

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第4期

Vol.34 No.4

**2013**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

唐山大气颗粒物中水溶性无机盐的观测研究 ..... 苗红妍,温天雪,王丽,李杏茹,王跃思(1225)

鼎湖山 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子浓度特征分析 ..... 赵亚南,王跃思,温天雪,刘全(1232)

北京夏冬季霾天气下气溶胶水溶性离子粒径分布特征 ..... 黄怡民,刘子锐,陈宏,王跃思(1236)

深圳市 PM<sub>2.5</sub> 化学组成与时空分布特征 ..... 云慧,何凌燕,黄晓锋,兰紫娟,李响,曾立武(1245)

福州城市及郊区冬、夏两季大气中多环芳烃特征研究 ..... 易志刚,黄幸然,毕峻奇,郭萍萍,郑丽丽(1252)

河西走廊及兰州地区典型有机氯农药的大气残留及时空分布特征 ..... 丁中原,毛潇萱,马子龙,田慧,郭强,黄韬,高宏,李军,张干(1258)

淄博市大气污染特征模型模拟及环境容量估算 ..... 薛文博,王金南,杨金田,雷宇,燕丽,贺晋瑜,韩宝平(1264)

香溪河秋季水-气界面温室气体通量日变化观测及影响因素分析 ..... 黄文敏,朱孔贤,赵玮,余博识,袁希功,冯瑞杰,毕永红,胡征宇(1270)

变异系数法评价人类活动对地下水环境的影响 ..... 赵微,林健,王树芳,刘记来,陈忠荣,寇文杰(1277)

基于 ArcSWAT 模型的长乐江流域非点源氮素污染源识别和分析 ..... 邓欧平,孙嗣咏,吕军(1284)

西安周边河流溶解无机碳浓度及同位素组成初探 ..... 郭威,李祥忠,刘卫国(1291)

滇池流域宝象河暴雨径流初始冲刷效应 ..... 郭怀成,向男,周丰,王永华,李发荣,朱翔,毛国柱,于书霞,李娜,盛虎,杨永辉,何成杰,王翠榆(1298)

三峡库区沉积物秋冬初的磷释放通量估算 ..... 牛凤霞,肖尚斌,王雨春,刘德富,黎国育,王亮,纪道斌,杨正健(1308)

海南东部河流、河口及近岸水域颗粒态重金属的分布及污染状况 ..... 辛成林,任景玲,张桂玲,郭亚平,张国玲,刘素美(1315)

黄河口表层沉积物中重金属的环境地球化学特征 ..... 吴斌,宋金明,李学刚(1324)

扎龙湿地沉积物重金属空间分布特征及其潜在生态风险评价 ..... 叶华香,臧淑英,张丽娟,张玉红(1333)

上海市典型疏浚泥重金属生态风险评价 ..... 唐庆丽,程金平,高昊旻,姚磊,蒋真毅,吴昉,谢翠松,梁海,王鹤,皮帅帅,余朝毅(1340)

我国沿海地区城镇污水处理厂污泥重金属污染状况及其处置分析 ..... 张灿,陈虹,余忆玄,王立军,韩建波,陶平(1345)

江苏某地长江、太湖水源水及出厂水中有机物雌激素活性的比较 ..... 金涛,吕学敏,曾一凡,张冰冰,马鲲鹏,姜朴,唐非(1351)

北京市污水处理厂中邻苯二甲酸酯污染水平及其归趋 ..... 周益奇,刘云霞(1357)

降解 DMF 引起污泥毒性及其毒性空间分布特性研究 ..... 胡园园,杨娜,丁毅,徐文璐,陈秀荣,艾奇峰,陈善佳,王利鹏,黄华(1363)

渤海湾有机锡污染对野生脉红螺的生态风险 ..... 安立会,张燕强,宋双双,刘玥,高俊敏,陈浩,赵兴茹,雷坤,郑丙辉(1369)

巨牡蛎(*Crassostrea* sp.)对燃煤电厂脱硫海水中汞的生物累积 ..... 刘锡尧,袁东星,陈耀瑾(1374)

咪唑氯盐离子液体对蚯蚓急性毒性及体重影响研究 ..... 黄若男,范军杰,涂宏志,谭凌燕,刘惠君,徐冬梅(1380)

铝盐混凝除砷影响因素及机制研究 ..... 陈桂霞,胡承志,朱灵峰,童华卿(1386)

混凝和活性炭吸附去除微污染源水中 DON 的研究 ..... 刘冰,余国忠,古励,赵承美,李清飞,翟慧敏(1392)

活性炭催化臭氧氧化扑热息痛的机制研究 ..... 王佳裕,戴启洲,鱼杰,颜亦舟,陈建孟(1402)

氯酚溶液的  $\gamma$  辐照还原降解研究 ..... 彭云霞,何仕均,龚文琪,王建龙(1411)

C/N 比对反硝化过程中亚硝酸盐积累的影响分析 ..... 袁怡,黄勇,邓慧萍,盛学敏,潘杨,李祥(1416)

以甲醇为碳源生物反硝化过程释放一氧化二氮的试验研究 ..... 翟晓峰,蒋成爱,吴光学,曾运涛(1421)

固体纤维素类废物作为反硝化碳源滤料的比选 ..... 李斌,郝瑞霞(1428)

基于能源回收的城市污水厌氧氨氧化生物脱氮新工艺 ..... 卢健聪,高大文,孙学影(1435)

多模式厌氧/缺氧/好氧污水处理工艺的稳态与动态模拟 ..... 周振,吴志超,王志伟,杜兴庄,蒋玲燕,邢灿(1442)

高氨氮废水与城市生活污水短程硝化系统菌群比较 ..... 赵志瑞,马斌,张树军,李滨,白志辉,王晓辉,庄国强,张洪勋(1448)

活性污泥絮体的分形结构分析 ..... 阮晓东,刘俊新(1457)

负荷交替法快速培养好氧硝化颗粒污泥的研究 ..... 沈娜,杨昌柱,濮文虹,罗应东(1464)

预加不同比例不同粒径好氧颗粒对 SBR 中好氧颗粒污泥形成的影响 ..... 熊光城,濮文虹,杨昌柱(1472)

同时回收氮磷提高碱性发酵污泥脱水性能的机制研究 ..... 张超,陈银广,顾国维(1479)

利用流式细胞仪分选技术研究湖泊真核超微藻的遗传多样性 ..... 谢薇薇,袁伊,王志伟,孔繁翔,史小丽(1485)

阿魏酸和香豆素对铜绿微囊藻的化感作用 ..... 郭亚丽,傅海燕,黄国和,高攀峰,柴天,严滨,廖欢(1492)

象山港国华电厂强增温海域浮游动物群落结构和多样性的时空特征 ..... 朱艺峰,黄简易,林霞,杨莹,邢超,严小军(1498)

环氧树脂降解嗜盐菌的筛选及其处理高盐环氧树脂废水的特性研究 ..... 王进,徐真,彭书传,夏明山,岳正波,陈天虎(1510)

铜绿假单胞菌胞内酶粗提液对十溴联苯醚的降解 ..... 史广宇,尹华,叶锦韶,彭辉,张娜,何宝燕(1517)

酵母提取物对葡萄糖发酵生产生物破乳菌 *Alcaligenes* sp. S-XJ-1 的影响 ..... 黄翔峰,王凯,黎明霞,王彩林,陆丽君,刘佳(1524)

玉米秸秆厌氧降解复合菌系的微生物群落结构 ..... 乔江涛,郭荣波,袁宪正,师晓爽,许晓晖,范晓蕾,邱艳玲(1531)

红霉素对产甲烷菌的抑制及其驯化 ..... 刘子旭,孙力平,李玉友,邱春生(1540)

4 种 NAPLs 污染物在二维砂箱中的指进锋面形态特征研究 ..... 杨宾,李慧颖,伍斌,杜晓明,李发生(1545)

污灌区土壤中多环芳烃的垂直分布及可能来源 ..... 姚林林,张彩香,李佳乐,廖小平,王焰新(1553)

呼和浩特市不同功能区土壤重金属污染特征及评价 ..... 郭伟,孙文惠,赵仁鑫,赵文静,付瑞英,张君(1561)

水稻光合同化碳在土壤不同粒径、密度分组中的分配特征 ..... 李苗苗,聂三安,陈晓娟,罗璐,朱捍华,石辉,葛体达,童成立,吴金水(1568)

亚热带不同稻田土壤微生物量碳的剖面分布特征 ..... 盛浩,周萍,袁红,廖超林,黄运湘,周清,张杨珠(1576)

施用堆腐有机肥对水稻土中六氯苯脱氯降解影响 ..... 刘翠英,蒋新(1583)

螯合剂和生物表面活性剂对 Cu、Pb 污染壤土的淋洗修复 ..... 刘霞,王建涛,张萌,王力,杨亚提(1590)

不同温度下烧制的秸秆炭对可变电荷土壤吸附 Pb(II) 的影响 ..... 蒋田雨,姜军,徐仁扣,周立祥,王世梅(1598)

绿色木霉改性玉米秸秆溢油吸附剂的制备及其性能研究 ..... 蓝舟琳,彭丹,郭楚玲,朱超飞,薛秀玲,党志(1605)

改性成型层状氢氧化镁铝对不同水体中 PO<sub>4</sub><sup>3-</sup> 的脱除性能 ..... 邢坤,王海增(1611)

羧基化碳纳米管载铂催化剂对微生物燃料电池阴极氧还原性能的影响 ..... 涂丽杏,朱能武,吴平霄,李平,吴锦华(1617)

新型生物质活性炭烟气脱硫研究 ..... 刘洁岭,汤争光,陈杰,蒋文举,江霞(1623)

城市工业行业能源消费强度等级划分方法及应用 ..... 毛建素,马兰(1628)

厦门城市化进程中的居民食物碳消费及其环境负荷 ..... 闫祯,崔胜辉,李桂林,任引,徐礼来(1636)

《环境科学》征订启事(1283) 《环境科学》征稿简则(1332) 信息(1350,1509,1582,1644) 专辑征稿通知(1523)

# 北京夏冬季霾天气下气溶胶水溶性离子粒径分布特征

黄怡民<sup>1,2</sup>, 刘子锐<sup>1</sup>, 陈宏<sup>3</sup>, 王跃思<sup>1\*</sup>

(1. 中国科学院大气物理研究所, 北京 100029; 2. 重庆三峡学院化学与环境工程学院, 重庆 404100; 3. 西南大学资源环境学院, 重庆 400716)

**摘要:** 为研究北京夏、冬季霾粒子中水溶性离子的粒径谱分布, 并进一步分析其来源及形成机制, 于2009年夏季和冬季利用惯性撞击式8级采样器(Andersen)和石英微量振荡天平(TEOM)对北京城区大气气溶胶分别进行了为期2周的连续采样和监测, 并用离子色谱(IC)对气溶胶中的水溶性离子进行了分析. 结果表明, 夏季霾天 $PM_{10}$ 和 $PM_{2.5}$ 的质量浓度分别为 $(245.5 \pm 8.4) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(120.2 \pm 2.0) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 冬季霾天对应的数值分别为 $(384.2 \pm 30.2) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(252.7 \pm 47.1) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 无论夏季还是冬季, 霾天大气细粒子污染均十分严重. 细粒子中总水溶性离子(TWSS)的浓度霾天远高于对照天, 其中霾天浓度上升较快的是 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 和 $\text{NH}_4^+$ , 二次无机离子对霾天气的形成过程扮演重要作用. 除 $\text{NO}_3^-$ 外, 其余7种水溶性离子夏、冬季霾天粒径谱分布一致, 即, $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ 主要分布于 $PM_{1.0}$ 以下的细粒子模态, $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 主要分布于 $PM_{2.5}$ 以上的粗粒子模态, $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 和 $\text{K}^+$ 呈双模态分布; 夏季霾天 $\text{NO}_3^-$ 呈双模态分布, 而冬季则主要分布于细粒子中. 夏季霾天 $\text{SO}_4^{2-}$ 的平均质量中值粒径(MMAD)为 $0.64 \mu\text{m}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ 主要来自远程 $\text{SO}_2$ 的云内反应, 并且 $\text{SO}_2$ 表观转化率(SOR)高于对照天, 使得霾天光化学反应生成的细粒子远远高于对照天气过程; 冬季霾天 $\text{SO}_4^{2-}$ 的MMAD增至 $0.89 \mu\text{m}$ , 冬季因局地 $\text{SO}_2$ 排放并被非均相化学反应过程氧化为 $\text{SO}_4^{2-}$ 亦为北京大气细粒子的重要来源. 夏、冬季霾天 $\text{NO}_3^-$ 的MMAD分别为 $2.85 \mu\text{m}$ 和 $0.80 \mu\text{m}$ , 受到温度的影响,  $\text{NO}_3^-$ 夏、冬季节分别以硝酸钙和硝酸铵的形式存在于粗、细粒子中.

**关键词:** 气溶胶; 水溶性离子; 二次无机离子; 质量浓度谱分布; 霾天

中图分类号: X131; X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)04-1236-09

## Characteristics of Mass Size Distributions of Water-Soluble Inorganic Ions During Summer and Winter Haze Days of Beijing

HUANG Yi-min<sup>1,2</sup>, LIU Zi-rui<sup>1</sup>, CHEN Hong<sup>3</sup>, WANG Yue-si<sup>1</sup>

(1. Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 2. College of Chemistry and Environment Engineering, Chongqing Three Gorges University, Chongqing 404100, China; 3. College of Resources and Environment, Southwest University, Chongqing 400716, China)

**Abstract:** To investigate the size distribution characteristics of water soluble inorganic ions in haze days, the particle samples were collected by two Andersen cascade impactors in Beijing during summer and winter time and each sampling period lasted two weeks. On-line measurement of  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  using TEOM were also conducted at the same time. Sources and formation mechanism of water soluble inorganic ions were analyzed based on their size distributions. The results showed that average concentrations of  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  were  $(245.5 \pm 8.4) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  and  $(120.2 \pm 2.0) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  during summer haze days (SHD), and were  $(384.2 \pm 30.2) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  and  $(252.7 \pm 47.1) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  during winter haze days (WHD), which suggested fine particles predominated haze pollution episode in both seasons. Total water-soluble inorganic ions concentrations were higher in haze days than those in non-haze days, especially in fine particles. Furthermore, concentrations of secondary inorganic ions ( $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$  and  $\text{NH}_4^+$ ) increased quicker than other inorganic ions in fine particles during haze days, indicating secondary inorganic ions played an important role in the formation of haze pollution. Similar size distributions were found for all Sinorganic water soluble ions except for  $\text{NO}_3^-$ , during SHD and WHD.  $\text{SO}_4^{2-}$  and  $\text{NH}_4^+$  dominated in the fine mode ( $PM_{1.0}$ ) while  $\text{Mg}^{2+}$  and  $\text{Ca}^{2+}$  accumulated in coarse fraction,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  and  $\text{K}^+$  showed a bimodal distribution. For  $\text{NO}_3^-$ , however, it showed a bimodal distribution during SHD and a unimodal distribution dominated in the fine fraction was found during WHD. The average mass median aerodynamic diameter (MMAD) of  $\text{SO}_4^{2-}$  was  $0.64 \mu\text{m}$  in SHD, which suggested the formation of  $\text{SO}_4^{2-}$  was mainly attributed to in-cloud processes. Furthermore, a higher apparent conversion rate of sulfur dioxide (SOR) was found in SHD, indicating more fine particles were produced by photochemical reaction in haze days than that in non-haze days. The MMAD of  $\text{SO}_4^{2-}$  increased to  $0.89 \mu\text{m}$  in WHD, local emission of  $\text{SO}_2$  and the subsequently heterogeneous reaction became the main source of  $\text{SO}_4^{2-}$  during winter time. The average MMADs of  $\text{NO}_3^-$  were  $2.85 \mu\text{m}$  and  $0.80 \mu\text{m}$  in SHD and WHD, respectively. Influenced by the seasonal temperature difference,  $\text{NO}_3^-$  mainly existed in the form of calcium nitrate in coarse mode

收稿日期: 2012-06-13; 修订日期: 2012-09-17

基金项目: 国家自然科学基金创新研究群体科学基金项目(41021004); 北京市科技计划公益应用类项目(D09040903670902)

作者简介: 黄怡民(1986~), 女, 硕士研究生, 助教, 主要研究方向为大气环境与大气化学, E-mail: huangym@dq.cern.ac.cn

\* 通讯联系人, E-mail: wys@dq.cern.ac.cn

during SHD while the fine mode nitrate was associated with ammonium during WHD.

**Key words:** aerosol; water-soluble inorganic ions; secondary inorganic ions; mass size distribution; haze days

霾是大量极细微的干尘粒等均匀地浮游在空中,使水平能见度 < 10 km 空气普遍有混浊的现象<sup>[1]</sup>. 霾天气的出现与静稳天气下空气水平对流的通畅导致大气气溶胶和气体污染物大量聚集有关<sup>[2]</sup>. 霾天气的出现不仅导致大气能见度的显著降低,同时也严重影响空气质量和人体健康<sup>[3,4]</sup>. 研究表明<sup>[5]</sup>,大气气溶胶对可见光的散射和吸收尤其是散射作用是能见度降低的首要原因. 大气气溶胶的散射消光作用受到其自身物理性质(包括粒径分布和质量浓度等)及其化学成分的影响,其中,水溶性物质(硝酸盐,硫酸盐和铵盐等)<sup>[3,6]</sup>及含碳组分(元素碳及有机碳)是导致霾天能见度降低的主要化学成分<sup>[7]</sup>.

受气象条件以及污染源排放的季节、周、日变化综合影响,北京地区的气溶胶污染呈现鲜明的季节特征<sup>[8,9]</sup>. 夏季光化学反应强烈,有利于二次粒子(硫酸盐、硝酸盐和铵盐等)的形成<sup>[10]</sup>,细粒子污染严重,加之夏季相对湿度高,细粒子吸湿凝结增强光散射,且高湿度不利于气溶胶扩散,导致北京夏季能见度降低<sup>[11,12]</sup>. 受采暖的影响,冬季大气污染物的排放明显增加,SO<sub>2</sub>和细粒子污染严重<sup>[13,14]</sup>,再加上冬季大气气象条件较为稳定,少降水,大气的湿沉降能力较弱,不利于污染物的扩散,因此夏季和冬季是北京地区霾天气出现频率较高的两个季节. 目前国内对于霾天水溶性离子成分谱的研究,主要集中在珠江三角洲地区<sup>[15,16]</sup>,北京地区开展的研究相对较少,如 Wang 等<sup>[17]</sup>研究了北京 2001~2004 年春季霾天水溶性离子的浓度, Sun 等<sup>[18]</sup>研究了北京冬季一次雾霾天气过程中的水溶性离子的浓度分布情况等,上述研究均仅针对单一粒径段内的气溶胶如 PM<sub>2.5</sub>,对不同粒径段气溶胶中水溶性离子的研究较少,难以认识霾天关键水溶性离子如 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>等的形成机制. 本研究针对夏、冬季大气气溶胶的不同形成机制,对其霾天气溶胶和水溶性离子的质量浓度谱进行分析,有利于认识霾天在不同季节的污染特征,以期有效为控制霾天气溶胶的污染提供必要的科学依据.

## 1 材料与方法

### 1.1 采样地点与采样方法

采样地点位于中国科学院大气物理研究所 325

m 气象观测铁塔东侧的办公楼楼顶(116°22'E, 39°58'N),距地面高度约 10 m. 该地点位于北京北三环和北四环之间,其北侧约 150 m 为东西方向的城市交通主干道北土城西路,东侧约 200 m 为南北方向的八达岭高速,周围 5 km 以内为 30~60 m 高度的建筑群,属于典型的城区环境.

利用多级撞击式采样器(Andersen, Series20-800)分别于 2009 年夏季(2009-08-11~2009-08-21)和冬季(2009-12-25~2009-12-29 和 2010-01-18~2010-01-23)采集大气气溶胶样品, Andersen 8 级采样器粒子 50% 切割等效空气动力学粒径(EAD)分别为 9.0、5.8、4.7、3.3、2.1、1.1、0.65 和 0.43 μm,采样流速为 28.3 L·min<sup>-1</sup>,采样滤膜使用纤维素聚酯膜(美国热电公司). 采样时间从当日 09:00~次日 08:30,利用两套采样器轮流采样,每次收集样品后对采样器进行超声清洗并烘干,留待第二天使用,每次更换采样膜的时间约为 30 min,共采集 24 组样品. 利用美国 Rupprecht & Patashnik 公司生产的双通道颗粒物质量浓度在线分析仪器 RP1405DF<sup>[19]</sup>、美国热电公司生产的 SO<sub>2</sub>、NO-NO<sub>2</sub>-NO<sub>x</sub>和 O<sub>3</sub> 环境监测仪<sup>[20]</sup>,以及芬兰 Vaisala 公司生产的 Milos520 自动气象站<sup>[21]</sup>分别对大气中的 PM<sub>2.5</sub>和 PM<sub>10</sub>质量浓度、SO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>浓度、研究时段的气象因子进行了同步观测,采样时段的气象条件见表 1. 其中,能见度数据来源于 Weather Underground (<http://www.wunderground.com>).

### 1.2 样品分析

纤维聚酯膜样品置于冰箱(-18℃)避光保存至分析. 分析前取 1/2 的纤维聚酯膜放入塑料瓶中,加入 30 mL 去离子水(18.2 MΩ·cm),超声 30 min 浸提气溶胶中的水溶性成分. 浸提液通过滤膜(孔径 0.45 μm,德国 Membrana 公司, Micro PES)后使用 ICS-90 离子色谱(美国戴安公司)分析样品中阳离子(Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>)和阴离子(Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)的含量. 阳离子检测采用 CS12A 色谱柱, CSRS II 抑制器,淋洗液为 22 mmol·L<sup>-1</sup>的 MSA,流速为 1 mL·min<sup>-1</sup>. 阴离子检测采用 Dionex AS14A 分离柱, AMMS III 抑制器,淋洗液为 3.5 mmol·L<sup>-1</sup>Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>和 1 mmol·L<sup>-1</sup>NaHCO<sub>3</sub>,流速 1 mL·min<sup>-1</sup>. Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>的检测限分别为:0.001、0.001、

表 1 采样期间的气象条件及污染物浓度

Table 1 Meteorological condition and the concentration of pollutants during sampling periods

项目	夏季		冬季	
	霾天	对照天	霾天	对照天
PM <sub>2.5</sub> /μg·m <sup>-3</sup>	120.2 ± 2.0	40.4 ± 11.5	252.7 ± 47.1	54.7 ± 15.2
PM <sub>10</sub> /μg·m <sup>-3</sup>	245.5 ± 8.4	108.3 ± 34.3	384.2 ± 30.2	134.4 ± 47.3
SO <sub>2</sub> /μg·m <sup>-3</sup>	7.7 ± 0.1	6.2 ± 0.8	137.4 ± 4.7	41.5 ± 15.2
NO <sub>2</sub> /μg·m <sup>-3</sup>	18.3 ± 0.3	17.5 ± 2.6	104.0 ± 20.9	39.0 ± 9.4
O <sub>3</sub> /μg·m <sup>-3</sup>	143.1 ± 43.0	62.8 ± 20.5	5.9 ± 0.6	25.7 ± 9.6
能见度/km	4.9 ± 0.1	21.7 ± 8.7	4.0 ± 1.5	20.7 ± 8.1
温度/℃	31.0 ± 0.5	28.3 ± 2.8	-1.0 ± 4.0	-4.0 ± 2.8
相对湿度/%	57.5 ± 2.6	51.2 ± 8.3	48.7 ± 9.2	24.5 ± 3.6
风速/m·s <sup>-1</sup>	1.1 ± 0.2	1.0 ± 0.3	1.2 ± 0.3	2.5 ± 0.8

0.002、0.001、0.003、0.002、0.005、0.004 mg·L<sup>-1</sup>.

## 2 结果与讨论

### 2.1 PM<sub>2.5</sub>、PM<sub>10</sub>质量浓度

本实验中霾与对照天的定义分别为:日均能见度 < 10 km 且日均相对湿度 < 90%,同时排除降水等其它能导致低能见度事件的观测日为霾天<sup>[22]</sup>;而日均能见度 > 10 km 且无雨、雪、雾等特殊天气的观测日为对照天. 2009 年夏季观测期间 8 月 13 ~ 15 日 PM<sub>2.5</sub> 的日均值浓度分别为 118.7、122.5、119.6 μg·m<sup>-3</sup>,其对应的能见度为 4.8、4.9、4.9 km;而冬季观测期间的 12 月 28 日和 1 月 18 ~ 19 日,PM<sub>2.5</sub> 的日均值浓度分别为 198.3、280.3、279.6 μg·m<sup>-3</sup>,其对应的能见度数据为 5.6、3.5、2.8 km. 上述观测日 PM<sub>2.5</sub> 的平均浓度均严重超过 2016 年拟执行的 PM<sub>2.5</sub> 二级标准(日均值 75 μg·m<sup>-3</sup>),并且能见度均 < 10 km,本研究将其定义为霾天,观测期间的其它天气定义为对照天,夏、冬季节统计天数分别为 5 d(去除夏季降雨天 3 d)和 8 d. 从气象因子的数值大小来看(表 1),本研究选取的观测时段基本反映了北京地区夏、冬季季节特征.

夏季霾与对照天 PM<sub>2.5</sub> 的质量浓度分别为 (120.2 ± 2.0) μg·m<sup>-3</sup> 和 (40.4 ± 11.5) μg·m<sup>-3</sup>,冬季分别为 (252.7 ± 47.1) μg·m<sup>-3</sup> 和 (54.7 ± 15.2) μg·m<sup>-3</sup>. 夏季霾与对照天 PM<sub>10</sub> 的质量浓度分别为 (245.5 ± 8.4) μg·m<sup>-3</sup> 和 (108.3 ± 34.3) μg·m<sup>-3</sup>,冬季为 (384.2 ± 30.2) μg·m<sup>-3</sup> 和 (134.4 ± 47.3) μg·m<sup>-3</sup>. 夏、冬季霾天 PM<sub>2.5</sub> 的浓度显著高于对照天,分别为对照天的 3.0 和 4.6 倍,而 PM<sub>10</sub> 分别为对照天的 2.3 和 2.9 倍,并且冬季霾天气溶胶污染更为严重,PM<sub>2.5</sub> 质量浓度为夏季的 2.1 倍,而 PM<sub>10</sub>

为 1.6 倍. 夏、冬季霾天 PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> 分别为 0.49 和 0.66,而对照天对应的比值分别为 0.37 和 0.41,霾天细粒子在 PM<sub>10</sub> 中所占比重增加,说明细粒子对霾天的形成有着重要的作用. 虽然冬季霾天 PM<sub>2.5</sub> 的浓度高于夏季霾天,但 2 个季节霾天的平均能见度却相差不大(表 1),这表明霾天能见度的降低可能与气溶胶中的化学成分组成有关. 宋宇等<sup>[9]</sup> 研究也指出,霾天能见度的下降不仅与气溶胶质量浓度的上升有关,同时也与气溶胶中的化学成分的变化密切相关.

### 2.2 水溶性离子质量浓度

通常把空气动力学直径 2.5 μm 作为粗、细粒子的分界. 由于 Andersen 采样器没有 2.5 μm 的切割粒径,本研究把空气动力学直径 2.1 μm 作为粗、细粒子的分界,将空气动力学直径 < 2.1 μm 的粒子 (PM<sub>2.1</sub>) 称为细粒子, > 2.1 μm 而小于 9 μm 的粒子 (PM<sub>2.1-9</sub>) 称为粗粒子.

表 2 显示了夏、冬季节霾与对照天气溶胶中水溶性离子的平均浓度. SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 是霾天最主要的水溶性离子,与对照天相比,其浓度在霾天上升速度较其他水溶性离子明显要快. 夏季霾天二次无机离子 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 的平均浓度分别为 (31.7 ± 9.1)、(26.9 ± 4.2) 和 (24.2 ± 3.5) μg·m<sup>-3</sup>,分别是对照天的 3.0、1.6 和 3.1 倍. SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 主要分布在细粒子中,并且霾天的比例更高,分别达到 84% 和 76%,而 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 主要分布在粗粒子中,霾与对照天的比例较为接近. 其它 5 种水溶性离子 (Na<sup>+</sup>、Cl<sup>-</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup> 和 Ca<sup>2+</sup>) 的平均浓度较低,并且霾与对照天的比例十分接近,除了 K<sup>+</sup> 主要分布在细粒子中,其余 4 种水溶性离子均主要分布在粗粒子中. 与夏季相比,冬季霾天二次无机离子的浓度进一步提高. SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 的平均浓度分别达到 (38.8 ±

11.0)、 $(39.0 \pm 17.5)$  和  $(23.8 \pm 10.4) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 分别是对照天的 2.3、3.7 和 7.7 倍. 霾与对照天 3 种二次无机离子的浓度分布存在差异, 对照天时这 3 种二次无机离子在粗细粒子中的浓度相当, 而霾天时其在细粒子中的比例明显提高, 尤其是

$\text{NH}_4^+$ , 在细粒子中的比例由对照天的 39% 提高到霾天的 90%. 相比较夏季, 冬季  $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  和  $\text{Ca}^{2+}$  的浓度均有不同程度的提高, 其中  $\text{Cl}^-$  上升的比例最大, 冬季采暖期间的燃煤排放是  $\text{Cl}^-$  上升的主要原因.

表 2 夏、冬季气溶胶中水溶性离子的平均浓度及其霾天与对照天浓度的比值

Table 2 Average concentrations of water-soluble inorganic ions and ratio values of water-soluble inorganic ions of haze days /the corresponding non-haze days

项目 <sup>1)</sup>	夏季			冬季		
	霾天/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	对照天/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	霾/对照天	霾天/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	对照天/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	霾/对照天
$c(\text{SO}_4^{2-})$	$31.7 \pm 9.1$	$10.6 \pm 0.6$	3.0	$38.8 \pm 11.0$	$16.7 \pm 1.9$	2.3
$c_f(\text{SO}_4^{2-})$	$26.7 \pm 8.0$	$6.4 \pm 0.8$	4.2	$26.9 \pm 9.1$	$8.2 \pm 1.6$	3.3
$P_f(\text{SO}_4^{2-})$	84	60		69	49	
$c(\text{NO}_3^-)$	$26.9 \pm 4.2$	$16.5 \pm 3.5$	1.6	$39.0 \pm 17.5$	$10.4 \pm 0.9$	3.7
$c_f(\text{NO}_3^-)$	$11.6 \pm 1.4$	$6.4 \pm 0.5$	1.8	$28.6 \pm 12.8$	$5.4 \pm 1.0$	5.3
$P_f(\text{NO}_3^-)$	43	39		73	52	
$c(\text{NH}_4^+)$	$24.2 \pm 3.5$	$7.8 \pm 2.7$	3.1	$23.8 \pm 10.4$	$3.1 \pm 1.4$	7.7
$c_f(\text{NH}_4^+)$	$18.3 \pm 2.8$	$4.3 \pm 1.6$	4.3	$21.3 \pm 8.6$	$1.2 \pm 1.4$	17.8
$P_f(\text{NH}_4^+)$	76	55		90	39	
$c(\text{Na}^+)$	$3.2 \pm 0.6$	$4.4 \pm 2.1$	0.7	$8.5 \pm 3.6$	$6.4 \pm 1.5$	1.3
$c_f(\text{Na}^+)$	$1.4 \pm 0.2$	$2.0 \pm 0.9$	0.7	$3.1 \pm 0.9$	$2.8 \pm 0.9$	1.1
$P_f(\text{Na}^+)$	44	45		37	44	
$c(\text{Cl}^-)$	$3.0 \pm 1.1$	$3.4 \pm 1.9$	0.9	$16.4 \pm 4.3$	$6.2 \pm 1.5$	2.7
$c_f(\text{Cl}^-)$	$1.2 \pm 0.3$	$1.6 \pm 1.3$	0.8	$9.3 \pm 0.7$	$3.4 \pm 1.0$	2.7
$P_f(\text{Cl}^-)$	40	47		57	55	
$c(\text{K}^+)$	$0.8 \pm 0.6$	$1.1 \pm 0.6$	0.7	$1.4 \pm 0.3$	$0.7 \pm 0.3$	2.0
$c_f(\text{K}^+)$	$0.5 \pm 0.4$	$0.6 \pm 0.3$	0.8	$0.9 \pm 0.1$	$0.4 \pm 0.2$	2.3
$P_f(\text{K}^+)$	64	56		62	56	
$c(\text{Mg}^{2+})$	$3.3 \pm 0.2$	$3.2 \pm 0.5$	1.0	$5.3 \pm 0.1$	$6.0 \pm 1.7$	0.9
$c_f(\text{Mg}^{2+})$	$1.2 \pm 0.1$	$1.1 \pm 0.2$	1.1	$2.2 \pm 0.1$	$2.2 \pm 1.1$	1.0
$P_f(\text{Mg}^{2+})$	36	35		41	37	
$c(\text{Ca}^{2+})$	$15.1 \pm 1.2$	$12.3 \pm 3.4$	1.2	$23.3 \pm 10.0$	$28.4 \pm 9.7$	0.8
$c_f(\text{Ca}^{2+})$	$3.3 \pm 1.2$	$2.5 \pm 0.8$	1.3	$7 \pm 2.2$	$6.9 \pm 4.2$	1.0
$P_f(\text{Ca}^{2+})$	22	20		30	24	

1)  $c(n)$ : TSP 中水溶性离子浓度;  $c_f(n)$ : 细粒子中水溶性离子浓度;  $P_f(n)$ : 细粒子中水溶性离子占总水溶性离子的百分比

本研究没有同步测定 Andersen 各级膜样品上气溶胶的质量浓度, 根据以往的研究, 撞击式滤膜采样法所测的大气气溶胶的质量浓度约为微量振荡天平 (TEOM) 所测值的 1.3 倍<sup>[23]</sup>, 因此利用表 1 中  $\text{PM}_{2.5}$  和  $\text{PM}_{10}$  的数据, 可以估算出水溶性离子在  $\text{PM}_{2.5}$  和  $\text{PM}_{10}$  中所占的比例. 夏季霾与对照天水溶性离子在  $\text{PM}_{2.5}$  中所占的比例分别为 0.41 和 0.48, 冬季分别为 0.30 和 0.43; 夏季霾与对照天水溶性离子在  $\text{PM}_{10}$  中所占的比例分别为 0.31 和 0.36, 冬季分别为 0.29 和 0.35, 水溶性离子的质量浓度主要集中在细粒子中. 本研究得到的水溶性离子在质量浓度中的比例低于之前 Wang 等<sup>[17]</sup> 和 Sun 等<sup>[18]</sup> 在北京地区的观测结果, 导致此种结果的原因可能来自以下两方面: 其一是 TEOM 法所测的  $\text{PM}_{2.5}$  和  $\text{PM}_{10}$  会由于检测不到一些挥发或半挥发物质而使观

测结果偏小, 并且挥发性物质的质量存在变化, 因此以 1.3 倍校正难以反映实际的气溶胶质量浓度; 其二是霾天含碳物质 (OC、EC) 可能比水溶性离子增加的量更多. 例如本研究观测结果中, 夏季霾与对照天水溶性离子在  $\text{PM}_{2.5}$  和  $\text{PM}_{10}$  所占的比例均高于冬季对应天气的比例, 其原因可能是冬季采暖期含碳物质排放量增加而导致水溶性离子在大气气溶胶中所占的比例相对减少<sup>[24]</sup>.

### 2.3 水溶性离子质量浓度谱分布

图 1 显示了夏、冬季霾与对照天主要水溶性离子的质量浓度谱分布特征. 除 3 种二次无机离子外 ( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  和  $\text{NH}_4^+$ ), 霾天其余 5 种水溶性离子的质量浓度谱分布特征与对照天基本相似. 根据离子质量浓度谱分布的相似性可以将 8 种水溶性离子分为 3 类: ① 主要在  $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$  出

现峰值的细模态离子:  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NH}_4^+$ , 但对照天则呈现双模态分布; ②主要在  $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$  出现峰值的粗模态离子:  $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ ; ③在  $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$  和  $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$  分别出现峰值的双模态离子:  $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{K}^+$ , 但冬季霾天  $\text{NO}_3^-$  则呈现明

显的细模态分布. 从上面分析可知, 夏、冬季霾天与对照天水溶性离子粒径分布的差异主要与二次无机离子有关, 本研究将在如下的部分通过分析二次无机离子的粒径分布特征对其形成机制进行进一步讨论.

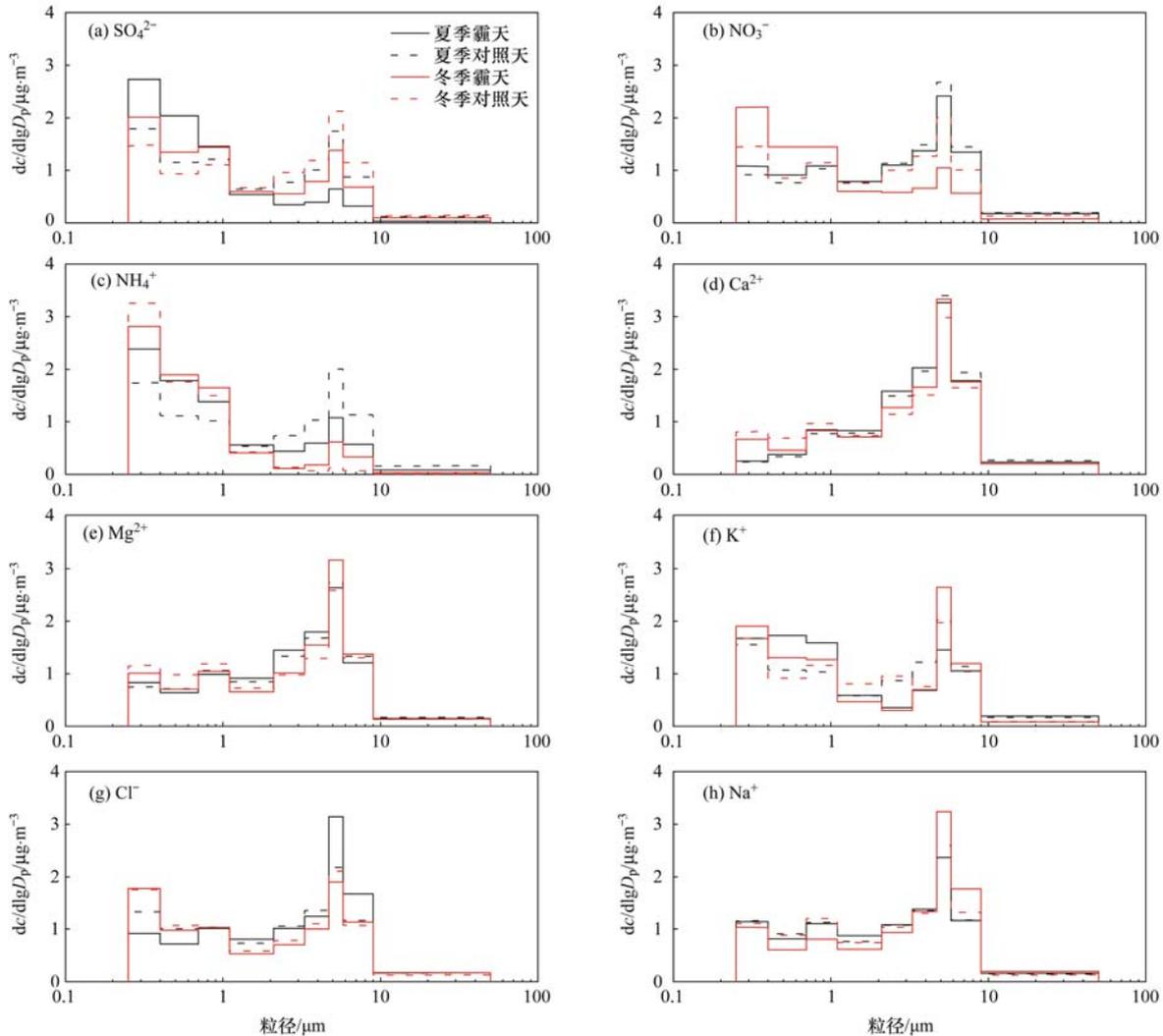


图1 夏、冬季霾天与对照天水溶性离子粒径分布特征

Fig. 1 Size distributions of water-soluble inorganic ions in summer and winter haze/non-haze days

### 2.3.1 $\text{SO}_4^{2-}$ 粒径分布特征

夏季霾天  $\text{SO}_4^{2-}$  主要呈细模态分布, 平均有 84% 的  $\text{SO}_4^{2-}$  分布在细粒子中, 而对照天的比例为 60% (表 2). 大气中的  $\text{SO}_4^{2-}$  主要由  $\text{SO}_2$  通过均相与非均相反应生成. 夏季霾天  $\text{SO}_4^{2-}$  的平均质量中值粒径 (MMAD) 为  $0.64 \mu\text{m}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  主要分布在液滴模态<sup>[25]</sup>, Meng 等<sup>[26]</sup> 将粒径在  $0.70 \mu\text{m}$  左右形成的  $\text{SO}_4^{2-}$  归结为云内反应, 因为液滴模态的存在与来自凝结模态的吸湿增长和  $\text{SO}_2$  的气相/液相反应无关. 夏季对照天  $\text{SO}_4^{2-}$  的 MMAD 为  $1.10 \mu\text{m}$ , 来自云内

反应的  $\text{SO}_4^{2-}$  减少. 冬季  $\text{SO}_4^{2-}$  不仅在  $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$  出现峰值, 同时在  $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$  也出现峰值, 霾天平均有 69% 的  $\text{SO}_4^{2-}$  分布在细粒子中, 而对照天则为 49%. 冬季霾天  $\text{SO}_4^{2-}$  的 MMAD 为  $0.89 \mu\text{m}$ , 而对照天为  $1.89 \mu\text{m}$ , 冬季  $\text{SO}_4^{2-}$  的质量中值粒径向更大粒径段移动, 表现出与夏季不同的形成机制. 从图 1 可以看出,  $\text{SO}_4^{2-}$  在粗粒子中出现峰值的粒径段与金属离子 ( $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Na}^+$  和  $\text{K}^+$ ) 一致, 同时两者在细粒径段也有明显的相关性, 因此, 冬季  $\text{SO}_4^{2-}$  的形成主要与  $\text{SO}_2$  在金属离子催化下的非均

相反反应有关<sup>[27]</sup>.

许多学者<sup>[18,28]</sup>用硫表现转化率(SOR)来表示大气中SO<sub>2</sub>向SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>的转化程度,SOR值越高表示SO<sub>2</sub>气体更多的转化为二次气溶胶,Ohta等<sup>[29]</sup>研究证实,当SOR值>0.10时,大气中就发生了SO<sub>2</sub>的光化学氧化.图2给出了夏、冬季霾与对照天各个粒径段上的SOR值.从中可以看出,夏季霾与对照天细粒子粒径段的SOR值均大于0.10,且霾天的SOR值明显高于对照天,说明夏季SO<sub>2</sub>的光化学反应较强,同时霾天较高的温度和相对湿度以及较高

的O<sub>3</sub>浓度更有利于SO<sub>2</sub>的二次转化<sup>[30]</sup>,因此使得霾天光化学反应生成的细粒子远远高于对照天气过程.冬季霾与对照天SOR值均较低,均值分别仅为0.02和0.01,冬季霾天SO<sub>2</sub>的浓度为夏季霾天的17.8倍(表1),而SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>的浓度却与夏季接近,说明冬季SO<sub>2</sub>的二次转化效率远低于夏季.另外,从SOR值可以判断冬季SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>的形成并非来自云内反应,因为SO<sub>2</sub>的云内反应速率能达到100%·h<sup>-1</sup><sup>[26]</sup>,推测SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>的形成主要来自非均相反应,这与上文分析的结果是一致的.

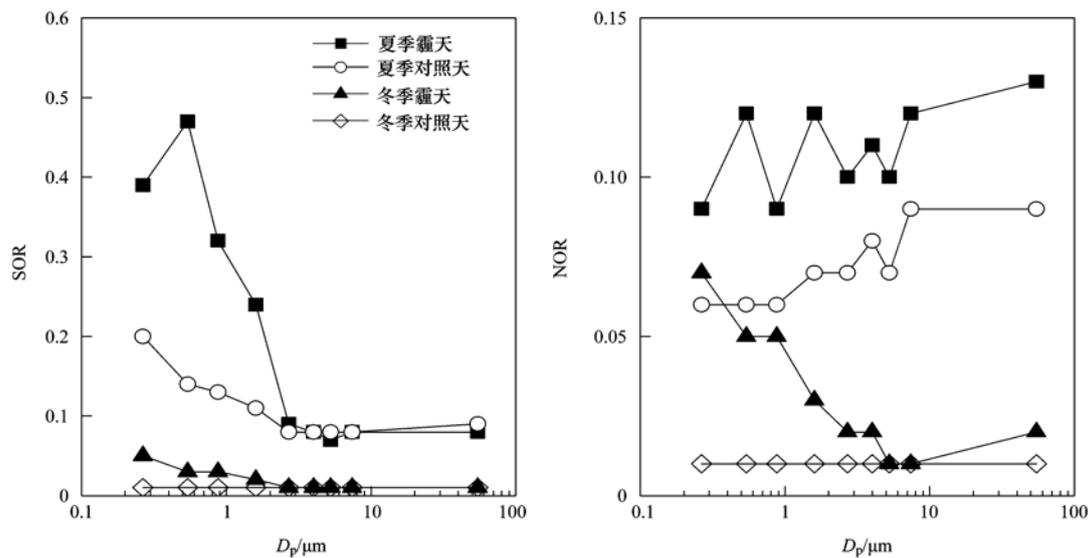
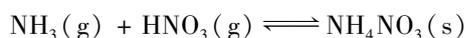


图2 夏、冬季硫和氮表现转化率(SOR和NOR)粒径分布

Fig. 2 Size distributions of apparent conversion rate (SOR and NOR) in summer and winter

### 2.3.2 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 粒径分布特征

夏季霾与对照天NO<sub>3</sub><sup>-</sup>均呈明显的双模态分布,分别在0.43~0.65 μm和4.7~5.8 μm粒径段出现峰值.霾与对照天NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的质量中值粒径(MMAD)分别为2.85 μm和3.34 μm,NO<sub>3</sub><sup>-</sup>主要分布在粗粒子模态.冬季霾NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的粒径分布呈现细模态分布,对照天与夏季呈现类似的双模态分布,NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的MMAD向更小的粒径段移动,分别为0.80 μm和1.89 μm,NO<sub>3</sub><sup>-</sup>主要分布在细粒子中,细粒子中NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的主要来源是NH<sub>3</sub>(g)和HNO<sub>3</sub>(g)发生气相反应生成NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>.气溶胶中NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的粒径分布与HNO<sub>3</sub>/NH<sub>3</sub>/NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>的热动力平衡过程有关,如下式所示:



平衡受温度、湿度、(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>浓度、HNO<sub>3</sub>(g)浓度、NH<sub>3</sub>(g)浓度等因素的共同影响<sup>[25,31,32]</sup>.夏季温度较高,NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>容易分解生成NH<sub>3</sub>(g)和

HNO<sub>3</sub>(g),由于气溶胶表面的酸性随着粒径变小而逐渐增强,所以相对而言HNO<sub>3</sub>(g)易被吸附在粗粒子上并与粗粒子中的CaCO<sub>3</sub>、K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>或NaCl等反应生成硝酸盐而使NO<sub>3</sub><sup>-</sup>主要分布在粗粒子中<sup>[27,33]</sup>.从图1可以看出,夏季NO<sub>3</sub><sup>-</sup>在4.7~5.8 μm粒径段出现的峰值与Ca<sup>2+</sup>、Na<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>和K<sup>+</sup>在该粒径段出现的峰值一致,进一步通过相关性分析发现NO<sub>3</sub><sup>-</sup>与Ca<sup>2+</sup>相关性较强,而与其它3种阳离子的相关性较弱,同时Ca<sup>2+</sup>的质量浓度远高于其它3种阳离子,因此可以判断夏季粗粒子中NO<sub>3</sub><sup>-</sup>主要以硝酸钙的形式存在.而冬季较低的温度有利于NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>以颗粒态形式存在,从而使NO<sub>3</sub><sup>-</sup>主要分布在细粒子中.通过相关性分析,发现夏、冬季节NO<sub>3</sub><sup>-</sup>在细/粗粒子中浓度的比值与相对湿度呈较好的正相关,r值分别为0.87和0.90,这与图1中霾天NO<sub>3</sub><sup>-</sup>在细粒子中的分布要高于其相对应的对照天一致,这说明相对湿度也会影响NO<sub>3</sub><sup>-</sup>在粗细粒子

中的分布.

常用氮表观转化率(NOR)来表示大气中 $\text{NO}_2$ 向 $\text{NO}_3^-$ 的转化程度.图2显示了夏、冬季霾与对照天NOR在各个粒径段上的分布情况.从图2中可以看出,夏季霾天各个粒径段上的NOR均高于对照天,并且粗粒子中的NOR值要高于细粒子,这与Wang等<sup>[17]</sup>以往在北京地区的研究结果相同.冬季霾天各个粒径段上的NOR同样均高于对照天,尤其是在细粒径段,说明霾天氮氧化物更易转化为 $\text{NO}_3^-$ .此外,从NOR值的大小来看,夏季霾与对照天NOR的平均值分别为0.11和0.07,而冬季对应天气的NOR值分别为0.03和0.01,夏季 $\text{NO}_2$ 的转化率明显高于冬季.值得注意的是,尽管冬季氮氧化物的转化率降低,但冬季霾天 $\text{NO}_3^-$ 的浓度却高于 $\text{SO}_4^{2-}$ 的浓度,表现出与夏季相反的变化特征.以往的研究表明,当 $\text{NO}_x$ 的排放量超过大气中自由基的含量时, $\text{NO}_x$ 向 $\text{HNO}_3$ 的光化学转化反应将成为自由基的主要汇<sup>[34]</sup>.观测期间冬季霾天 $\text{NO}_x$ 平均浓度较高( $206 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ),超过了同时段 $\text{SO}_2$ 的平均浓度( $137 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).在高浓度的 $\text{NO}_x$ 存在情况下,大气中的自由基如OH和 $\text{H}_2\text{O}_2$ 等被迅速消耗,从而导致 $\text{SO}_2$ 向 $\text{SO}_4^{2-}$ 的气相转化速率变慢<sup>[35]</sup>,上述分析进一步支持了前文所述冬季 $\text{SO}_4^{2-}$ 的形成主要来自非均相反应而非气相反应的结论.

### 2.3.3 $\text{NH}_4^+$ 粒径分布特征

夏、冬季霾与对照天 $\text{NH}_4^+$ 均呈细模态分布,霾天平均有76%和90%的 $\text{NH}_4^+$ 分布在细粒子中,而对照天则为56%和77%. $\text{NH}_3$ 与酸性气体 $\text{H}_2\text{SO}_4$ 和 $\text{HNO}_3$ 反应生成的 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 $\text{NH}_4\text{HSO}_4$ 和 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 等是大气中 $\text{NH}_4^+$ 存在的主要形式,也是大气二次粒子的重要来源,所以气溶胶中 $\text{NH}_4^+$ 的粒径分布特征,往往由 $\text{SO}_4^{2-}$ 和 $\text{NO}_3^-$ 的粒径分布决定<sup>[36]</sup>.夏季霾与对照天 $\text{NH}_4^+$ 的MMAD值分别为 $0.93 \mu\text{m}$ 和 $1.33 \mu\text{m}$ ,分别和夏季霾天与对照天 $\text{SO}_4^{2-}$ 的MMAD值接近,在 $\text{H}_2\text{SO}_4$ 存在的条件下, $\text{NH}_3$ 会优先与 $\text{H}_2\text{SO}_4$ 结合反应生成 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 或 $\text{NH}_4\text{HSO}_4$ <sup>[37]</sup>,因此推测夏季气溶胶中 $\text{NH}_4^+$ 主要与 $\text{SO}_4^{2-}$ 结合而存在于细粒子中.冬季霾与对照天 $\text{NH}_4^+$ 的MMAD值分别为 $0.59 \mu\text{m}$ 和 $0.47 \mu\text{m}$ ,受气相反应速率降低的影响,冬季细粒子中 $\text{SO}_4^{2-}$ 浓度降低,因此细粒子中的 $\text{NH}_4^+$ 并不能完全被 $\text{SO}_4^{2-}$ 结合,在充足的 $\text{NO}_3^-$ 存在条件下,过量的 $\text{NH}_4^+$ 进一步与 $\text{NO}_3^-$ 结合生成 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ .

$\text{NH}_4^+$ 在 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 粒径段也出现了一个小峰值,粗粒子中的 $\text{NH}_4^+$ 可能部分来源于过量 $\text{NH}_3$ 存在时, $\text{NH}_3$ 与海盐和土壤颗粒物中的 $\text{SO}_4^{2-}$ 和 $\text{NO}_3^-$ 发生的反应.从图1可以看出, $\text{SO}_4^{2-}$ 和 $\text{NO}_3^-$ 在对应的粒径段也出现了峰值,进一步通过相关性分析发现,夏季粗粒子中的 $\text{NH}_4^+$ 与 $\text{NO}_3^-$ 的相关性最强,而冬季, $\text{NH}_4^+$ 则与 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 均呈显著的正相关,这说明夏季粗粒子中的 $\text{NH}_4^+$ 主要以 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 的形式存在,而冬季以 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 和 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 存在.

### 2.3.4 其它离子

$\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 主要呈粗模态分布,峰值出现在 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 粒径段,主要来自于土壤风沙尘和建筑扬尘<sup>[38,39]</sup>. $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 浓度均呈现出冬季高于夏季的现象,这与冬季干燥的气候环境和较高的风速将地面扬尘吹起有关.冬季霾天 $\text{K}^+$ 的质量浓度谱特征与对照天差异明显,主要表现为霾天 $\text{PM}_{1.0}$ 以下细粒径段浓度显著增加,这可能与冬季采暖期间的生物质燃烧有关;而夏季霾天与对照天 $\text{K}^+$ 的粒径分布则基本一致. $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 的粒径分布相似,呈明显的双模态,分别在 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 和 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 粒径段出现峰值.相比夏季,冬季 $\text{Cl}^-$ 在细粒径段( $<1 \mu\text{m}$ )的浓度明显升高,冬季采暖期间的燃煤排放是其重要来源.而 $\text{Na}^+$ 在各个粒径段,夏季和冬季的浓度均差别不大.

## 3 结论

(1)北京地区夏、冬季节,尤其是冬季霾天大气气溶胶污染严重,夏季霾天 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{PM}_{10}$ 分别为对照天的3.0和2.3倍,而冬季霾天 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{PM}_{10}$ 分别为对照天的4.6和2.9倍,细粒子快速增长是霾天气溶胶污染的主要特征.霾天水溶性离子浓度明显高于其对应的对照天,受采暖的影响,冬季霾天水溶性离子的浓度高于夏季霾天.霾天 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 和 $\text{NH}_4^+$ 的浓度的升高对细粒子浓度的升高有直接作用,另外,冬季霾天细粒子浓度的升高除二次无机离子的贡献外,含碳物质的排放可能占据主导地位.

(2)霾与对照天二次无机离子( $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 和 $\text{NH}_4^+$ )质量浓度谱分布差异明显,霾天 $\text{SO}_4^{2-}$ 和 $\text{NH}_4^+$ 均呈现细模态分布,对照天则呈双模态分布,受温度影响,夏季 $\text{NO}_3^-$ 呈双模态分布,冬季则呈细模态分布. $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 质量浓度谱呈粗模态分布, $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{K}^+$ 则呈双模态分布.

(3)夏季霾天硫、氮转化率明显增强,光化学反应强于冬季.同时夏季霾天光化学反应生成的细粒子远远高于对照天气过程.夏季  $\text{SO}_4^{2-}$  主要来自  $\text{SO}_2$  的云内反应,冬季因局地  $\text{SO}_2$  排放并被非均相化学反应过程氧化为  $\text{SO}_4^{2-}$  成为北京大气细粒子的重要来源.

#### 参考文献:

- [1] 中央气象局. 地面气象观测规范[M]. 北京:气象出版社, 1979. 22-27.
- [2] 闵敏,王善才,宗雪梅,等. 灰霾过程中的气溶胶特性观测研究[J]. 气候与环境研究, 2009, **14**(2): 153-160.
- [3] Kang C M, Lee H S, Kang B W, *et al.* Chemical characteristics of acidic gas pollutants and  $\text{PM}_{2.5}$  species during hazy episodes in Seoul, South Korea[J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(28): 4749-4760.
- [4] Nel A. Air pollution-related illness: effects of particles [J]. Science, 2005, **308**(5723): 804-806.
- [5] 白志鹏,董海燕,蔡斌彬,等. 灰霾与能见度研究进展[J]. 过程工程学报, 2006, **6**(S2): 36-41.
- [6] Kim K W, Kim Y J, Bang S Y. Summer time haze characteristics of the urban atmosphere of Gwangju and the rural atmosphere of Anmyon, Korea [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2008, **141**(1-3): 189-199.
- [7] 陈欢欢,吴兑,谭浩波,等. 珠江三角洲2001-2008年灰霾天气过程特征分析[J]. 热带气象学报, 2010, **26**(2): 147-155.
- [8] 刘新民,邵敏. 北京市夏季大气消光系数的来源分析[J]. 环境科学学报, 2004, **24**(2): 185-189.
- [9] 宋宇,唐孝炎,方晨,等. 北京市能见度下降与颗粒物污染的关系[J]. 环境科学学报, 2003, **23**(4): 468-471.
- [10] 胡敏,刘尚,吴志军,等. 北京夏季高温高湿和降水过程对大气颗粒物谱分布的影响[J]. 环境科学, 2006, **27**(11): 2293-2298.
- [11] 王淑英,张小玲,徐晓峰. 北京地区大气能见度变化规律及影响因子统计分析[J]. 气象科技, 2003, **31**(2): 109-114.
- [12] 王继志,徐祥德,杨元琴. 北京城市能见度及雾特征分析[J]. 应用气象学报, 2002, **13**(特刊): 160-169.
- [13] He K B, Yang F M, Ma Y L, *et al.* The characteristics of  $\text{PM}_{2.5}$  in Beijing, China [J]. Atmospheric Environment, 2001, **35**(29): 4959-4970.
- [14] Shi Z B, Shao L Y, Jones T P, *et al.* Characterization of airborne individual particles collected in an urban area, a satellite city and a clean air area in Beijing, 2001 [J]. Atmospheric Environment, 2003, **37**(29): 4097-4108.
- [15] Tan J H, Duan J C, Chen D H, *et al.* Chemical characteristics of haze during summer and winter in Guangzhou [J]. Atmospheric Research, 2009, **94**(2): 238-245.
- [16] Tan J H, Duan J C, He K B, *et al.* Chemical characteristics of  $\text{PM}_{2.5}$  during a typical haze episode in Guangzhou [J]. Journal of Environmental Sciences, 2009, **21**(6): 774-781.
- [17] Wang Y, Zhuang G S, Sun Y L, *et al.* The variation of characteristics and formation mechanisms of aerosols in dust, haze, and clear days in Beijing [J]. Atmospheric Environment, 2006, **40**(34): 6579-6591.
- [18] Sun Y L, Zhuang G S, Tang A H, *et al.* Chemical characteristics of  $\text{PM}_{2.5}$  and  $\text{PM}_{10}$  in haze-fog episodes in Beijing [J]. Environmental Science & Technology, 2006, **40**(10): 3148-3155.
- [19] 刘子锐,孙扬,李亮,等. 2008奥运和后奥运时段北京大气颗粒物质量浓度和数浓度比对研究[J]. 环境科学, 2011, **32**(4): 913-923.
- [20] 辛金元,王跃思,唐贵谦,等. 2008年奥运期间北京及周边地区大气污染物消减变化[J]. 科学通报, 2010, **55**(15): 1510-1519.
- [21] 孙扬,王跃思,刘广仁,等. 北京地区一次大气环境持续严重污染过程中  $\text{SO}_2$  的垂直分布分析[J]. 环境科学, 2006, **27**(3): 408-414.
- [22] 吴兑. 霾与雾的识别和资料分析处理[J]. 环境化学, 2008, **27**(3): 327-330.
- [23] Wang W T, Primbs T, Tao S, *et al.* Atmospheric particulate matter pollution during the 2008 Beijing Olympics [J]. Environmental Science Technology, 2009, **43**(14): 5314-5320.
- [24] Lin P, Hu M, Deng Z, *et al.* Seasonal and diurnal variations of organic carbon in  $\text{PM}_{2.5}$  in Beijing and the estimation of secondary organic carbon [J]. Journal of Geophysical Research, 2009, **114**(D00G11): 1-14.
- [25] Yao X H, Lau A P S, Fang M, *et al.* Size distributions and formation of ionic species in atmospheric particulate pollutants in Beijing, China: 1-inorganic ions [J]. Atmospheric Environment, 2003, **37**(21): 2991-3000.
- [26] Meng Z Y, Seinfeld J H. On the source of the submicrometer droplet mode of urban and regional aerosols [J]. Aerosol Science and Technology, 1994, **20**(3): 253-265.
- [27] Zhuang H, Chan C K, Fang M, *et al.* Formation of nitrate and non-sea-salt sulfate on coarse particles [J]. Atmospheric Environment, 1999, **33**(26): 4223-4233.
- [28] Wang Y, Zhuang G S, Tang A H, *et al.* The ion chemistry and the source of  $\text{PM}_{2.5}$  aerosol in Beijing [J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(21): 3771-3784.
- [29] Ohta S, Okita T. A chemical characterization of atmospheric aerosol in Sapporo [J]. Atmospheric Environment, 1990, **24**(4): 815-822.
- [30] Zhang W J, Sun Y L, Zhuang G S, *et al.* Characteristics and seasonal variations of  $\text{PM}_{2.5}$ ,  $\text{PM}_{10}$ , and TSP aerosol in Beijing [J]. Biomedical and Environmental Sciences, 2006, **19**(6): 461-468.
- [31] John W, Wall S M, Ondo J L, *et al.* Modes in the size distributions of atmospheric inorganic aerosol [J]. Atmospheric Environment, 1990, **24**(9): 2349-2359.
- [32] Liu S, Hu M, Slanina S, *et al.* Size distribution and source analysis of ionic compositions of aerosols in polluted periods at Xinken in Pearl River Delta (PRD) of China [J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(25): 6284-6295.

- [33] Pakkanen T A, Kerminen V M, Hillamo R E, *et al.* Distribution of nitrate over sea-salt and soil derived particles-Implications from a field study[J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 1996, **24**(2): 189-205.
- [34] Stein A F, Lamb D. Empirical evidence for the low-and high-NO<sub>x</sub> photochemical regimes of sulfate and nitrate formation[J]. *Atmospheric Environment*, 2003, **37**(26): 3615-3625.
- [35] Poppe D, Wallasch M, Zimmermann J. The dependence of the concentration of OH on its precursors under moderately polluted conditions: a model study [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 1993, **16**(1): 61-78.
- [36] Kim J Y, Song C H, Ghim Y S, *et al.* An investigation on NH<sub>3</sub> emissions and particulate NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-NO<sub>3</sub><sup>-</sup> formation in East Asia[J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(12): 2139-2150.
- [37] Seinfeld J H, Pandis S N. *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*[M]. New York: John Wiley & Sons, 1998.
- [38] 宋宇, 唐孝炎, 方晨, 等. 北京市大气细粒子的来源分析[J]. *环境科学*, 2002, **23**(6): 11-16.
- [39] Zhang D Z, Iwasaka Y. Nitrate and sulfate in individual Asian dust-storm particles in Beijing, China in spring of 1995 and 1996 [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(19): 3213-3223.

## CONTENTS

Water-soluble Inorganic Salts in Ambient Aerosol Particles in Tangshan .....	MIAO Hong-yan, WEN Tian-xue, WANG Li, <i>et al.</i> (1225)
Characterization of Water-soluble ions in PM <sub>2.5</sub> at Dinghu Mount .....	ZHAO Ya-nan, WANG Yue-si, WEN Tian-xue, <i>et al.</i> (1232)
Characteristics of Mass Size Distributions of Water-Soluble Inorganic Ions During Summer and Winter Haze Days of Beijing .....	HUANG Yi-min, LIU Zi-ru, CHEN Hong, <i>et al.</i> (1236)
Characterising Seasonal Variation and Spatial Distribution of PM <sub>2.5</sub> Species in Shenzhen .....	YUN Hui, HE Ling-yan, HUANG Xiao-feng, <i>et al.</i> (1245)
Characteristics of PAHs in the Atmosphere in Winter and Summer in the Urban and Suburban of Fuzhou .....	YI Zhi-gang, HUANG Xing-ran, BI Jun-qi, <i>et al.</i> (1252)
Seasonal Variation and Spatial Distribution of Typical Organochlorine Pesticides in the Atmosphere of Hexi Corridor and Lanzhou, Northwest China .....	DING Zhong-yuan, MAO Xiao-xuan, MA Zi-long, <i>et al.</i> (1258)
Simulation of Air Pollution Characteristics and Estimates of Environmental Capacity in Zibo City .....	XUE Wen-bo, WANG Jin-nan, YANG Jin-tian, <i>et al.</i> (1264)
Diurnal Changes in Greenhouse Gases at Water-Air Interface of Xiangxi River in Autumn and Their Influencing Factors .....	HUANG Wen-min, ZHU Kong-xian, ZHAO Wei, <i>et al.</i> (1270)
Influence of Human Activities on Groundwater Environment Based on Coefficient Variation Method .....	ZHAO Wei, LIN Jian, WANG Shu-fang, <i>et al.</i> (1277)
Nitrogen Non-Point Source Pollution Identification Based on ArcSWAT in Changle River .....	DENG Ou-ping, SUN Si-yang, LÜ Jun (1284)
Study on the Content and Carbon Isotopic Composition of Water Dissolved Inorganic Carbon from Rivers Around Xi'an City .....	GUO Wei, LI Xiang-zhong, LIU Wei-guo (1291)
First Flush Effects of Storm Events of Baoxiang River in Lake Dianchi Watershed .....	GUO Huai-cheng, XIANG Nan, ZHOU Feng, <i>et al.</i> (1298)
Estimation of Releasing Fluxes of Sediment Phosphorus in the Three Gorges Reservoir During Late Autumn and Early Winter .....	NIU Feng-xia, XIAO Shang-bin, WANG Yu-chun, <i>et al.</i> (1308)
Distributions and Pollution Status of Heavy Metals in the Suspended Particles of the Estuaries and Coastal Area of Eastern Hainan .....	XIN Cheng-lin, REN Jing-ling, ZHANG Gui-ling, <i>et al.</i> (1315)
Environmental Characteristics of Heavy Metals in Surface Sediments from the Huanghe Estuary .....	WU Bin, SONG Jin-ming, LI Xue-gang (1324)
Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of Zhalong Wetland .....	YE Hua-xiang, ZANG Shu-ying, ZHANG Li-juan, <i>et al.</i> (1333)
Ecological Risk Evaluation of Heavy Metals of the Typical Dredged Mud in Shanghai .....	TANG Qing-li, CHENG Jin-ping, GAO Hao-min, <i>et al.</i> (1340)
Pollution Characteristics of Heavy Metals in Sludge from Wastewater Treatment Plants and Sludge Disposal in Chinese Coastal Areas .....	ZHANG Can, CHEN Hong, YU Yi-xuan, <i>et al.</i> (1345)
Comparison of the Estrogenic Activity of Organic Compounds in Source Water and Finished Water from the Yangtze River and Taihu Lake in Certain Areas of Jiangsu Province .....	JIN Tao, LÜ Xue-min, ZENG Yi-fan, <i>et al.</i> (1351)
Occurrence and Fate of Phthalates in Wastewater Treatment Plants in Beijing, China .....	ZHOU Yi-qi, LIU Yun-xia (1357)
Research on Sludge Toxicity Caused by DMF Biodegradation and Toxicity Spatial Distribution in Sludge Floes .....	HU Yuan-yuan, YANG Na, DING Yi, <i>et al.</i> (1363)
Study on the Ecological Risk of Wild Veined Rapa Whelk ( <i>Rapana venosa</i> ) Exposed to Organotin Compounds in Bohai Bay, China .....	AN Li-hui, ZHANG Yan-qiang, SONG Shuang-shuang, <i>et al.</i> (1369)
Bioaccumulation of Mercury in <i>Crassostrea</i> sp. Exposed to Waste Seawater Discharged from a Coal-fired Power Plant Equipped with a Seawater Flue-gas Desulfurization System .....	LIU Xi-yao, YUAN Dong-xing, CHEN Yao-jin (1374)
Effects of Imidazolium Chloride Ionic Liquids on the Acute Toxicity and Weight of Earthworm .....	HUANG Ruo-nan, FAN Jun-jie, TU Hong-zhi, <i>et al.</i> (1380)
Influencing Factors and Mechanism of Arsenic Removal During the Aluminum Coagulation Process .....	CHEN Gui-xia, HU Cheng-zhi, ZHU Ling-feng, <i>et al.</i> (1386)
Removal of DON in Micro-polluted Raw Water by Coagulation and Adsorption Using Activated Carbon .....	LIU Bing, YU Guo-zhong, GU Li, <i>et al.</i> (1392)
Mechanism of Catalytic Ozonation for the Degradation of Paracetamol by Activated Carbon .....	WANG Jia-yu, DAI Qi-zhou, YU Jie, <i>et al.</i> (1402)
Reductive Degradation of Chlorophenols in Aqueous Solution by Gamma Irradiation .....	PENG Yun-xia, HE Shi-jun, GONG Wen-qi, <i>et al.</i> (1411)
Effect of C/N Ratio on Nitrite Accumulation During Denitrification Process .....	YUAN Yi, HUANG Yong, DENG Hui-ping, <i>et al.</i> (1416)
Nitrous Oxide Emission During Denitrification for Activated Sludge Acclimated with Methanol as the Organic Carbon .....	ZHAI Xiao-feng, JIANG Cheng-ai, WU Guang-xue, <i>et al.</i> (1421)
Comparison and Optimization of Cellulose Carbon Source for Denitrification Filter .....	LI Bin, HAO Rui-xia (1428)
A Novel Municipal Wastewater Treating Process for Energy Production and Autotrophic Nitrogen Removal Based on ANAMMOX .....	LU Jian-cong, GAO Da-wen, SUN Xue-ying (1435)
Modeling and Dynamic Simulation of the Multimode Anaerobic/Anoxic/Aerobic Wastewater Treatment Process .....	ZHOU Zhen, WU Zhi-chao, WANG Zhi-wei, <i>et al.</i> (1442)
Comparing Microbial Community of High Ammonia Wastewater and Municipal Sewage in a Partial Nitrification System .....	ZHAO Zhi-rui, MA Bin, ZHANG Shu-jun, <i>et al.</i> (1448)
Analysis of the Fractal Structure of Activated Sludge Floes .....	RUAN Xiao-dong, LIU Jun-xin (1457)
Rapid Cultivation of Aerobic Nitrifying Granular Sludge with Alternate Loading Method .....	SHEN Na, YANG Chang-zhu, PU Wen-hong, <i>et al.</i> (1464)
Acceleration of the Formation of Aerobic Granules in SBR by Inoculating Different Proportions and Different Diameters of Mature Aerobic Granules .....	XIONG Guang-cheng, PU Wen-hong, YANG Chang-zhu (1472)
Mechanisms of the Improvement in Dewaterability of Alkaline Fermented Sludge by Simultaneous Ammonium and Phosphate Recovery .....	ZHANG Chao, CHEN Yin-guang, GU Guo-wei (1479)
Use of Flow Cytometric Sorting to Assess the Diversity of Eukaryotic Picophytoplankton of Lakes .....	XIE Wei-wei, GONG Yi, WANG Zhi-wei, <i>et al.</i> (1485)
Allelopathy Effects of Ferulic Acid and Coumarin on <i>Microcystis aeruginosa</i> .....	GUO Ya-li, FU Hai-yan, HUANG Guo-he, <i>et al.</i> (1492)
Spatiotemporal Characteristics of Zooplankton Community Structure and Diversity in the Strong Temperature Increment Seawaters near Guohua Power Plant in Xiangshan Bay .....	ZHU Yi-feng, HUANG Jian-yi, LIN Xia, <i>et al.</i> (1498)
Screening of Epoxy-degrading Halophiles and Their Application in High-salt Wastewater Treatment .....	WANG Jin, XU Zhen, PENG Shu-chuan, <i>et al.</i> (1510)
Biodegradation of Decabromodiphenyl Ether by Intracellular Enzyme Obtained from <i>Pseudomonas aeruginosa</i> .....	SHI Guang-yu, YIN Hua, YE Jin-shao, <i>et al.</i> (1517)
Influence of Yeast Extract on the Fermentation of Glucose by the Demulsifying Strain <i>Alcaligenes</i> sp. S-XJ-1 .....	HUANG Xiang-feng, WANG Kai, LI Ming-xia, <i>et al.</i> (1524)
Phylogenetic Analysis of Methanogenic Corn Stalk Degrading Microbial Communities .....	QIAO Jiang-tao, GUO Rong-bo, YUAN Xian-zheng, <i>et al.</i> (1531)
Inhibition of Methanogenium by Erythromycin and Its Domestation .....	LIU Zi-xu, SUN Li-ping, LI Yu-you, <i>et al.</i> (1540)
Sand Box Study on Fingering Front Morphology for NAPLs Infiltrated in Homogeneous Porous Media .....	YANG Bin, LI Hui-ying, WU Bin, <i>et al.</i> (1545)
Vertical Distribution and Possible Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbon in Sewage Area Soil .....	YAO Lin-lin, ZHANG Cai-xiang, LI Jia-le, <i>et al.</i> (1553)
Characteristic and Evaluation of Soil Pollution by Heavy Metal in Different Functional Zones of Hohhot .....	GUO Wei, SUN Wen-hui, ZHAO Ren-xin, <i>et al.</i> (1561)
Distribution Characteristics of Rice Photosynthesized Carbon in Soil Aggregates of Different Size and Density .....	LI Miao-miao, NIE San-an, CHEN Xiao-juan, <i>et al.</i> (1568)
Profile of Soil Microbial Biomass Carbon in Different Types of Subtropical Paddy Soils .....	SHENG Hao, ZHOU Ping, YUAN Hong, <i>et al.</i> (1576)
Effect of Composting Organic Fertilizer Supplies on Hexachlorobenzene Dechlorination in Paddy Soils .....	LIU Cui-ying, JIANG Xin (1583)
Remediation of Cu-Pb-Contaminated Loess Soil by Leaching with Chelating Agent and Biosurfactant .....	LIU Xia, WANG Jian-tao, ZHANG Meng, <i>et al.</i> (1590)
Effects of Different Temperatures Biochar on Adsorption of Pb(II) on Variable Charge Soils .....	JIANG Tian-yu, JIANG Jun, XU Ren-kou, <i>et al.</i> (1598)
Preparation and Performance Investigation of <i>Trichoderma viride</i> -Modified Corn Stalk as Sorbent Materials for Oil Spills .....	LAN Zhou-lin, PENG Dan, GUO Chu-ling, <i>et al.</i> (1605)
Removal of PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> from Solution, Wastewater and Seawater by Modification and Granulation Magnesium and Aluminium Layered Double Hydroxide .....	XING Kun, WANG Hai-zeng (1611)
Influence of Carboxylic Carbon Nanotube Supported Platinum Catalyst on Cathode Oxygen Reduction Performance of MFC .....	TU Li-xing, ZHU Neng-wu, WU Ping-xiao, <i>et al.</i> (1617)
Flue Gas Desulfurization by a Novel Biomass Activated Carbon .....	LIU Jie-ling, TANG Zheng-guang, CHEN Jie, <i>et al.</i> (1623)
Method for Grading Industrial Sectors in Energy Consumption and Its Application .....	MAO Jian-su, MA Lan (1628)
Dynamics and Environmental Load of Food Carbon Consumption During Urbanization: A Case Study of Xiamen City, China .....	YAN Zhen, CUI Sheng-hui, LI Gui-lin, <i>et al.</i> (1636)

# 《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军  
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明  
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞  
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2013年4月15日 34卷 第4期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 34 No. 4 Apr. 15, 2013

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science ( HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel: 010-62941102, 010-62849343; Fax: 010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel: 010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301  
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行