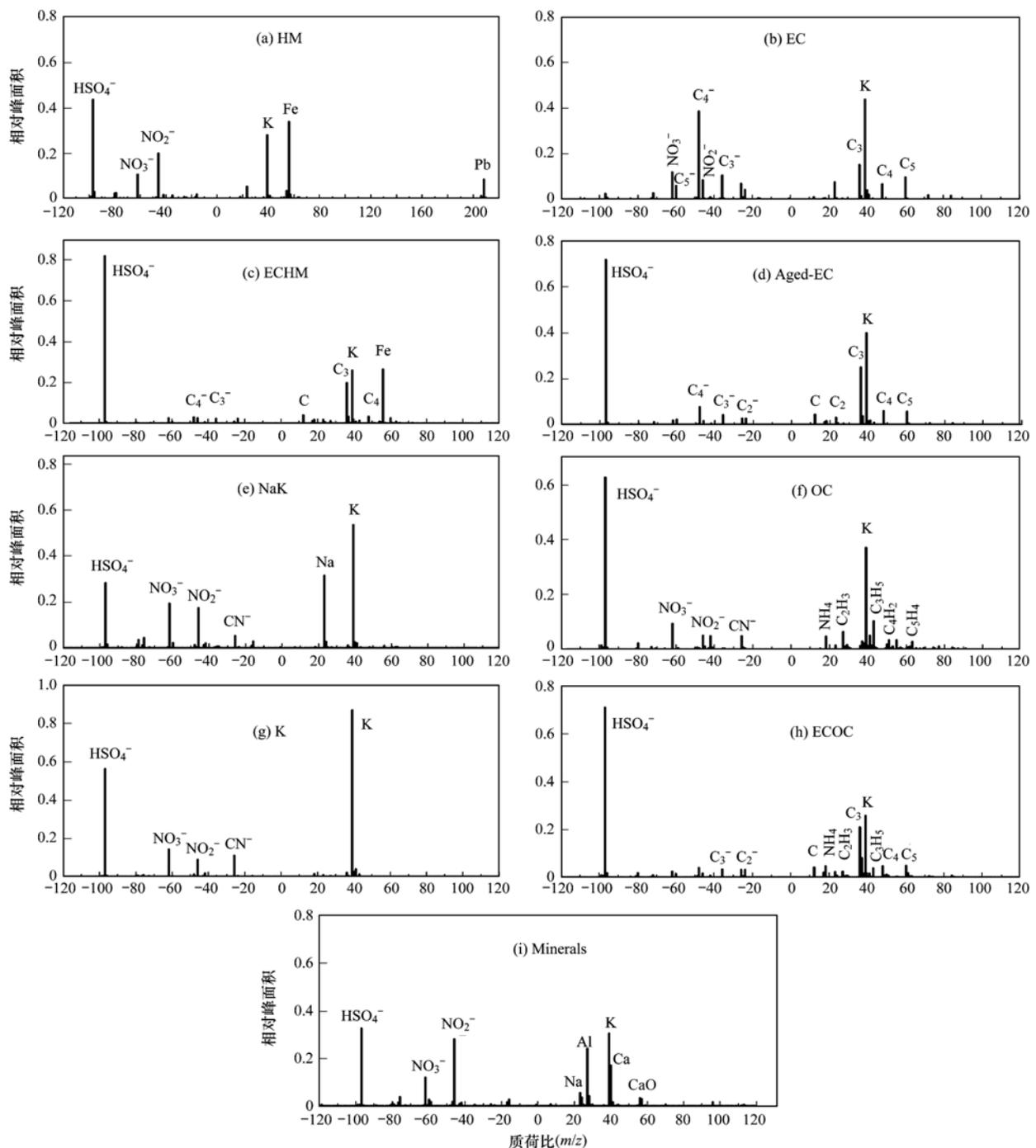


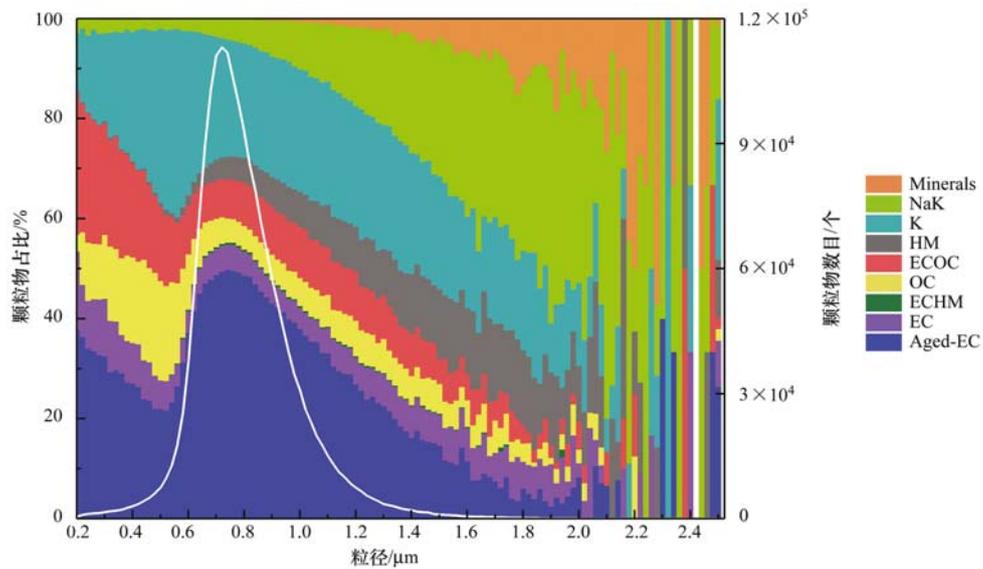
图2 采样期间各类颗粒物平均质谱图

Fig. 2 Mean mass spectrum of each single particle class during the sampling period

的特征峰,如 $^{12}\text{C}$ 、 $^{-24}\text{C}_2$ 、 $^{\pm 36}\text{C}_3$ 、 $^{48}\text{C}_4$ 和 $^{60}\text{C}_5$ 等碳簇峰,以及 $^{27}\text{C}_2\text{H}_3^+$ 、 $^{43}\text{C}_3\text{H}_5^+$ 等OC特征峰,负谱图中有明显的 $^{-97}\text{HSO}_4^-$ 硫酸盐信号,占总颗粒数的9.1%,主要来源于一次燃烧或挥发性有机物在EC上的凝结<sup>[22]</sup>。

值得注意的是,与EC谱图相比,Aged-EC、ECOC和ECHM谱图中都存在明显的硫酸盐信号,可以看出这三类颗粒物是EC在大气中经历老化过程后的二次颗粒物,且老化过程中都生成了硫酸盐.这与文献[18,38~40]中含碳颗粒物在大气过程中

更倾向于与硫酸盐混合的结论一致.这与南岭山脉的谱图特征较为相似,但与泰山有所不同<sup>[21]</sup>,后者超过28%的含碳颗粒物在老化过程中与硝酸盐进行了混合.对比三处采样点的周边环境可以发现,泰山受寺庙焚香和餐饮排放影响,人为污染相对较严重,而黄山和南岭山脉受人为污染影响较小,这可能是泰山颗粒物中混有更多硝酸盐成分的原因.结合表1可以发现,Aged-EC在总颗粒数中占比最高,达43.4%,ECOC和ECHM的占比分别为9.1%和0.4%.而EC仅占5%,表明黄山地区含碳颗粒物老



白线为总颗粒物的粒径分布

图 3 各类颗粒物的粒径分布及占比

Fig. 3 Size distributions and proportions of each single particle class

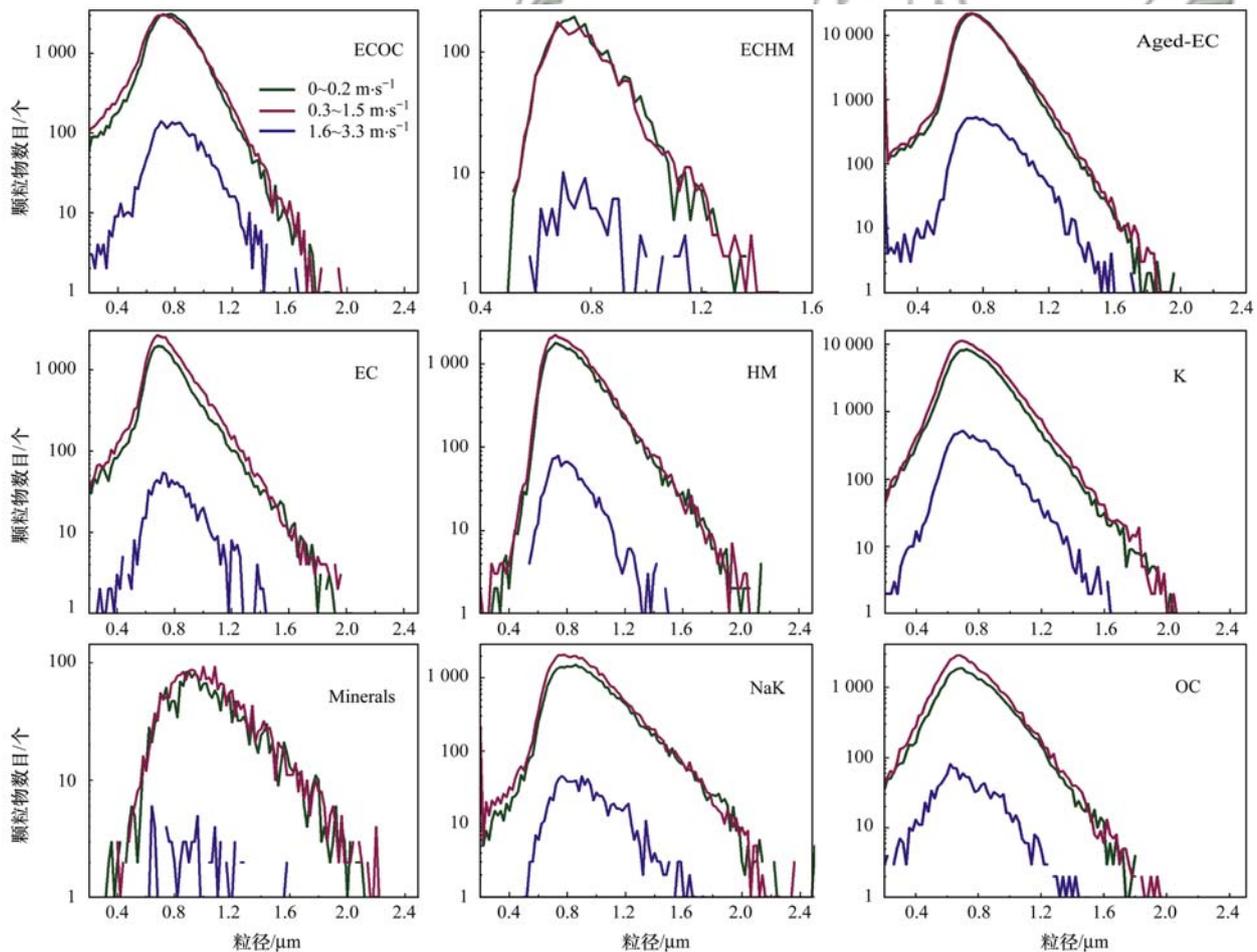


图 4 不同风速下的颗粒物粒径分布

Fig. 4 Size distribution of each single particle class in different types of wind speeds

化程度较为严重.

图 2 (f) 中, OC 正谱图有<sup>18</sup>NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、<sup>27</sup>C<sub>2</sub>H<sub>3</sub><sup>+</sup> 和 <sup>43</sup>C<sub>3</sub>H<sub>5</sub><sup>+</sup> 的特征峰, 以及<sup>51</sup>C<sub>4</sub>H<sub>2</sub><sup>+</sup> 和<sup>63</sup>C<sub>5</sub>H<sub>4</sub><sup>+</sup> 等芳香烃信号, 负谱图中有较弱的<sup>-46</sup>NO<sub>2</sub><sup>-</sup> 和<sup>-62</sup>NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 硝酸盐信

号以及很强的<sup>-97</sup>HSO<sub>4</sub><sup>-</sup> 硫酸盐信号, 占总颗粒数的 6.3%. 此外, 由谱图可知黄山地区可能有 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 和 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 的生成.

NaK 谱图中, 正谱图以<sup>23</sup>Na<sup>+</sup> 峰和<sup>39</sup>K<sup>+</sup> 峰为主,

负谱图中有 $^{-46}\text{NO}_2^-$ 和 $^{-62}\text{NO}_3^-$ 硝酸盐信号以及较强的 $^{-97}\text{HSO}_4^-$ 硫酸盐信号,占总颗粒数的5.6%。 $\text{Na}^+$ 通常视为海盐粒子的示踪物,硝酸盐和硫酸盐的存在说明Na粒子在大气中经历了一系列老化过程,可知黄山地区的NaK粒子主要来源于海洋气团携带而来的海盐粒子和工业排放。富K的正谱图中仅有极强的 $^{39}\text{K}^+$ 峰,负谱图中有较弱的 $^{-46}\text{NO}_2^-$ 、 $^{-62}\text{NO}_3^-$ 硝酸盐信号以及较强的 $^{-97}\text{HSO}_4^-$ 硫酸盐信号。 $\text{K}^+$ 向来被看作是生物质燃烧的示踪物<sup>[13,20]</sup>,由谱图中的强 $\text{K}^+$ 峰推断富钾粒子可能来自周边的秸秆燃烧<sup>[31]</sup>、餐馆排放等过程。

HM占总颗粒物的4.9%,图2(a)中可看出存在较强的 $^{56}\text{Fe}^+$ 信号峰和较弱的 $^{208}\text{Pb}^+$ 信号峰,负谱图中有 $^{-46}\text{NO}_2^-$ 和 $^{-62}\text{NO}_3^-$ 硝酸盐信号以及 $^{-97}\text{HSO}_4^-$ 硫酸盐信号,前人研究表明 $\text{Fe}^+$ 来源于燃烧过程,而 $\text{Pb}^+$ 可能来源于垃圾焚烧和工业排放<sup>[41]</sup>。Minerals正谱图中有 $^{27}\text{Al}^+$ 、 $^{40}\text{Ca}^+$ 和 $^{56}\text{CaO}^+$ 等矿物质的信号峰,负谱图中有明显的 $^{-46}\text{NO}_2^-$ 和 $^{-62}\text{NO}_3^-$ 硝酸盐信号以及 $^{-97}\text{HSO}_4^-$ 硫酸盐信号, $^{40}\text{Ca}^+$ 是土壤扬尘和建

筑尘土的标识元素,可知它主要来源于地壳元素和扬尘<sup>[42]</sup>,Minerals占比仅为0.3%,这与采样期间风速一直处于低值进而导致扬尘减少有关。

### 2.3 颗粒物粒径分布特征

颗粒物的化学组成与其粒径密切相关,对颗粒物化学组成及粒径分布进行研究有助于剖析其潜在来源<sup>[43]</sup>。由图3可知,大部分颗粒物集中在 $0.6 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 之间,这是由于SPAMS在此粒径段的打击效率最佳。SPAMS探测到大于 $2 \mu\text{m}$ 的粒子极少,除了Aged-EC、HM、K和NaK之外都为个位数,甚至为0,这可能是由于SPAMS对大粒子的探测效率较低<sup>[41]</sup>。

各类颗粒物在不同粒径处的占比各有差异。K粒子在全粒径段占比都较高,平均占比21%左右。根据1.2节介绍的仪器原理,这是因为K的电离能低,第一电离能仅为 $418.8 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ ,所以易被电离,从而有更多的K粒子被仪器所探测到。Aged-EC和EC的粒径分布呈双峰分布,且峰值分布较为相似,峰值粒径分别为 $0.2 \mu\text{m}$ 、 $0.74 \mu\text{m}$ 和 $0.2 \mu\text{m}$ 、 $0.68 \mu\text{m}$ ,可能是因为来自相似源。ECOC、EC和OC在 $0.2 \sim 0.5 \mu\text{m}$ 粒径段分布较多,在此粒径段

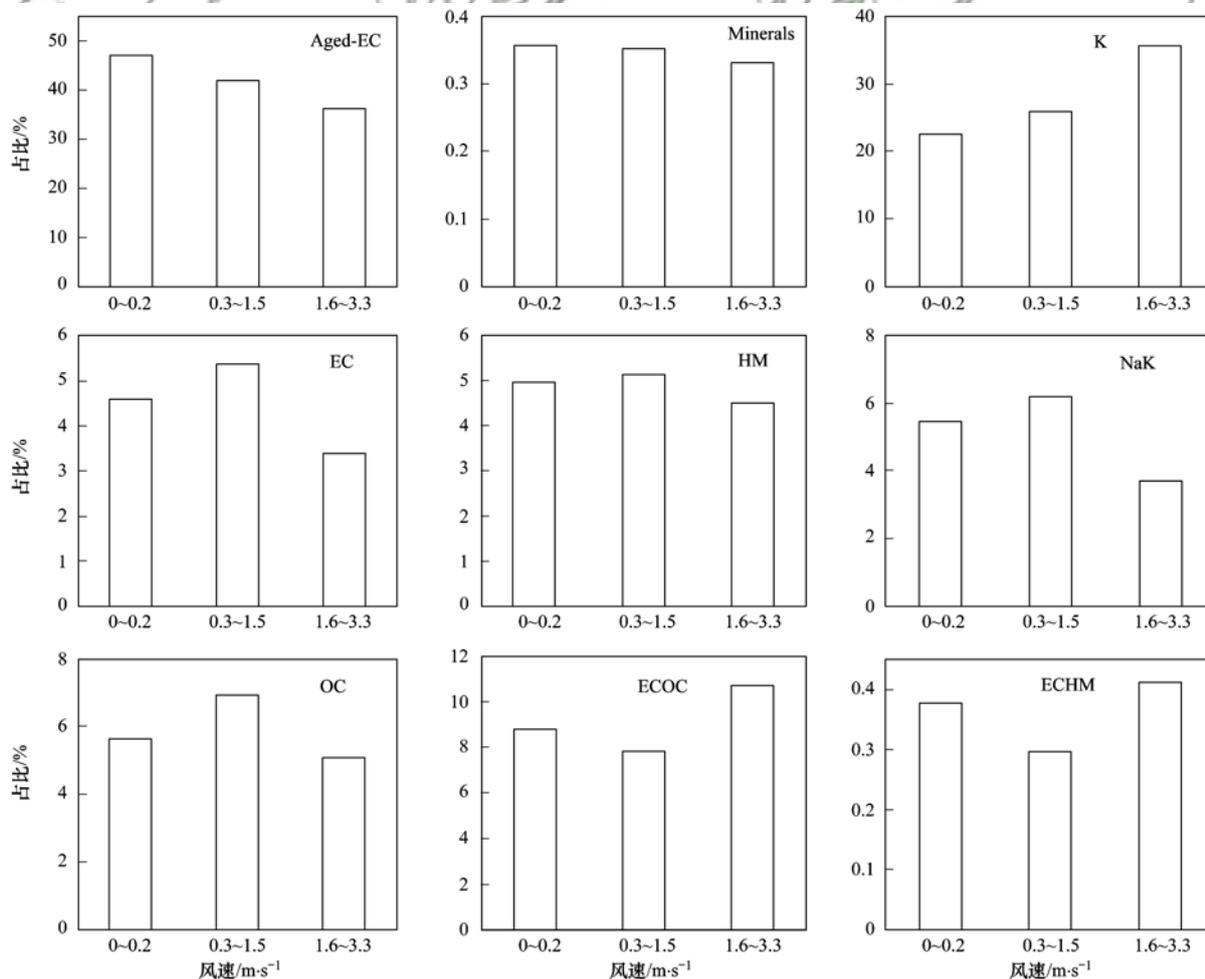


图5 不同风速下的颗粒物占比

Fig. 5 Proportion of each single particle class in different types of wind speeds

间的平均占比分别为 21.1%、9.3% 和 14.7%, 粒径小而数量众多, 说明这些颗粒物刚排放不久, 还未经沉积、凝聚等过程<sup>[44]</sup>. HM、Minerals 和 NaK 在小粒径段占比很小, 随着粒径的增加而占比增大. 其中, Minerals 在 1  $\mu\text{m}$  之后占比才达到 1% 以上, NaK 在 1.4 ~ 2.2  $\mu\text{m}$  段占比高达 35.7%, 是粗粒子中的主要颗粒物. 结合图 2 中 HM 的质谱图, 可知黄山地区 HM 主要为 Fe 粒子, 而 Fe 主要来源于排气管和发动机机体磨损以及燃料等粗粒子<sup>[45]</sup>, 这解释了图 3 中粒径越大, HM 占比越高的现象. ECHM 分布在 0.6 ~ 1.5  $\mu\text{m}$  之间, 由于其总颗粒数很少 (见表 1), 所以每粒径段的占比极小 (< 0.5%). 与 EC 相比, ECHM 的粒径谱明显右移, 可知颗粒物的混合使粒径变大.

## 2.4 气象要素对颗粒物粒径分布及占比的影响

### 2.4.1 风速对颗粒物粒径分布及占比的影响

将风速分成 3 个等级来研究风速大小对颗粒物粒径分布及占比的影响, 颗粒物数目取 0.5 h 总值. 参照风力等级表, 将观测期间风速分为第 1 档静风

(0 ~ 0.2  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )、第 2 档微风(0.3 ~ 1.5  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )及第 3 档轻风(1.6 ~ 3.3  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

如图 4 可知, 各类颗粒物在不同风速下均呈单峰分布. 在第 1 档和第 2 档风速下, 各类颗粒物的粒径分布很相似. 与前两档风速相比, 第 3 档风速下各类颗粒物分布的粒径段普遍偏窄, 且颗粒物数目也远小于前两档风速下. 这是由于风速较大时, 大气扩散条件较好, 使更多的颗粒物被带离采样点.

图 5 中, 随着风速的增加, Aged-EC 和 Minerals 的占比逐渐减少, 可见风不利于这两类粒子的累积. K 的占比明显增加, 可能是因为控制气团来源于生物质燃烧过程较多的地区. EC、HM、NaK 和 OC 颗粒的占比随着风速的变化特征一致, 先增大后减小, 且增幅小于降幅, 在第 3 档风速下占比最低, 第 2 档风速下最利于这 4 类颗粒物的累积. ECHM 和 ECOC 颗粒的占比随着风速的增加先减小后增大, 且降幅小于增幅, 故在第 3 档风速下占比最大, 即高风速下这两类颗粒物在采样点更易累积, 说明它们主要由远距离输送而来, 局地源对这两类颗粒物贡

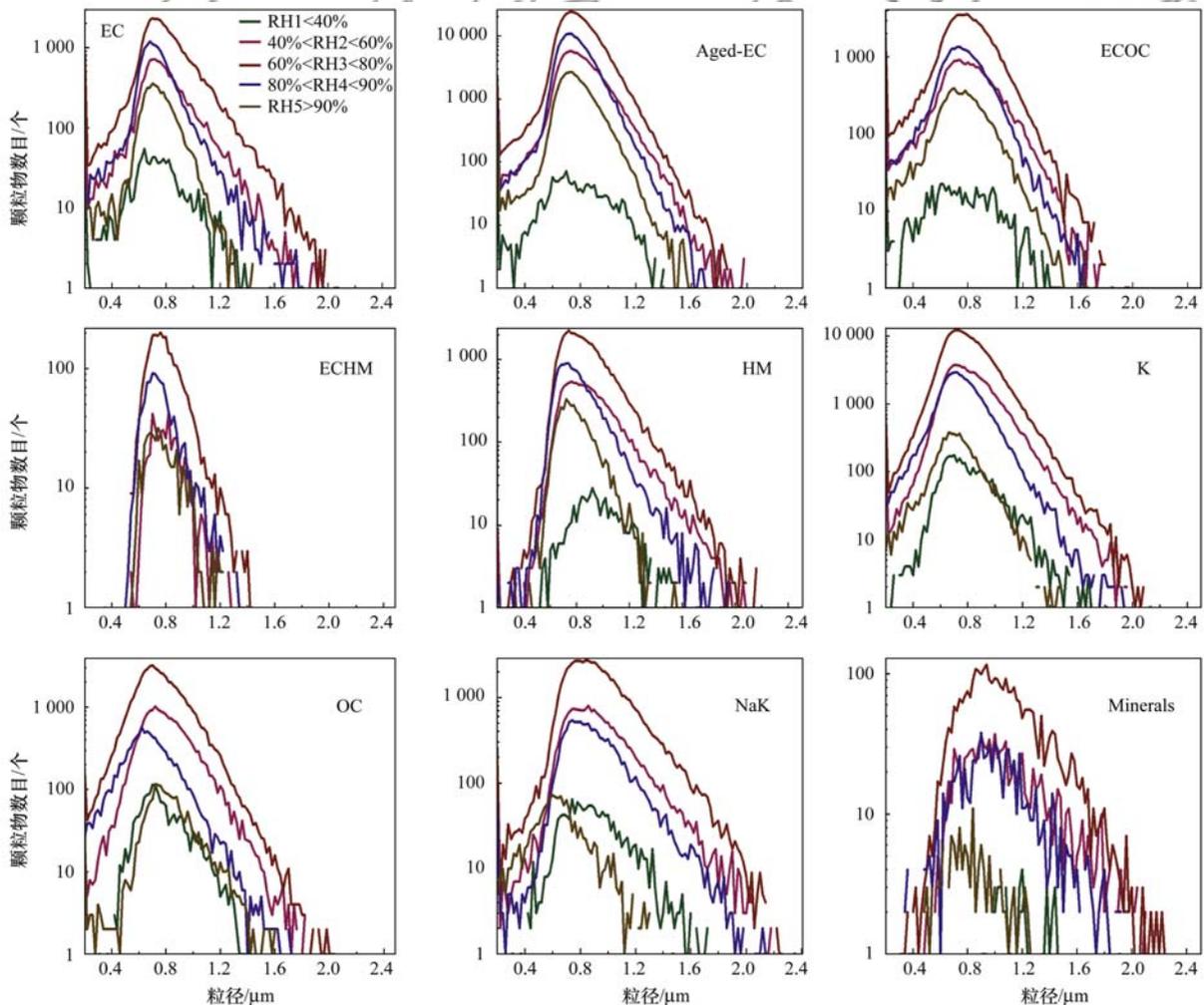


图 6 不同湿度下的颗粒物粒径分布

Fig. 6 Size distribution of each single particle class in different types of RH

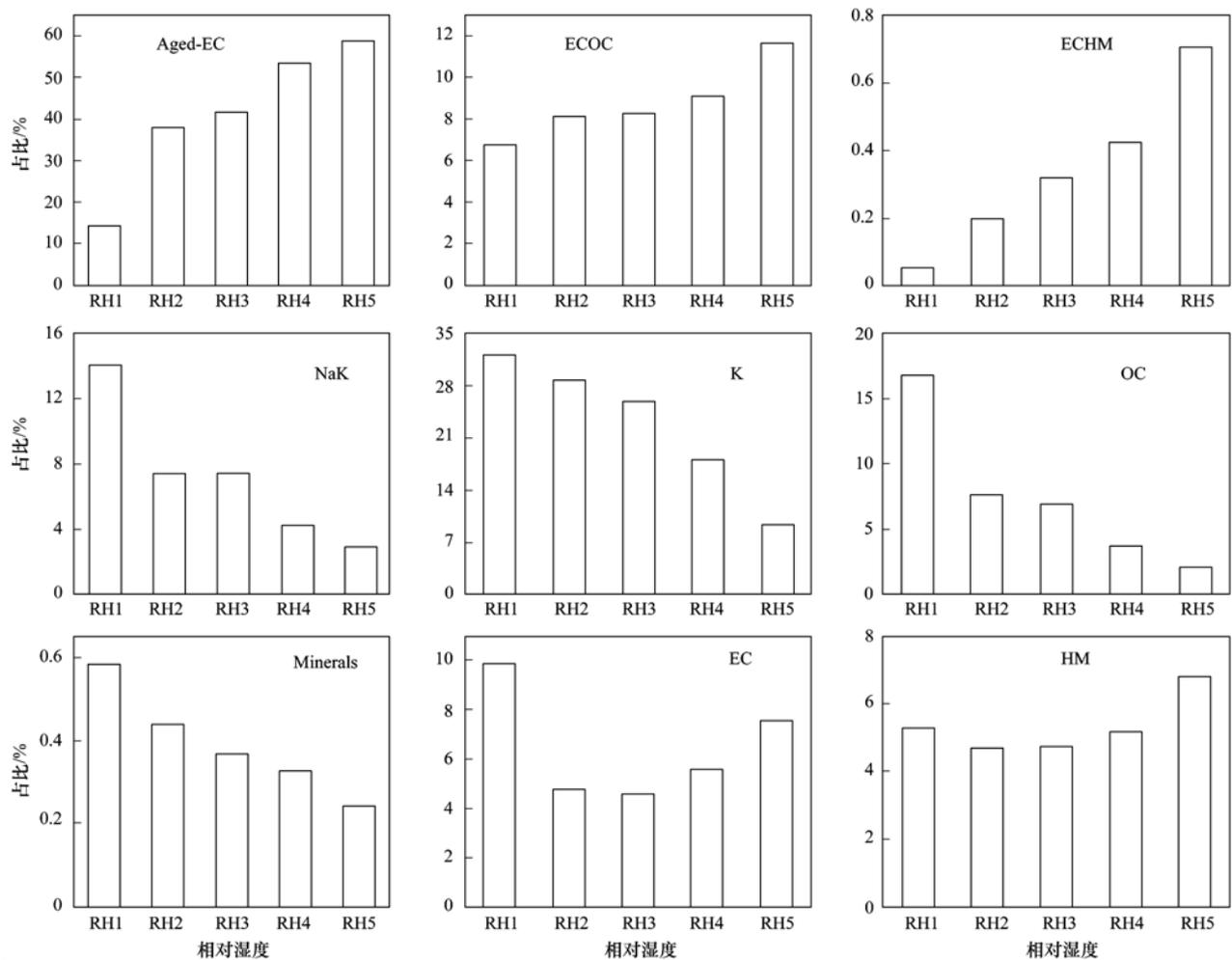


图7 不同湿度下的颗粒物占比

Fig. 7 Proportion of each single particle class in different types of RH

献不大.

#### 2.4.2 相对湿度对颗粒物粒径分布及占比的影响

污染气团通常带有更多水汽,高湿下更利于颗粒物的累积,因此湿度也是颗粒物理化特性的重要影响因素.为了探究相对湿度对颗粒物占比的影响,剔除降水过程后,将相对湿度分为5个等级,分别是  $RH1 < 40\%$ 、 $40 < RH2 < 60\%$ 、 $60 < RH3 < 80\%$ 、 $80 < RH4 < 90\%$  及  $RH5 > 90\%$ .分析时段内湿度 RH3 出现最多,占总数的 48.5%,其次是 RH4 (19.1%)、RH2 (18.4%) 及 RH5 (12.6%).相对湿度高值频繁出现的原因与黄山云雾缭绕的特殊地形有关.

由图6可以看出,在不同RH下,各类颗粒物均呈单峰分布,但颗粒物的粒径分布有所差异.由于已剔除降水,RH5  $> 90\%$ 时可看作发生了云雾过程.除RH5外,随着RH的增加,K粒子的峰值半径呈缓慢增大趋势,说明K粒子吸湿增长,向更大粒径段发展;而Minerals的峰值半径不断减小,从RH1下的  $1.2 \mu\text{m}$  降低至RH5的  $0.84 \mu\text{m}$ .

Aged-EC和EC的粒径分布随相对湿度变化趋势较为一致,RH1下峰值半径最小,RH3下峰值半

径最大.ECHM和HM在RH1时峰值半径最大,RH4下最小.此外,Aged-EC和ECHM在不同的RH下峰值半径始终高于EC,说明颗粒物的混合状态对其粒径有一定影响.其余颗粒物的粒径分布与相对湿度无明显关系.

相对湿度对不同颗粒物的占比也会产生一定影响.如图7,随着RH的增大,Aged-EC、ECHM和ECOC的占比逐渐增加,其中Aged-EC增长最明显,从RH1时的14.38%增长至RH5时的58.72%,说明高湿有利于促进含碳粒子的老化过程;而K、OC、Minerals和NaK的占比逐渐减小,其中K的占比从RH1到RH5共降低了22.87%,结合图6中K粒子随RH增加而峰值半径变大,可知高湿下,K吸湿增长,湿清除又消耗了一部分K粒子,导致其占比减小.EC的占比在RH1时占比最高,达9.82%,且占比随RH先表现为降低,并在RH3时达到最低占比(4.6%),随后占比随着RH的增加有所回升,在RH5下达到占比值7.5%.HM占比的变化趋势与EC相同,在RH5下占比略高一些,总体差别不大.

## 2.5 不同气团对颗粒物理化特性的影响

模式结果显示该地区主要受3种气团影响(图8),气团1是源自河北,途经山东、江苏的西北气团(远距离输送气团),占气团轨迹总数的34%;气团2是来自东海,途经长三角地区的海洋气团,占气团轨迹总数的比例最高,达42%;气团3是来自江西的局地气团,占气团轨迹总数的比例最小,仅为24%。

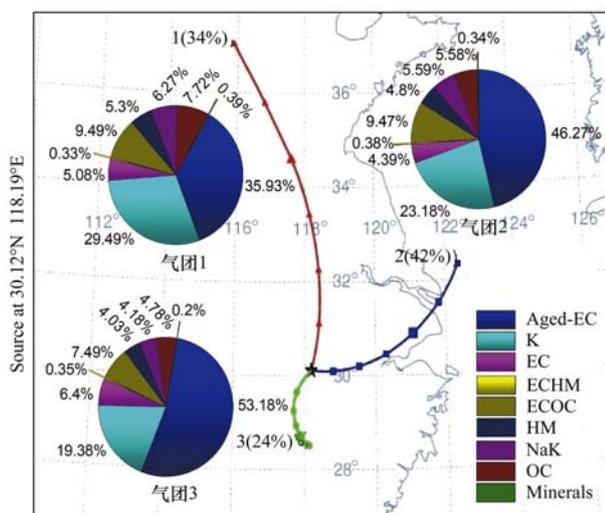


图8 HYSPLIT 后向轨迹及在各气团控制下的颗粒物占比

Fig. 8 Backward trajectories of HYSPLIT and proportions of each single particle class under each air mass

不同气团贡献的颗粒物数目有所差异.气团1贡献的颗粒物最多,0.5h 输送颗粒数均值达837个,气团2其次,气团3最少,这与气团的来源有关<sup>[45]</sup>.气团1为内陆气团,经过地区最多,所以携带了更多颗粒物.3种气团下,各种颗粒物的占比也有所不同.其中,Aged-EC和K占比之和均超过65%,说明这两种颗粒物是黄山地区的特征颗粒物.ECHM和Minerals在3种气团期间占比都较低且变化不大.在气团1控制下,K、ECOC、HM、NaK和OC较其它两个气团下有更高的比值,揭示这些颗粒物主要由远距离气团输送而来.Aged-EC在3种气团下都有较高占比,尤其在气团3控制下的占比最高,达53.2%,气团2次之,说明周边地区的工业排放、燃煤等活动是Aged-EC的主要贡献源,长三角地区的工业源也有较大贡献.此外,EC在3种气团期间占比仅4%~6%,远低于Aged-EC,说明输送过程中绝大多数含碳粒子都经历了老化过程.

## 3 结论

(1) 观测期间黄山地区大气颗粒物可分为9类:HM(4.9%)、Aged-EC(43.4%)、EC(5%)、OC(6.3%)、ECOC(9.1%)、ECHM(0.4%)、NaK

(5.6%)、K(25%)和Minerals(0.3%).Aged-EC和K是黄山地区的特征颗粒物,二者总占比达68.4%.含碳颗粒物Aged-EC、ECOC、OC粒径集中在积聚模态(0.2~1.4 μm),HM、NaK和Minerals粒径集中于粗粒子模态(>1.4 μm).

(2) Aged-EC、Minerals和K受风速影响较为明显,较高风速下Aged-EC、Minerals占比减少,而K的占比增加.高相对湿度利于含碳颗粒物Aged-EC、ECHM、ECOC的数浓度增多和K的粒径增长,Minerals的粒径则在高湿下呈减小趋势.

(3) 观测期间黄山地区受西北气团(34%)、海洋气团(42%)和局地气团(24%)影响.西北气团贡献的颗粒物最多,海洋气团其次,局地气团最少.Aged-EC在不同气团控制下占比始终最高,且周边地区的工业排放、燃煤等活动以及长三角地区的工业排放是Aged-EC的主要贡献源.

## 参考文献:

- [1] Kanakidou M, Seinfeld J H, Pandis S N, *et al.* Organic aerosol and global climate modelling: a review [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2005, **5**(4): 1053-1123.
- [2] Moffet R C, De Foy B, Molina L T, *et al.* Measurement of ambient aerosols in northern Mexico City by single particle mass spectrometry [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, **8**(16): 4499-4516.
- [3] 黄子龙, 曾立民, 董华斌, 等. 利用 SPAMS 研究华北乡村站点(曲周)夏季大气单颗粒物老化与混合状态 [J]. *环境科学*, 2016, **37**(4): 1188-1198.
- [4] Wang H L, An J L, Shen L J, *et al.* Mixing state of ambient aerosols in Nanjing city by single particle mass spectrometry [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **132**: 123-132.
- [5] Gard E E, Kleeman M J, Gross D S, *et al.* Direct observation of heterogeneous chemistry in the atmosphere [J]. *Science*, 1998, **279**(5354): 1184-1187.
- [6] Wang S B, Yin S S, Zhang R Q, *et al.* Insight into the formation of secondary inorganic aerosol based on high-time-resolution data during haze episodes and snowfall periods in Zhengzhou, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **660**: 47-56.
- [7] 付怀于, 闫才青, 郑玫, 等. 在线单颗粒气溶胶质谱 SPAMS 对细颗粒物中主要组分提取方法的研究 [J]. *环境科学*, 2014, **35**(11): 4070-4077.
- [8] Healy R M, Evans G J, Murphy M, *et al.* Single-particle speciation of alkylamines in ambient aerosol at five European sites [J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2015, **407**(20): 5899-5909.
- [9] Lawler M J, Rissanen M P, Ehn M, *et al.* Evidence for diverse biogeochemical drivers of boreal forest new particle formation [J]. *Geophysical Research Letters*, 2018, **45**(4): 2038-2046.
- [10] Robinson E S, Gu P S, Ye Q, *et al.* Restaurant impacts on outdoor air quality: elevated organic aerosol mass from restaurant cooking with neighborhood-scale plume extents [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **52**(16): 9285-9294.
- [11] Song X H, Hopke P K, Ferguson D P, *et al.* Classification of single particles analyzed by ATOFMS using an artificial neural network, ART-2A [J]. *Analytical Chemistry*, 1999, **71**(4):

- 860-865.
- [12] Liu Z M, Lu X H, Feng J L, *et al.* Influence of ship emissions on urban air quality; a comprehensive study using highly time-resolved online measurements and numerical simulation in Shanghai[J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, **51**(1): 202-211.
- [13] Healy R M, Sciare J, Poulain L, *et al.* Sources and mixing state of size-resolved elemental carbon particles in a European megacity: Paris[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(4): 1681-1700.
- [14] Arndt J, Sciare J, Mallet M, *et al.* Sources and mixing state of summertime background aerosol in the north-western Mediterranean basin [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(11): 6975-7001.
- [15] 蔡靖, 郑玫, 闫才青, 等. 单颗粒气溶胶飞行时间质谱仪在细颗粒物研究中的应用和进展[J]. *分析化学*, 2015, **43**(5): 765-774.
- Cai J, Zheng M, Yan C Q, *et al.* Application and progress of single particle aerosol time-of-flight mass spectrometer in fine particulate matter research [J]. *Chinese Journal of Analytical Chemistry*, 2015, **43**(5): 765-774.
- [16] 于兴娜, 时政, 马佳, 等. 南京江北新区大气单颗粒来源解析及混合状态[J]. *环境科学*, 2019, **40**(4): 1521-1528.
- Yu X N, Shi Z, Ma J, *et al.* Source apportionment and mixing state of single particles in the Nanjing Jiangbei New Area [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(4): 1521-1528.
- [17] 温杰, 史旭荣, 田瑛泽, 等. 利用 SPAMS 研究天津市夏季环境空气中细颗粒物化学组成特征[J]. *环境科学*, 2018, **39**(8): 3492-3501.
- Wen J, Shi X R, Tian Y Z, *et al.* Analysis of chemical composition of the fine particulate matter in summer in Tianjin city via a single particle aerosol mass spectrometer (SPAMS) [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(8): 3492-3501.
- [18] Hu R, Wang H L, Yin Y, *et al.* Mixing state of ambient aerosols during different fog-haze pollution episodes in the Yangtze River Delta, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **178**: 1-10.
- [19] Chen Y, Liu H W, Yang F M, *et al.* Single particle characterization of summertime particles in Xi'an (China) [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **636**: 1279-1290.
- [20] 蒋斌, 陈多宏, 王伯光, 等. 鹤山大气超级站旱季单颗粒气溶胶化学特征研究[J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(3): 670-678.
- Jiang B, Chen D H, Wang B G, *et al.* Single-particle chemical characterization of aerosols at the Heshan atmospheric supersite during the dry season[J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(3): 670-678.
- [21] Wang H L, Shen L J, Yin Y, *et al.* Characteristics and mixing state of aerosol at the summit of Mount Tai (1 534 m) in Central East China; first measurements with SPAMS [J]. *Atmospheric Environment*, 2019, **213**: 273-284.
- [22] 王安侯, 张沈阳, 王好, 等. 天井山空气背景站单颗粒气溶胶有机硫酸酯初步研究[J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(5): 1663-1669.
- Wang A H, Zhang S Y, Wang H, *et al.* A preliminary study of organosulfates in atmospheric aerosols at Tian-jing-shan national air background monitoring station in Nanling Mountains, South China[J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(5): 1663-1669.
- [23] Zhang G H, Lin Q H, Peng L, *et al.* The single-particle mixing state and cloud scavenging of black carbon: a case study at a high-altitude mountain site in southern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(24): 14975-14985.
- [24] 银燕, 陈晨, 陈魁, 等. 黄山大气气溶胶微观特性的观测研究[J]. *大气科学学报*, 2010, **33**(2): 129-136.
- Yin Y, Chen C, Chen K, *et al.* An Observational study of the microphysical properties of atmospheric aerosol at Mt. Huang [J]. *Transactions of Atmospheric Sciences*, 2010, **33**(2): 129-136.
- [25] Yuan L, Yin Y, Xiao H, *et al.* A closure study of aerosol optical properties at a regional background mountainous site in Eastern China [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **550**: 950-960.
- [26] 文彬, 银燕, 秦彦硕, 等. 夏季黄山不同高度大气气溶胶水溶性离子特征分析[J]. *环境科学*, 2013, **34**(5): 1973-1981.
- Wen B, Yin Y, Qin Y S, *et al.* Chemical characteristics of water-soluble components of aerosol particles at different altitudes of the Mount Huang in the summer [J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(5): 1973-1981.
- [27] 陈卉, 杨素英, 李艳伟, 等. 黄山夏季气溶胶吸湿性及与化学组分闭合[J]. *环境科学*, 2016, **37**(6): 2008-2016.
- Chen H, Yang S Y, Li Y W, *et al.* Hygroscopic properties and closure of aerosol chemical composition in Mt. Huang in summer [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(6): 2008-2016.
- [28] 李慧, 银燕, 单云鹏, 等. 黄山层状云和对流云降水不同高度的雨滴谱统计特征分析[J]. *大气科学*, 2018, **42**(2): 268-280.
- Li H, Yin Y, Shan Y P, *et al.* Statistical characteristics of raindrop size distribution for stratiform and convective precipitation at different altitudes in Mt. Huang [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 2018, **42**(2): 268-280.
- [29] Hao J, Yin Y, Li X X, *et al.* Observations of nucleation mode particles formation and growth on Mount Huang, China [J]. *Procedia Engineering*, 2015, **102**: 1167-1176.
- [30] Zhang X R, Yin Y, Lin Z Y, *et al.* Observation of aerosol number size distribution and new particle formation at a mountainous site in Southeast China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **575**: 309-320.
- [31] Chen K, Yin Y, Kong S F, *et al.* Size-resolved chemical composition of atmospheric particles during a straw burning period at Mt. Huang (the Yellow Mountain) of China [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **84**: 380-389.
- [32] Li L, Huang Z X, Dong J G, *et al.* Real time bipolar time-of-flight mass spectrometer for analyzing single aerosol particles [J]. *International Journal of Mass Spectrometry*, 2011, **303**(2-3): 118-124.
- [33] Zhao W X, Hopke P K, Qin X Y, *et al.* Predicting bulk ambient aerosol compositions from ATOFMS data with ART-2a and multivariate analysis [J]. *Analytica Chimica Acta*, 2005, **549**(1-2): 179-187.
- [34] 钱奇峰. 2012 年 9 月大气环流和天气分析[J]. *气象*, 2012, **38**(12): 1579-1584.
- Qian Q F. Analysis of the September 2012 atmospheric circulation and weather [J]. *Meteorological Monthly*, 2012, **38**(12): 1579-1584.
- [35] Lin Q H, Zhang G H, Peng L, *et al.* In situ chemical composition measurement of individual cloud residue particles at a mountain site, southern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(13): 8473-8488.
- [36] Beddows D C S, Donovan R J, Harrison R M, *et al.* Correlations in the chemical composition of rural background atmospheric aerosol in the UK determined in real time using time-of-flight

- mass spectrometry [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2004, **6**(2): 124-133.
- [37] 沈艳, 张泽锋, 李艳伟, 等. 南京北郊一次霾过程中气溶胶理化特征变化研究[J]. *环境科学学报*, 2016, **36**(7): 2314-2323.
- Shen Y, Zhang Z F, Li Y W, *et al.* Characterization of aerosol particles during a haze event in the northern Suburb of Nanjing [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2016, **36**(7): 2314-2323.
- [38] Bi X H, Zhang G H, Li L, *et al.* Mixing state of biomass burning particles by single particle aerosol mass spectrometer in the urban area of PRD, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(20): 3447-3453.
- [39] Zhang J K, Huang X J, Wang Y S, *et al.* Characterization, mixing state, and evolution of single particles in a megacity of Sichuan Basin, southwest China [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **209**: 179-187.
- [40] Zhang G H, Han B X, Bi X H, *et al.* Characteristics of individual particles in the atmosphere of Guangzhou by single particle mass spectrometry [J]. *Atmospheric Research*, 2015, **153**: 286-295.
- [41] Ma L, Li M, Huang Z X, *et al.* Real time analysis of lead-containing atmospheric particles in Beijing during springtime by single particle aerosol mass spectrometry [J]. *Chemosphere*, 2016, **154**: 454-462.
- [42] Roth A, Schneider J, Klimach T, *et al.* Aerosol properties, source identification, and cloud processing in orographic clouds measured by single particle mass spectrometry on a central European mountain site during HCCT-2010 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2015, **15**(18): 24419-24472.
- [43] Yan J P, Chen L Q, Lin Q, *et al.* Pollutants identification of ambient aerosols by two types of aerosol mass spectrometers over southeast coastal area, China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **64**: 252-263.
- [44] Ulrich A, Wichser A. Analysis of additive metals in fuel and emission aerosols of diesel vehicles with and without particle traps [J]. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 2003, **377**(1): 71-81.
- [45] 龚宇麟, 银燕, 陈魁, 等. 南京北郊秋季气溶胶理化特征及潜在源区分布 [J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(11): 4032-4043.
- Gong Y L, Yin Y, Chen K, *et al.* Physical and chemical characteristics and potential source region distribution of aerosols over the northern suburb of Nanjing, during autumn [J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(11): 4032-4043.



## CONTENTS

Evolution of the Distribution of PM <sub>2.5</sub> Concentration in the Yangtze River Economic Belt and Its Influencing Factors .....	HUANG Xiao-gang, ZHAO Jing-bo, CAO Jun-ji, <i>et al.</i>	(1013)
Chemical Characteristics and Source Apportionment of Water-Soluble Ions in Atmosphere Aerosols over the East China Sea Island During Winter and Summer .....	FANG Yan, CAO Fang, FAN Mei-yi, <i>et al.</i>	(1025)
Analysis of Chemical Components and Sources of PM <sub>2.5</sub> During Autumn and Winter in Yangquan City .....	WANG Cheng, YAN Yu-long, XIE Kai, <i>et al.</i>	(1036)
Chemical Compositions and Sources of <i>n</i> -Alkanes and Saccharides in PM <sub>2.5</sub> from Taian City During the Summer .....	YI Ya-nan, HOU Zhan-fang, YANG Qian-cai, <i>et al.</i>	(1045)
Physical and Chemical Characteristics of Atmospheric Particles in Autumn in Mt. Huangshan .....	BIAN Yi-shu, YIN Yan, WANG Hong-lei, <i>et al.</i>	(1056)
Characteristics of Aerosol Optical Depth in the Urban Area of Beibei and Its Correlation with Particle Concentration .....	ZENG Wei, HAO Qing-ju, ZHAO Zhong-jing, <i>et al.</i>	(1067)
Emission Characteristics of Volatile Organic Compounds from Typical Industries in Zibo .....	WANG Yu-yan, WANG Xiu-yan, DU Miao, <i>et al.</i>	(1078)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of Atmospheric VOCs in Ezhou City .....	FU Yu-meng, YANG Hong-gang, LU Min-yu, <i>et al.</i>	(1085)
Producing Coefficients and Emission Coefficients of Volatile Organic Compounds from the Automobile Manufacturing Industry in Zhejiang Province .....	TENG Fu-hua, YANG Zhong-ping, DONG Shi-bi, <i>et al.</i>	(1093)
Pollution Characteristics of Volatile Organic Compounds Emission from the Metal Packaging Industry Based on Analysis of Process .....	WANG Di, NIE Lei, ZHAO Wen-juan, <i>et al.</i>	(1099)
Profile Characteristics of VOCs from Wood and Economic Crop Burning .....	NIU Zhen-zhen, KONG Shao-fei, YAN Qin, <i>et al.</i>	(1107)
Accounting Methods of VOCs Emission Associated with Production Processes in a Fine Chemical Industrial Park .....	YE Han-yun, TIAN Jin-ping, CHEN Lü-jun	(1116)
HONO Observation and Assessment of the Effects of Atmospheric Oxidation Capacity in Changzhou During the Springtime of 2017 .....	SHI Xiao-wen, GE Yi-feng, ZHANG Yu-chan, <i>et al.</i>	(1123)
Analysis of Activity and Its Emissions Trend for Construction Equipment in China .....	PANG Kai-li, ZHANG Kai-shan, MA Shuai, <i>et al.</i>	(1132)
Air Pollutant Emission Inventory from LTO Cycles of Aircraft in the Beijing-Tianjin-Hebei Airport Group, China .....	HAN Bo, KONG Wei-kai, YAO Ting-wei, <i>et al.</i>	(1143)
Particle Size Distribution of PM Emission from In-use Gasoline and Diesel Vehicles .....	WANG Rui-ning, HU Qing-yao, REN Hong-juan, <i>et al.</i>	(1151)
Impact of Parameterization on the Estimation of Ammonia Emissions: A Case Study over the Yangtze River Delta .....	ZHANG Qi, HUANG Ling, YIN Si-jia, <i>et al.</i>	(1158)
Characteristics and Source Apportionment of Dustfall Pollution in the Coal Mine Area and Surrounding Areas of Wuhai City in Spring .....	WU Hong-xuan, SHI Chang-qing, ZHANG Yan, <i>et al.</i>	(1167)
Variations of Stable Oxygen and Deuterium Isotopes in River and Lake Waters During Flooding Season Along the Middle and Lower Reaches of the Yangtze River Regions .....	LI Jing, WU Hua-wu, ZHOU Yong-qiang, <i>et al.</i>	(1176)
Water Sources and Factors Controlling Hydro-chemical Compositions in the Yiluo River Basin .....	LIU Song-tao, ZHANG Dong, LI Yu-hong, <i>et al.</i>	(1184)
Chemical Evolution of Groundwater in the Tacheng Basin of Xinjiang in the Process of Urbanization .....	LÜ Xiao-li, LIU Jing-tao, HAN Zhan-tao, <i>et al.</i>	(1197)
Remote Sensing Monitoring on Spatial Differentiation of Suspended Sediment Concentration in a River-Lake System Based on Sentinel-2 MSI Imaging: A Case for Shengjin Lake and Connected Yangtze River Section in Anhui Province .....	WANG Hang-hang, WANG Jie, CUI Yu-huan	(1207)
CDOM Optical Characteristics and Related Environmental Factors of High-turbidity Waters on the Loess Plateau .....	LIANG Xiao-wen, SHAO Tian-tian, WANG Tao	(1217)
Effects of Artificial Destratification and Induced-natural Mixing on Water Quality Improvement in a Drinking Water Reservoir .....	WEN Cheng-cheng, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i>	(1227)
Effect of Filter Speed and Water Quality on Ammonia Removal in Groundwater Containing Iron, Manganese, and Ammonia at Low Temperature .....	ZHANG Jie, MEI Ning, LIU Meng-hao, <i>et al.</i>	(1236)
Long-term Variation Characteristics of Zooplankton Community Structure in Meiliang Bay, Lake Taihu .....	YANG Jia, ZHOU Jian, QIN Bo-qiang, <i>et al.</i>	(1246)
Community of Benthic Diatoms and Their Relationship with Aquatic Environmental Factors in the Tangwang River, China .....	XUE Hao, WANG Ye-yao, MENG Fan-sheng, <i>et al.</i>	(1256)
Succession Characteristics and Water Quality Responsiveness Evaluation of FG and MBFG in Yanlong Lake Water Source Ecological Purification System .....	WANG Lian, LI Xuan, MA Wei-xing, <i>et al.</i>	(1265)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Output and Loss Flux in the Shipanqiu Watershed, Three Gorges Reservoir Area .....	CHEN Shi-qi, LONG Yi, YAN Dong-chun, <i>et al.</i>	(1276)
Effect of Optimized Fertilization and Biochar Application on Phosphorus Loss in Purple Soil Sloping Farmland .....	LUO Dong-hai, WANG Zi-fang, LONG Yi, <i>et al.</i>	(1286)
Use of Iron-modified Calcite as an Active Capping Material to Control Phosphorus Release from Sediments in Surface Water Bodies .....	BAI Xiao-yun, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i>	(1296)
Preparation of Tea Waste Biochar and Its Application in Tetracycline Removal from Aqueous Solution .....	FAN Shi-suo, LIU Wen-pu, WANG Jing-tao, <i>et al.</i>	(1308)
Adsorption Characteristics of Sulfamethazine on Three Typical Porous High-temperature Modified Solid Waste Materials .....	WANG Jing, ZHU Xiao-li, HAN Zi-yu, <i>et al.</i>	(1319)
Sorption of Polybrominated Diphenyl Ethers by Virgin and Aged Microplastics .....	XU Peng-cheng, GUO Jian, MA Dong, <i>et al.</i>	(1329)
Spatial Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of the Ruxi Tributary of the Three Gorges Reservoir .....	FANG Zhi-qing, WANG Yong-min, WANG Xun, <i>et al.</i>	(1338)
Distribution and Risk Assessment of OCPs in Surface Water, Sediments, and Fish from Lake Gucheng and Inflow and Outflow Rivers .....	KAN Ke-cong, GU Xiao-hong, LI Hong-min, <i>et al.</i>	(1346)
Occurrence and Ecological Risk Assessment of Typical Persistent Organic Pollutants in Hengshui Lake .....	ZHANG Jia-wen, WEI Jian, LÜ Yi-fan, <i>et al.</i>	(1357)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Typical Organophosphate Esters in Beijing Municipal Wastewater Treatment Plant and the Receiving Water .....	ZHANG Zhen-fei, LÜ Jia-pei, PEI Ying-ying, <i>et al.</i>	(1368)
Advanced Nitrogen Removal Characteristics of Low Carbon Source Municipal Wastewater Treatment via Partial-denitrification Coupled with ANAMMOX .....	MA Bin, XU Xin-xin, GAO Mao-hong, <i>et al.</i>	(1377)
Stable Nitrite Accumulation and Phosphorus Removal from High-nitrate and Municipal Wastewaters in a Combined Process of Partial Denitrification and Denitrifying Phosphorus Removal (PD-DPR) .....	WANG Qiu-ying, YU De-shuang, ZHAO Ji, <i>et al.</i>	(1384)
Start-up of CANON Process and Short-cut Nitrification in a Pilot-scale MBBR Reactor .....	FU Kun-ming, YANG Zong-yue, LIAO Min-hui, <i>et al.</i>	(1393)
Influence of Antibiotics on the Denitrification Process of Antibiotic Resistant Denitrifying Bacteria and the Analysis of Microbial Community Structure .....	DAI Sha, LI Peng, PENG Wu-qing, <i>et al.</i>	(1401)
Aerobic Granular Sludge System with Multiple Influent-Aeration Operation Strategy .....	ZHANG Jie, WANG Yu-ying, LI Dong, <i>et al.</i>	(1409)
Effect of Alkaline Sludge Fermentation Products on the Nitrification Process and Performance .....	QIU Sheng-jie, LIU Jin-jin, LI Xi-yao, <i>et al.</i>	(1418)
Effect of Sulfate on the Migration and Transformation of Methylmercury in Advanced Anaerobic Digestion of Sludge .....	HE Xiang-lin, LIU Ji-bao, YIN Yong-guang, <i>et al.</i>	(1425)
Spatial-temporal Variation and Source Change of Heavy Metals in the Cropland Soil in the Industrial City .....	LI Yan-ling, LU Yi-fu, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i>	(1432)
Assessment and Spatial Characteristics Analysis of Human Health Risk of Heavy Metals in Cultivated Soil .....	Ji Chao, HOU Da-wei, LI Fa-zhi, <i>et al.</i>	(1440)
Microbial Diversity and Physicochemical Properties of Rhizosphere Microenvironment in Saline-alkali Soils of the Yellow River Delta .....	ZHAO Jiao, XIE Hui-jun, ZHANG Jian	(1449)
Effects of Different Land Use Types on the Molecular Ecological Network of Soil Bacteria .....	LI Bing, LI Yu-shuang, WEI Jian-bing, <i>et al.</i>	(1456)
Responses of Soil Organic Carbon Fractions to Land Use Types in Hilly Red Soil Regions, China .....	ZHANG Xiao-fang, ZHENG Sheng-meng, XIA Yin-hang, <i>et al.</i>	(1466)
Effect of Organic Fertilizer and Inorganic Fertilizer Application on N <sub>2</sub> O Emissions from Fluvo-aquic Soil in the North China Plain .....	SUN He-yang, WAN Zhong-mei, LIU De-yan, <i>et al.</i>	(1474)
Characteristics of Heavy Metal Absorption by Winter Wheat and Its Quantitative Relationship with Influencing Factors .....	WANG Yi-wen, RUI Yu-kui, LI Zhong-yang, <i>et al.</i>	(1482)
Effect of Calcium Magnesium Phosphate on Remediation Paddy Soil Contaminated with Cadmium Using Lime and Sepiolite .....	YAN De-mei, GUO Zhao-hui, HUANG Feng-lian, <i>et al.</i>	(1491)
Passivation and Remediation Effects and Mechanisms of Plant Residual Modified Materials on Lead-Contaminated Soils .....	FANG Ya-li, ZHU Zong-qiang, ZHAO Ning-ning, <i>et al.</i>	(1498)
Effects of Exogenous Spermidine on Seed Germination and As Uptake and Accumulation of Rice Under As <sup>5+</sup> Stress .....	LIU Shu-jin, HUANG Yi-zong, BAO Qiong-li, <i>et al.</i>	(1505)