

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第10期

Vol.36 No.10

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

基于细颗粒物来源追踪技术的2013年12月上海市严重污染过程中PM _{2.5} 的源贡献分析·····	李莉, 安静宇, 严茹莎 (3543)
华北地区乡村站点(曲周)夏季PM _{2.5} 中二次无机组分的生成机制与来源解析·····	陈仕意, 曾立民, 董华斌, 朱彤 (3554)
成都市大气PM _{2.5} 中有机磷阻燃剂的污染水平及来源·····	印红玲, 李世平, 叶芝祥, 杨迎春, 梁金凤, 游俊杰 (3566)
不同生物质燃烧排放多环芳烃及糖醇类化合物的模拟研究·····	黄帅, 黄欣怡, 吴水平, 胡清华, 陈晓秋 (3573)
北京地区大气消光特征及参数化研究·····	陈一娜, 赵普生, 何迪, 董璠, 赵秀娟, 张小玲 (3582)
光助芬顿反应催化降解气体中甲苯·····	郑思灿, 陈天虎, 刘海波, 邹雪华, 朱承驻, 陈冬 (3590)
遗体火化二噁英类排放水平及影响因素·····	尹文华, 于晓巍, 韩静磊, 冯桂贤, 付建平, 杨艳艳, 鞠勇明, 张素坤 (3596)
我国餐厨废物生化处理设施恶臭排放特征分析·····	张妍, 王元刚, 卢志强, 韩萌, 商彬彬, 曹阳, 张君 (3603)
太湖湖表反照率时空特征及影响因子·····	曹畅, 李旭辉, 张弥, 刘寿东, 肖薇, 肖启涛, 徐家平 (3611)
基于GOCI影像的太湖水体漫衰减系数遥感反演·····	王珊珊, 李云梅, 王桥, 吕恒 (3620)
河口盐度梯度下短叶茳苳沼泽湿地土壤间隙水溶解性甲烷时空特征·····	杨平, 张子川, 杜威宁, 黄佳芳, 全川 (3633)
石家庄市土壤水分运移的稳定同位素特征分析·····	陈同同, 陈辉, 韩璐, 邢星, 付阳阳 (3641)
长寿湖水库垂直剖面不同形态汞的季节变化特征及其影响因素·····	白薇扬, 张成, 唐振亚, 赵铮, 王定勇 (3649)
三峡库区消落带4种典型植物根际土壤养分与氮素赋存形态·····	王晓峰, 袁兴中, 刘红, 张磊, 尉建军, 岳俊生 (3662)
湖泊水-沉积物界面DIC和DOC交换通量及耦合关系·····	王伟颖, 吕昌伟, 何江, 左乐, 颜道浩 (3674)
水体扰动条件下物质在沉积介质中的迁移·····	李邵龙, 陈道毅 (3683)
城市道路径流的排污特征·····	武俊良, 任玉芬, 王雪梅, 王效科, 陈利顶, 刘刚才 (3691)
杭州市余杭区典型农村暴雨径流污染特征·····	段圣辉, 赵钰, 单保庆, 唐文忠, 张文强, 张淑珍, 郎超 (3697)
海水淡化超滤-反渗透工艺沿程溴代消毒副产物变化规律·····	杨哲, 孙迎雪, 石娜, 胡洪管 (3706)
天然有机物和电解质对水中C ₆₀ 凝聚行为的影响·····	方华, 荆洁, 于江华, 王钰葶 (3715)
铅改性高岭土原位改良技术控制重污染河道底泥磷释放效果·····	王虹, 林建伟, 詹艳慧, 章喆, 王笛入 (3720)
污水管网中无机氮类营养盐变迁规律·····	金鹏康, 焦丁, 任武昂 (3730)
微好氧水解酸化在石化废水预处理中的应用研究·····	朱晨, 吴昌永, 周岳溪, 伏小勇, 陈学民, 邱延波, 吴晓峰 (3738)
倒置A ² /O-MBR组合工艺处理生活污水效能及膜污染特性·····	王旭东, 马亚斌, 王磊, 杨怡婷, 黄丹曦, 夏四清 (3743)
高氨氮对具有回流的PN-ANAMMOX串联工艺的脱氮影响·····	李祥, 崔剑虹, 袁砚, 黄勇, 袁怡, 刘忻 (3749)
苯甲酸盐厌氧驯化体系中三氯乙烯的还原脱氯特性·····	李姜维, 杨晓永, 胡安谊, 于昌平 (3756)
驯化污泥厌氧还原脱氯促进2,4,6-三氯酚矿化及胞外呼吸脱氯途径·····	宋佳秀, 李玲, 盛凡凡, 郭翠香, 张永明, 李祖元, 王天丽 (3764)
苯酚对厌氧氨氧化污泥脱氮效能长短期影响·····	杨朋兵, 李祥, 黄勇, 朱亮, 崔剑虹, 徐彬彬 (3771)
连续流好氧颗粒污泥系统处理低COD/N实际生活污水的工艺优化·····	鲁磊, 信欣, 鲁航, 朱辽东, 谢思建, 武勇 (3778)
FNA对好氧吸磷的长期抑制及污泥吸磷方式转化·····	马娟, 李璐, 俞小军, 孙雷军, 孙洪伟, 陈永志 (3786)
污水处理厂不同工艺的污泥脱水效能分析及其影响因素研究·····	刘吉宝, 李亚明, 吕鑑, 魏源送, 杨敏, 郁达伟 (3794)
残留过氧化氢对微波-过氧化氢-碱预处理后污泥水解酸化的影响·····	贾瑞来, 刘吉宝, 魏源送, 才兴 (3801)
大围山典型森林土壤有机氮垂直分布特征·····	丁咸庆, 马慧静, 朱晓龙, 陈珊, 侯红波, 彭佩钦 (3809)
缙云山不同土地利用方式对土壤活性有机碳、氮组分的影响·····	祁心, 江长胜, 郝庆菊, 李鉴霖 (3816)
三峡库区典型退耕还林模式土壤养分流失控制·····	吴东, 黄志霖, 肖文发, 曾立雄 (3825)
坡位与土层对喀斯特原生林土壤微生物生物量与丰度的影响·····	冯书珍, 苏以荣, 张伟, 陈香碧, 何寻阳 (3832)
不同种植方式对亚热带红壤微生物多样性的影响·····	沈冰洁, 祝贞科, 袁红朝, 葛体达, 王久荣, 陈明利, 吴晓英, 吴金水 (3839)
有色冶金区土壤-玉米系统汞累积及健康风险·····	纪小凤, 郑娜, 王洋, 刘强, 张静静 (3845)
改良剂对4种木本植物的铅锌耐性、亚细胞分布和化学形态的影响·····	陈永华, 张富运, 吴晓英, 梁希, 袁斯文 (3852)
菹草乙酸酯组分抑藻活性物质的分离纯化和鉴定·····	孙颖颖, 苏振霞, 浦寅芳, 肖辉, 王长海 (3860)
血吸虫病疫区水生生物体内氯苯化合物的污染特征与潜在风险·····	李昆, 赵高峰, 周怀东, 赵健, 张盼伟, 刘巧娜, 王兴勋, 刘晓茹 (3866)
生物传感细胞ADP1_pWHLux在水环境急性毒性检测中的应用·····	唐慧, 宋一之, 姜博, 陈光玉, 贾建丽, 张旭, 李广贺 (3872)
虹鳟鱼鳃及肝脏多种CYP1基因表达模式作为生物标志物监测海河水污染状况·····	高锴, 闫佩, 檀翠玲, 罗彦鹤, 孙静, Maria E. Jönsson, Ingvar Brandt, 唐运平 (3878)
纳米氧化锌对斑马鱼肝脏的毒性效应·····	刘林, 赵群芬, 金凯星, 朱帅旗, 王小飞, 吕佳昀 (3884)
黄连根茎浸提物对隆线蚤的急性毒性作用·····	陈亚楠, 袁玲 (3892)
发酵稻壳对亚铁离子和硫离子的吸附-解吸附特性·····	谢晓梅, 廖敏, 华嘉媛, 陈娜, 张楠, 徐培智, 解开治, 徐昌旭, 刘光荣 (3896)
搅拌棒吸附萃取-气相色谱-质谱联用测定海水中邻苯二甲酸酯·····	高晨晨, 李锋民, 卢伦, 孙玥 (3906)
COD组分分析的实验条件及结果可靠性分析·····	李志华, 张银, 韩杏, 余科, 李汝佳 (3913)
养猪废水和污泥中11种兽用抗生素的同时分析技术及其在生物降解过程的应用·····	丁佳丽, 刘锐, 郑炜, 余卫娟, 叶朝霞, 陈吕军, 张永明 (3918)
土壤微生物产电技术及其潜在应用研究进展·····	邓欢, 薛洪婧, 姜允斌, 钟文辉 (3926)
《环境科学》征订启事 (3553)	
《环境科学》征稿简则 (3589)	
信息 (3705, 3755, 3763, 3800)	

基于细颗粒物来源追踪技术的2013年12月上海市严重污染过程中PM_{2.5}的源贡献分析

李莉^{1,2}, 安静宇^{1,2}, 严茹莎^{1,2}

(1. 上海市环境科学研究院, 上海 200233; 2. 国家环境保护城市大气复合污染成因与防治重点实验室, 上海 200233)

摘要: 近年来高浓度细颗粒物引起的大气灰霾污染已成为制约我国城市和区域可持续发展的重大环境问题之一, 科学快速地诊断PM_{2.5}及其关键组分的来源对于缓解当前严峻的污染形势具有极为重要的科学意义和现实意义. 2013年12月上旬, 我国东部特大型城市上海及其所处的长三角区域出现了历史上罕见的严重污染过程, PM_{2.5}小时浓度一度高达640 μg·m⁻³. 本文以分析12月上旬上海市所出现的三次典型重污染过程为案例, 利用颗粒物来源追踪技术, 对严重污染期间上海市PM_{2.5}及其关键化学组分(硫酸盐、硝酸盐、铵盐、有机碳和元素碳)开展了来源解析研究. 结果表明, 在上海市人为排放源中, 工业锅炉和窑炉、移动源和电站锅炉是对细颗粒物中硝酸盐贡献最大的3类排放源; 工业源和移动源是对硫酸盐贡献最大的两类排放源. 在灰霾、湿霾和过境这3次污染过程中, 上海本地排放对PM_{2.5}的浓度贡献分别是35.3%、44.8%和22.7%; 长距离输送分别达到了42.0%、41.1%和59.8%. 在长三角模拟区域内, 扬尘、工业过程、挥发类源、工业锅炉和窑炉及移动源是最主要的细颗粒贡献源, 平均贡献占比分别是25.1%、14.9%、15.8%、13.7%和15.9%. 研究表明, 2013年12月这类极高的严重污染过程, 并非单一城市所致, 区域联防联控, 特别是重度污染期间的联合减排对于缓解细颗粒物重度污染极为重要.

关键词: 严重污染; PM_{2.5}; 细颗粒物来源追踪; 数值模拟; 上海

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)10-3543-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.2015.10.001

Source Contribution Analysis of the Fine Particles in Shanghai During a Heavy Haze Episode in December, 2013 Based on the Particulate Matter Source Apportionment Technology

LI Li^{1,2}, AN Jing-yu^{1,2}, YAN Ru-sha^{1,2}

(1. Shanghai Academy of Environmental Sciences, Shanghai 200233, China; 2. State Environmental Protection Key Laboratory of the Cause and Prevention of Urban Air Pollution Complex, Shanghai 200233, China)

Abstract: The haze pollution caused by high PM_{2.5} concentrations has become one of the major environmental issues restricting urban and regional sustainable development in China in recent years. Therefore, the diagnosis of the pollution sources of PM_{2.5} and its major components in a scientific and efficient way is of great significance both scientifically and theoretically. A rare heavy haze pollution event occurred in Shanghai and the surrounding Yangtze River Delta in early December, 2013, that the hourly PM_{2.5} concentration reached 640 μg·m⁻³. In this study, we analyzed the three typical episodes that occurred in Shanghai during this period. The particulate matter source apportionment technology (PSAT) was applied to study the source contributions to PM_{2.5} and its major components. Results showed that NO₃⁻_{2.5} were mostly contributed by industrial boilers and kilns, transportation and power plants. Comparatively, most of the SO₄²⁻_{2.5} came from industry and transport sectors. During the three episodes including haze, foggy haze and transport, local emissions contributed 35.3%, 44.8%, 22.7%, while super-regional transport accounted for 42.0%, 41.1% and 59.8% to PM_{2.5}, respectively. In the YRD modeling domain, fugitive dust, industrial processing, volatile source, industrial boilers and kilns and transport were the major contributors to high concentrations of PM_{2.5}, with the average contributions of 25.1%, 14.9%, 15.8%, 13.7% and 15.9%, respectively. Results showed that the very heavy haze pollution is usually not caused by a single city, the regional joint pollution control is of great importance to relieve the pollution level.

Key words: heavy haze; PM_{2.5}; particulate matter source apportionment technology; numerical modeling; Shanghai

近年来我国工业化和城市化快速推进, 能源消耗和机动车保有量持续增加, 与此同时空气污染问题日益突出, 其中以细颗粒物和臭氧为代表的大气复合污染已成为制约城市和区域环境可持续发展的重大问题之一. 细颗粒物(PM_{2.5})对光有显著的散射和吸收作用, 往往导致大气能见度降低^[1,2];

同时通过直接和间接作用影响全球气候变化^[3,4];

收稿日期: 2015-03-24; 修订日期: 2015-05-11

基金项目: 国家科技支撑计划项目(2014BAC22B03); 国家自然科学基金项目(41205122); 环境保护公益性行业科研专项(201409008); 上海市科委科技攻关项目(14DZ1202905)

作者简介: 李莉(1979~), 女, 博士, 高级工程师, 主要研究方向为大气复合污染来源与控制, E-mail: lili@saes.sh.cn

PM_{2.5}及其毒害组分还极易通过呼吸道进入人体在肺泡沉积,并进入血液循环严重危害人体健康^[5~9];因此细颗粒物污染问题在国内外已引起广泛关注.上海市作为我国经济最为发达的特大城市之一,近年来大气灰霾问题也日益突出.2013年上海市PM_{2.5}年均浓度为62 μg·m⁻³,是国家二级标准的1.8倍,其中,2013年12月期间,上海市PM_{2.5}小时浓度甚至高达640 μg·m⁻³,导致了严重大气污染.城市和区域尺度的细颗粒物污染已经成为当前我国城市、区域乃至中东部地区最突出的大气环境问题.

国内外许多学者对颗粒物及其来源开展了大量研究,Kleeman等^[10]利用一维拉格朗日模型及三维欧拉模型评估了Los Angeles及San Joaquin Valley地区各种源对PM₁₀的贡献^[11].Zhang等^[12]利用CMAQ模型研究了东亚地区的气溶胶污染状况及气态污染物如NH₃排放对气溶胶生成的贡献^[13~15].王丽涛等^[16]、安俊岭等^[17]利用MM5-CMAQ、WRF-CAMx等模拟研究了京津冀地区PM_{2.5}污染特征及跨界输送通量;Cheng等^[18]开发了一种观测与模型模拟结合的方法对机动车排放对北京地区PM_{2.5}贡献进行了评估;程念亮等^[19]对2014年10月北京市4次典型空气重污染过程的形成原因进行了分析,表明来自南方的外来污染物输送对北京PM_{2.5}贡献率分别在42.36%~69.12%之间.Wu等^[20]利用PSAT方法探讨了珠三角地区不同排放活动对细颗粒物浓度的影响;Feng等^[21]利用CMAQ对珠三角城市群地区灰霾天气特征的数值模拟结果表明,PM₁₀的空间分布与源排放密切相关,而海陆风的日变化对于PM₁₀的重新分布和输送起到了极为显著的作用^[22].李莉等^[23]基于CMAQ模拟研究了长三角大气O₃及PM₁₀的浓度分布及输送状况^[24,25].

现有研究对于了解细颗粒物的污染过程及其来源奠定了重要的科学基础.然而,对于严重污染过程中的细颗粒物污染来源,仍需要针对特定污染过程开展细致分析和深入探讨,目前针对上海市严重污染过程中的细颗粒物污染来源仍鲜有报道.本研究选择2013年12月一次典型的严重污染事件,利用三维通用空气质量模型(comprehensive air quality model with extensions, CAMx)中耦合的颗粒物来源追踪技术(particulate matter source apportionment technology, PSAT),研究了期间上海市细颗粒物组

分及浓度变化情况,并探讨了苏南、浙北、上海、外围共4个源区;工业锅炉和窑炉、工业过程、燃煤电厂、移动源、扬尘、挥发类源、生活源、农业源和天然源共9类大气污染源对本次污染事件的3次过程中PM_{2.5}污染贡献情况,通过初步揭示上海市严重污染过程中细颗粒物的来源和传输规律,以期开展大气污染区域联防联控提供理论支持.

1 材料与方法

1.1 模型系统简介

本研究采用WRF-CAMx空气质量数值模型,选取2013年12月严重污染过程开展模拟研究.其中,通用空气质量模型(CAMx)是一个内嵌了气态和颗粒态大气污染物“一个大气”框架的欧拉光化学扩散模型,可以模拟从城市、区域到大洲等不同尺度的大气污染问题.细颗粒物来源追踪技术(PSAT)是CAMx耦合的一个重要模块,主要基于物种示踪方法开展模拟^[26],即对各种污染源加入反应性示踪物跟踪污染源的反应过程,对一次、二次颗粒物以及二次颗粒物气态前体物的污染源类别和排放源地区进行追踪.关于该方法的详细描述可参考相关用户手册及已有研究报道^[27].

本研究所采用的模型网格嵌套及关键参数设置在前期研究^[27]中已详细阐述.其中,模型区域设置见图1所示,最内层模拟区域(D04)网格分辨率为3 km×3 km,包括长三角地区.模拟时段选择2013年11月15日~12月10日,其中11月15~20日作为模型起转(spun-up)时间以降低初始场的影响.研究中所涉污染源区域主要包括4个,分别为上海、苏南、浙北和长距离输送[见图1(b)];污染源类别划分为9类,包括工业锅炉和窑炉、工业过程、燃煤电厂、移动源、扬尘、挥发类源、生活源、农业源和天然源.源解析受点选取上海市环境科学研究院(SAES)所在的上海城区,见图1(b),该站点细颗粒物污染状况基本代表了上海城区的污染状况.

1.2 模式性能验证

本研究根据上海市环境科学研究院地基式大气复合污染综合观测站于2013年12月的在线观测数据开展模拟结果的验证.模式性能统计验证采用的统计方法包括归一化平均偏差(NMB)、标准平均误差(NME)、平均分数偏差(MFB)和平均分数误差(MFE)^[28].

2013年12月1~10日上海市PM_{2.5}、硫酸盐(SO₄²⁻_{2.5})、硝酸盐(NO₃⁻_{2.5})、铵盐(NH₄⁺_{2.5})、有机

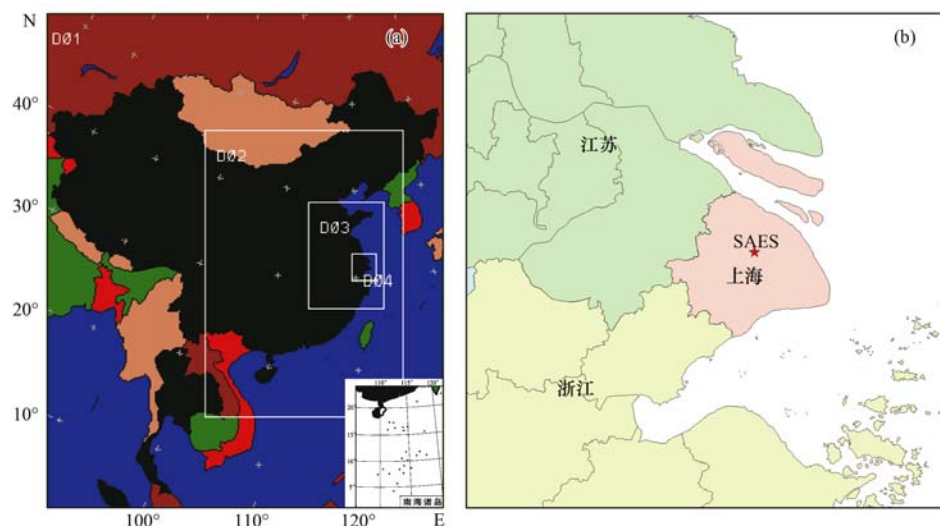


图 1 四层网格嵌套模拟区域及长三角模拟区域

Fig. 1 One-way nested model domain and the inner YRD model domain

碳($\text{OC}_{2.5}$)、元素碳($\text{EC}_{2.5}$)模拟值与地面观测值对比情况如图 2 所示,相对应的模拟与观测值验证统计参数如表 1 所示. 验证结果表明, $\text{PM}_{2.5}$ 的 NMB、NME 分别为 -12% 和 39% ; $\text{SO}_4^{2-}_{2.5}$ 、 $\text{NO}_3^{-}_{2.5}$ 、 $\text{NH}_4^{+}_{2.5}$ 模拟结果的 NMB 分别为 -16% 、 -4% 、 -9% ; EC 模拟浓度略微偏大, NMB、NME 分别为 33% 、 51% ; OC 模拟结果严重低估,其 NMB 为

-32% ,总体上对细颗粒物的观测浓度总体偏低. 模拟浓度在低浓度时段与实际观测更为吻合,模型对于 12 月 5~6 日极端的污染模拟存在显著低估,在 12 月 2 日、12 月 9 日相对轻度的污染趋势模拟更为接近,整个研究时段总体模拟趋势能体现出 12 月上旬这 3 次污染过程中 $\text{PM}_{2.5}$ 及其化学组分的变化情况.

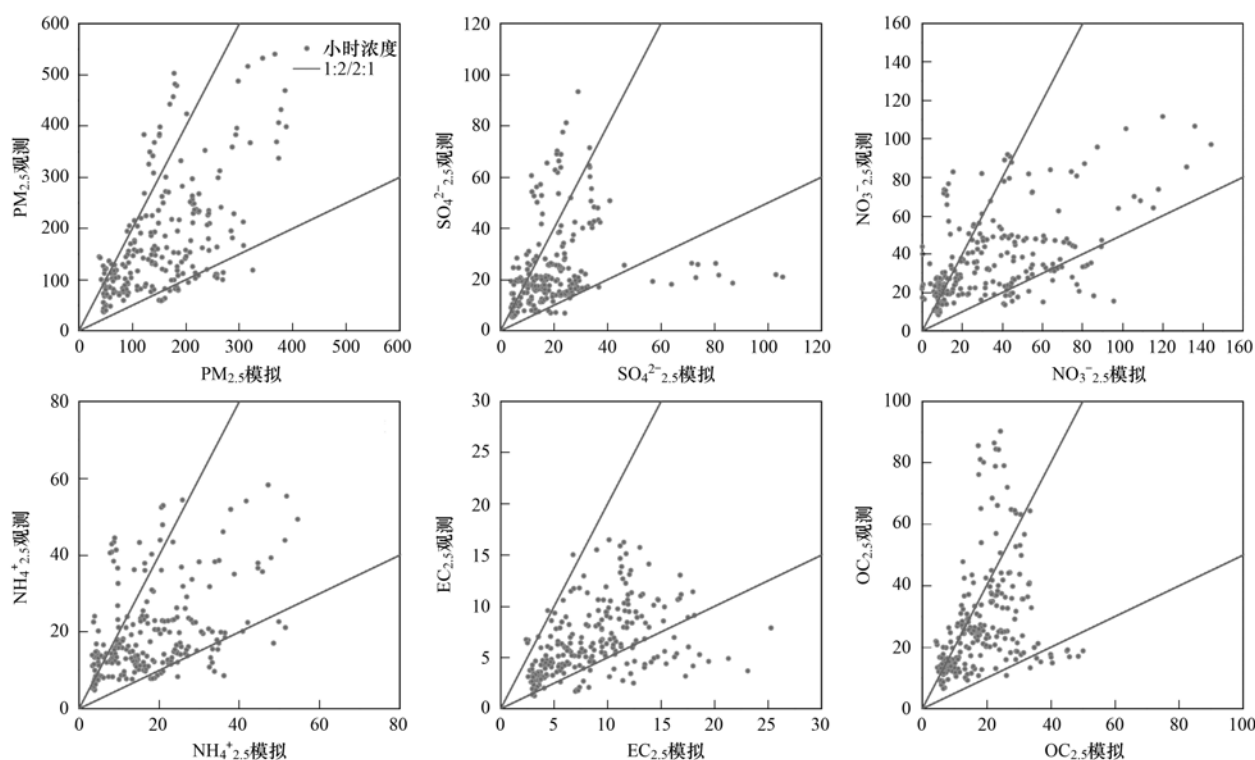
图 2 上海市 $\text{PM}_{2.5}$ 、硫酸盐、硝酸盐模拟值与观测值的对比Fig. 2 Scatter diagram of the hourly predicted and observed $\text{PM}_{2.5}$ concentrations and its chemical components

表 1 上海市 PM_{2.5} 及其主要组分模拟值与观测值验证统计表
Table 1 Statistical data of the predicted and observed PM_{2.5} and its chemical components

物种	样本数	数据来源	小时平均值 / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	小时最大值 / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	小时最小值 / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	NMB /%	NME /%	MFB /%	MFE /%
PM _{2.5}	223	模拟值	165.5	387.9	37.9	-12	39	-10	41
		观测值	177.6	540.3	36.7				
SO ₄ ²⁻ _{2.5}	240	模拟值	20.5	105.5	4.0	-16	55	-19	52
		观测值	24.3	93.4	5.3				
NO ₃ ⁻ _{2.5}	240	模拟值	35.7	144.2	0.0	-4	53	-21	60
		观测值	36.8	111.6	8.2				
NH ₄ ⁺ _{2.5}	240	模拟值	18.0	54.6	3.3	-9	47	-15	52
		观测值	19.6	58.2	4.9				
EC _{2.5}	239	模拟值	8.7	25.3	2.4	33	51	26	42
		观测值	6.6	16.5	1.3				
OC _{2.5}	239	模拟值	18.2	50.1	4.3	-32	48	-36	54
		观测值	27.5	90.3	6.6				

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5} 污染过程分析

地面观测资料显示,2013 年 12 月 1~10 日严重污染期间,上海市出现 3 次显著的高污染过程,分别是 12 月 1~2 日(P1),12 月 5~6 日(P2)及 12 月 9 日(P3).

P1 过程污染前期上海受地面高压控制,系统稳定,移动缓慢. 地面为静稳天气,风向为偏西风,风速极小,早晚逆温,污染物浓度易累积. 根据上海市环境科学研究院大气污染观测站的观测资料,期间 PM_{2.5}/PM₁₀ 维持在 70% 左右,细粒子污染严重. 高浓度颗粒物和气态污染物对太阳辐射造成的散射和吸收作用,使得该污染过程能见度低于 10.0 km 的累积时间长达 43 h. 本次污染过程中,PM_{2.5} 中以硝酸盐、硫酸盐、铵盐和有机碳为主,约占 PM_{2.5} 的 53%,代表了典型的冬季灰霾污染.

P2 过程中相对湿度较高,12 月 5 日上午上海出现大雾,多个时刻相对湿度接近 90%. 期间上海风速很小,风向不定,天气静稳,加上高强度的排放,NO、CO、BC 等一次污染物浓度一直维持在较高水平. 期间 PM_{2.5} 中的硝酸盐、硫酸盐和铵盐等二次无机离子的比重明显上升,高于清洁天和沙尘天,代表了一次罕见的受到高湿度影响的湿霾污染.

P3 为长距离传输的过境污染,持续时间较短. 受北方冷空气影响,上海地面主导风向由南风转为西北风,温度下降,风速增大,小时最高风速达到 9 m·s⁻¹. 该过程中颗粒物浓度出现突然上升. PM_{2.5} 中以硝酸盐、硫酸盐、铵盐和有机碳为主,约占

PM_{2.5} 的 64%,代表了一种短时过境污染.

11 月 24~25 日(CT)为清洁时段,期间观测数据显示,上海市 PM_{2.5} 平均浓度为 44 μg·m⁻³,PM_{2.5}/PM₁₀ 比值为 67.7%. 期间上海以东南风为主,平均风速为 3.1 m·s⁻¹,空气质量良好.

为定量分析 3 次污染过程中的区域贡献和源类贡献,本研究利用 CAMx 模型中耦合的细颗粒物来源追踪技术(PSAT),对比 11 月 24~25 日(CT)清洁时段,对这 3 次污染过程中 PM_{2.5} 进行来源解析,探究细颗粒物组分变化以及 4 类源地区和 9 类污染源对高污染的贡献分担率.

2.2 上海市污染过程中 PM_{2.5} 组分及其来源解析

2.2.1 PM_{2.5} 化学组分解析

图 3 是上海城区 PM_{2.5} 主要组分小时浓度时间序列及各组分均值模拟情况,从中可见,NO₃⁻_{2.5}、SO₄²⁻_{2.5} 浓度高值分布与高浓度 PM_{2.5} 污染十分吻合,P1、P2、P3 时段均符合这一趋势;而在较为清洁时段,其它粒子占比一般较高,EC_{2.5}、OC_{2.5} 和 NH₄⁺_{2.5} 则在全时段有稳定的浓度分布. 从组分均值模拟结果来看,其它粒子占比为 38.6%,NO₃⁻_{2.5} 占比 21.6%,SO₄²⁻_{2.5} 占比为 12.4%,NH₄⁺_{2.5} 和 OC_{2.5} 比例接近,分别是 10.9%、11.4%,EC_{2.5} 占比为 5.3%.

图 4 是上海城区 PM_{2.5} 主要组分不同时段占比均值. 从中可知,PM_{2.5} 中占比最大的其他粒子在 P2 时段所占比例最低,然而污染最为严重. NO₃⁻_{2.5} 在 P1、P2 时段比例基本持平,占比达到近 25%,高于 P3,也要远大于 CT 时段比例. 结合图 3 序列图来看,污染严重时段 NO₃⁻_{2.5} 浓度较高,其它粒子则在

相对清洁时段更低,CT 时段则正好相反. P1、P2 属于典型的 $\text{NO}_3^-_{2.5}$ 主导的高浓度 $\text{PM}_{2.5}$ 污染. 由于 $\text{NO}_3^-_{2.5}$ 不易远距离输送,多是由于本地贡献增加所致,因此,P1、P2 本地排放源对污染贡献较 P3 更

大. $\text{SO}_4^{2-}_{2.5}$ 则在 P3 占比较高,高于 CT 时段, $\text{SO}_4^{2-}_{2.5}$ 具有易远距离传送的特点,指示 P3 污染外源性更为显著. $\text{OC}_{2.5}$ 占比变化与 $\text{SO}_4^{2-}_{2.5}$ 正好相反, $\text{OC}_{2.5}$ 和 $\text{NH}_4^+_{2.5}$ 在 3 个时段分布基本不变.

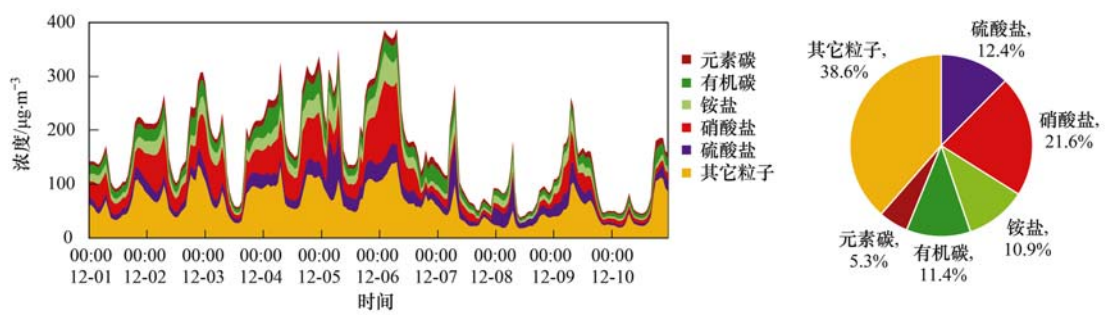


图 3 上海城区 $\text{PM}_{2.5}$ 主要组分变化时间序列及各组分模拟均值
Fig. 3 Time series of the region contributions and average contributions to $\text{PM}_{2.5}$ in urban Shanghai

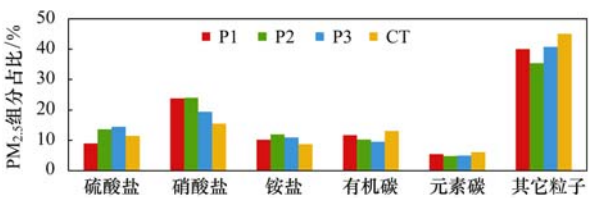


图 4 上海城区 $\text{PM}_{2.5}$ 主要组分不同时段占比均模拟值
Fig. 4 Major composition of $\text{PM}_{2.5}$ during different time period in urban Shanghai

2.2.2 硝酸盐组分来源解析

通过上面对 3 个污染时段 $\text{PM}_{2.5}$ 组分变化分析可以发现, $\text{NO}_3^-_{2.5}$ 占比与污染严重程度呈现正相关的关系,与 CT 时段对比,占比增加最为明显,因此重点解析 $\text{NO}_3^-_{2.5}$ 本地来源对于防控高浓度 $\text{PM}_{2.5}$ 污染具有十分重要的意义. 上海本地主要大气污染源对上海城区 P1、P2、P3 时段 $\text{NO}_3^-_{2.5}$ 组分贡献均值如图 5 所示. 从中可见,工业锅炉和窑炉、移动源在 3 次污染中贡献都尤为显著,总计约在 70% 左右.

燃煤电厂在污染最为严重的 P2 时段,对 $\text{NO}_3^-_{2.5}$ 贡献占比超过了 23%,在不利的扩散条件影响下,电厂高架点源贡献占比要明显大于 P1、P3.

2.2.3 硫酸盐组分来源解析

上海本地主要大气污染源对上海城区不同污染时段 $\text{PM}_{2.5}$ 中 $\text{SO}_4^{2-}_{2.5}$ 组分贡献均值如图 6 所示,P1 和 P3 时段各排放源贡献比例较为接近,工业源对 $\text{SO}_4^{2-}_{2.5}$ 贡献尤为显著,移动源(包括船舶)在 3 次污染过程中有近 15% 的稳定贡献. 污染最为严重的 P2 时段工业锅炉贡献占比增加明显达到了 32.2%,成为最大贡献源,工业过程贡献下降为 30.0%,燃煤电厂是第 3 大贡献源,贡献占比约为 15.0%. 工业锅炉和电厂一般属于高架源,12 月 5 日的大雾天气及静小风条件是造成两者在 P2 中贡献比例明显增加的主要原因,也可以说明本地污染的不断积累是造成此次极高浓度 $\text{PM}_{2.5}$ 污染的重要原因之一.

2.2.4 铵盐组分来源解析

图 7 是不同污染时段上海本地主要大气污染源

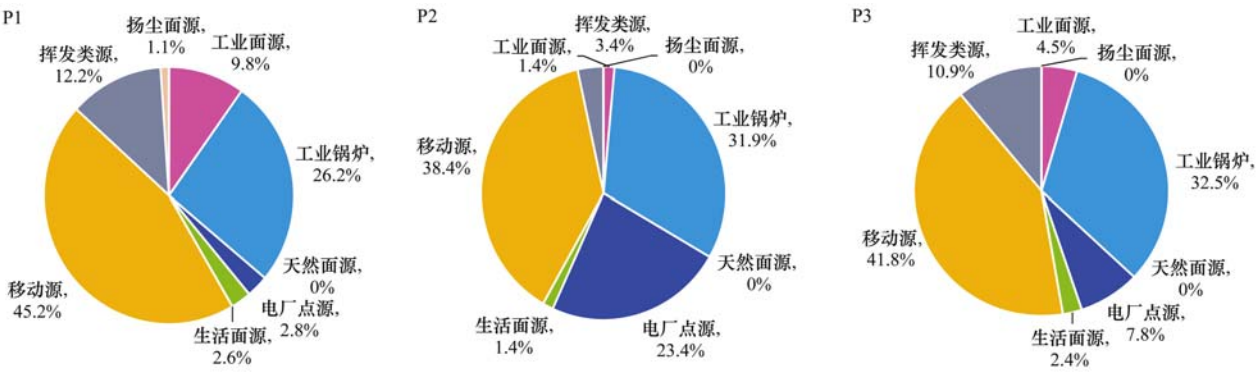


图 5 上海本地主要大气污染源对上海城区不同污染时段 $\text{PM}_{2.5}$ 硝酸盐组分贡献模拟均值
Fig. 5 Major local source of nitrate during different time period in urban Shanghai

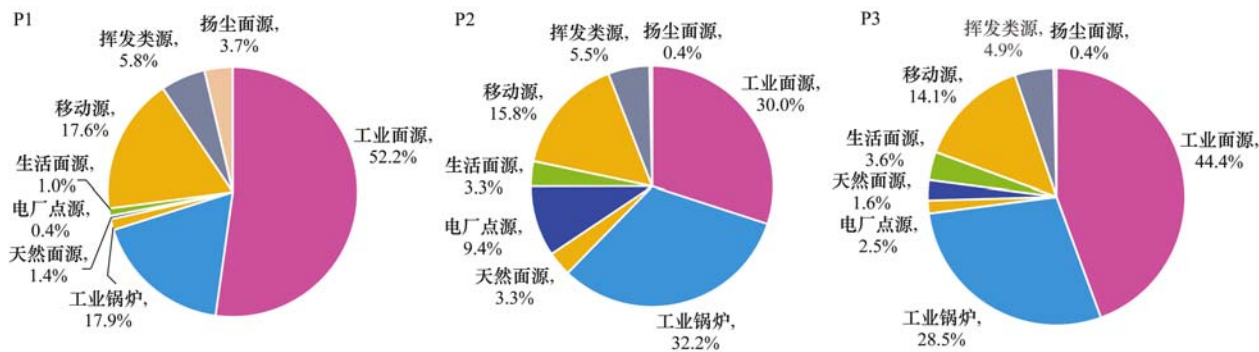


图 6 上海本地主要大气污染源对上海城区不同污染时段 $\text{PM}_{2.5}$ 硫酸盐组分贡献模拟均值

Fig. 6 Major local source of sulfate during different time period in urban Shanghai

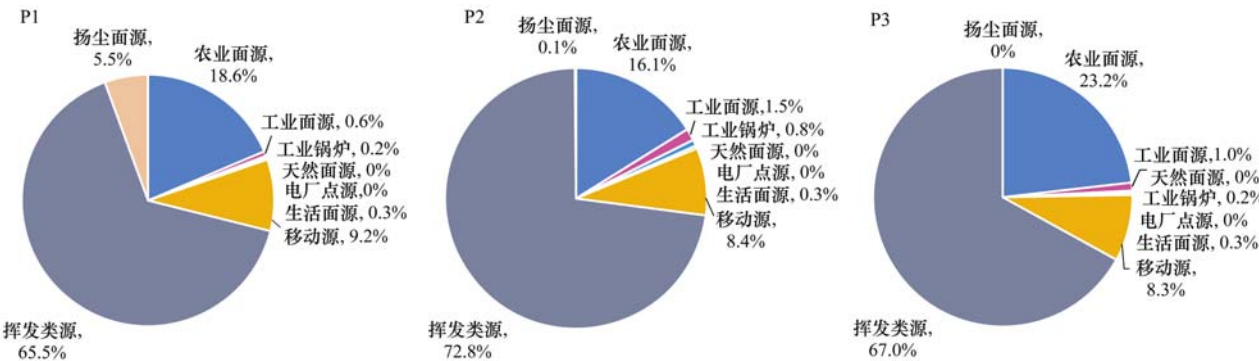


图 7 上海本地主要大气污染源对上海城区不同污染时段 $\text{PM}_{2.5}$ 铵盐组分贡献模拟均值

Fig. 7 Major local source of ammonium salt during different time period in urban Shanghai

对城区 $\text{PM}_{2.5}$ 中 $\text{NH}_4^+_{2.5}$ 贡献均值分布情况,挥发类源是 $\text{NH}_4^+_{2.5}$ 最大的来源,3 个时段贡献占比为 65.5% ~ 72.8%。本研究挥发类源主要包括了餐饮油烟、建筑涂料、油气挥发、民用氨排放等挥发排放过程,加强对这些排放过程中的氨排放控制是有效削减 $\text{NH}_4^+_{2.5}$ 浓度的重要途径。其次,农业源对 $\text{NH}_4^+_{2.5}$ 贡献占比也较为突出,P3 时段对 $\text{NH}_4^+_{2.5}$ 贡献超过了 23%,主要来自于畜禽养殖和化肥施用等过程的排放贡献。移动源对 3 个污染时段铵盐也有 8.3% ~ 9.2% 的贡献,是细颗粒物中 $\text{NH}_4^+_{2.5}$ 的第三大排放源。

2.2.5 元素碳组分来源解析

上海本地主要大气污染源对城区不同污染时段 $\text{PM}_{2.5}$ 中 $\text{EC}_{2.5}$ 组分贡献均值如图 8 所示,总体来看,移动源是细颗粒物中元素碳最主要的排放来源,P2 污染时段贡献占比近 74%,移动源排放主要包括机动车、船舶等尾气排放。工业过程和扬尘是元素碳另外两个重要来源,不同时段贡献占比分别为 9.1% ~ 11.7% 和 8.3% ~ 14.0%。

2.2.6 有机碳组分来源解析

图 9 给出的是上海本地主要大气污染源对城区

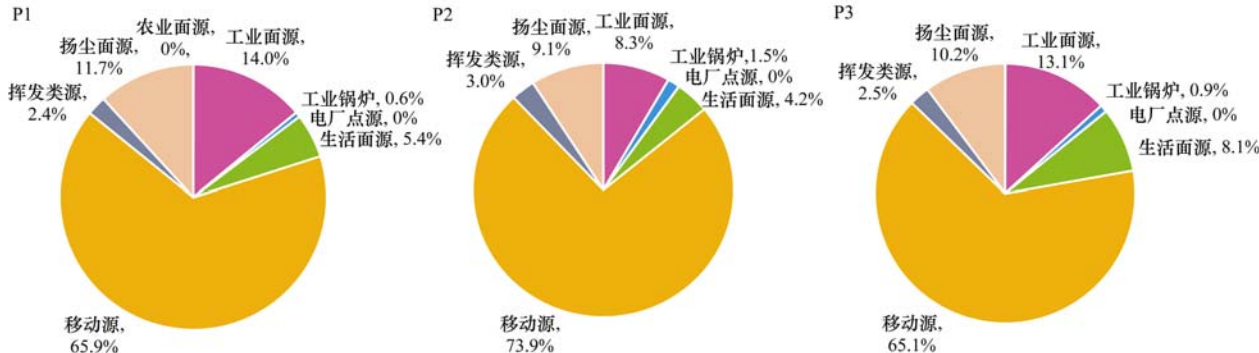


图 8 上海本地主要大气污染源对上海城区不同污染时段 $\text{PM}_{2.5}$ 元素碳组分贡献模拟均值

Fig. 8 Major local source of elemental carbon during different time period in urban Shanghai

不同污染时段 $\text{PM}_{2.5}$ 中有机碳组分贡献均值分布情况, 与其他几类组分不同, 有机碳组分来源相对分散, 9 类本地主要排放源均有一定比例的贡献。贡

献占比最大的三类排放源分别是挥发类源、移动源和扬尘源, 三者占比总和接近 80%, 而工业类排放源对有机碳组分贡献约为 14.8% ~ 17.3%。

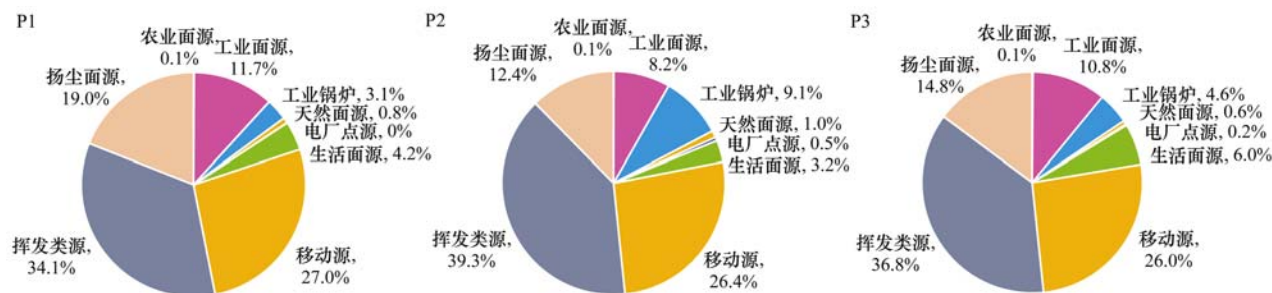


图 9 上海本地主要大气污染源对上海城区不同污染时段 $\text{PM}_{2.5}$ 有机碳组分贡献模拟均值

Fig. 9 Major local source of organic carbon during different time period in urban Shanghai

2.3 上海市 $\text{PM}_{2.5}$ 来源解析

2.3.1 上海市 $\text{PM}_{2.5}$ 的区域贡献

上海城区 $\text{PM}_{2.5}$ 小时浓度区域贡献时间序列及其贡献均值如图 10 所示。 $\text{PM}_{2.5}$ 模拟浓度与实际观测相比, 12 月 4 日模拟浓度偏高, 12 月 6 日的高污染峰值则偏低, 清单的不确定性是影响模拟结果的主因, 重度污染过程中生成机理的不清以及模式机制的不足也是导致严重污染模拟偏低的重要因素。然而, 模拟结果总体变化趋势与实际观测基本吻合, 基本能反映模拟时段 $\text{PM}_{2.5}$ 变化趋势。

从时间序列图来看, 12 月 1 日凌晨开始, 各源区域有比较稳定的 $\text{PM}_{2.5}$ 贡献, 其中上海本地贡献为主导, 中午外围贡献增加明显, 夜间上海本地、外围和江苏贡献开始增加, 在逆温和静稳天气下, 12 月 2 日上午 $\text{PM}_{2.5}$ 保持了持续高值。 P2 时段污染开始于 12 月 5 日凌晨上海本地排放及外围细颗粒物输入不断积累。 由于 12 月 5 日上午上海出现大雾, 地面风速又极小, 至中午开始 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度不断攀升, 至 12 月 6 日凌晨达到峰值, 期间上海本地 $\text{PM}_{2.5}$ 排放成为主要污染来源, 在不利的天气条件下, 高污染一直持续至 12 月 7 日凌晨。 P3 时段污染则外源性明显, 江浙及

其他周边地区对上海 $\text{PM}_{2.5}$ 输入要明显高于本地源排放。 从均值图来看, 上海本地是研究时段内最主要的 $\text{PM}_{2.5}$ 贡献源, 特别在 P2 时段贡献显著, 总体占比超过 50%。 其次, 外围 (除江苏、浙江以外的其它上海周边区域) 对上海细颗粒物贡献均值为 33.3%, 在 P1、P2、P3 时段均有贡献, 但 P3 时段贡献比率超过了上海本地。 受冬季上海主导风向影响, 江苏对上海的 $\text{PM}_{2.5}$ 输入要明显高于浙江, 在 P1 和 P2 时段贡献也较为显著, 加剧了上海细颗粒物污染。

图 11 是上海城区不同时段 $\text{PM}_{2.5}$ 小时浓度区域贡献均值对比图, P1 时段上海本地贡献约为 15.0% ~ 62.4%, 平均占比为 $35.3\% \pm 14.7\%$, 高于 CT 时段本地贡献。 同时外围贡献约 40%, 低于清洁时段外围贡献, 而江苏贡献也接近 20%, 可见这是一次本地排放为主并受外来输送影响的区域高浓度 $\text{PM}_{2.5}$ 污染。 P2 是最严重的一次污染过程, 外围贡献相比于 P1 基本持平并略低于清洁时段, 江苏贡献则下降明显, 而上海本地贡献则明显增加, 平均占比达到 44.8%, 高于 P1 和 CT 并远大于 P3, 因此, 12 月 5 日 6 日的极高浓度的 $\text{PM}_{2.5}$ 污染, 上海本地排放是最主要的贡献源。 P3 与 P1、P2 相比, 外围区域平均贡

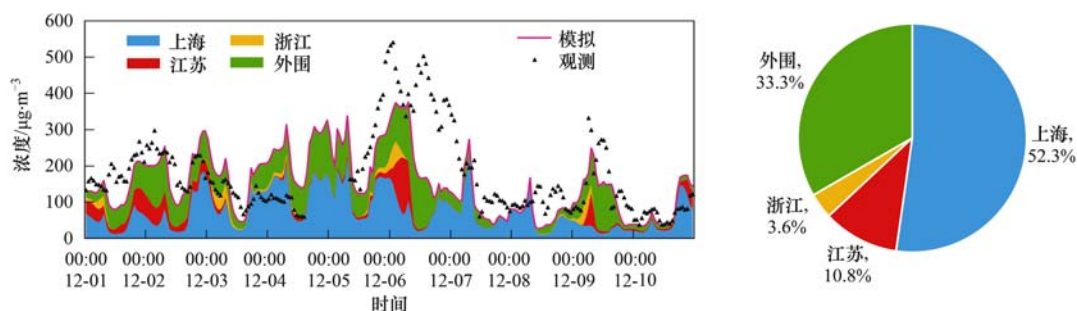


图 10 上海城区 $\text{PM}_{2.5}$ 小时浓度区域贡献时间序列及其贡献模拟均值

Fig. 10 Time series of the region contributions and average contributions to $\text{PM}_{2.5}$ in urban Shanghai

献接近 60%,明显高于清洁时段和 P1、P2,江苏贡献与 P2 基本持平,浙江则有明显增加,上海本地贡献明显低于其他任意时段,与 P2 形成鲜明对比,可见这是一次外围输送主导的细颗粒物污染。

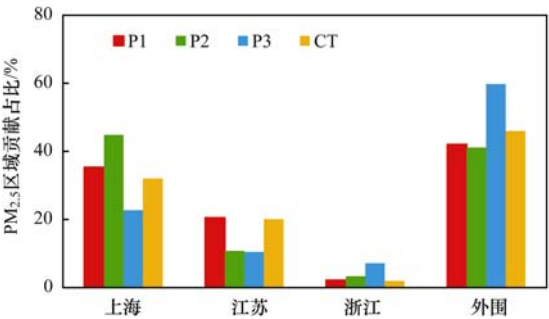


图 11 上海城区不同时段 $\text{PM}_{2.5}$ 小时浓度
区域贡献模拟均值对比

Fig. 11 Region contributions of $\text{PM}_{2.5}$ during different time period in urban Shanghai

2.3.2 上海市 $\text{PM}_{2.5}$ 区域源贡献

图 12 是模拟区域内 9 类主要大气污染源对上海 $\text{PM}_{2.5}$ 小时浓度贡献时间序列及其贡献均值。12 月 1 日凌晨开始排放源贡献 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度超过 $100 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,中午有短时降低之后又不断升高,至深夜达到最高值。12 月 2 日污染源贡献变化趋势与 12 月 1 日类似,深夜 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度峰值更高,超过了 200

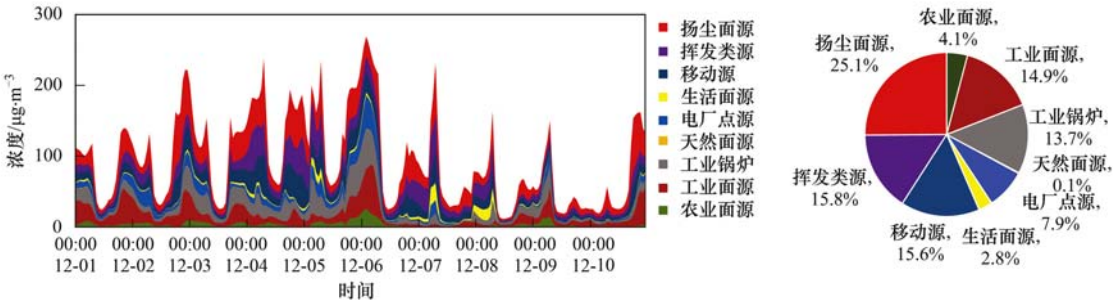


图 12 模拟区域内主要大气污染源对上海城区 $\text{PM}_{2.5}$ 小时浓度贡献时间序列及其贡献模拟均值

Fig. 12 Time series of the region source contribution and average contributions to $\text{PM}_{2.5}$ in urban Shanghai

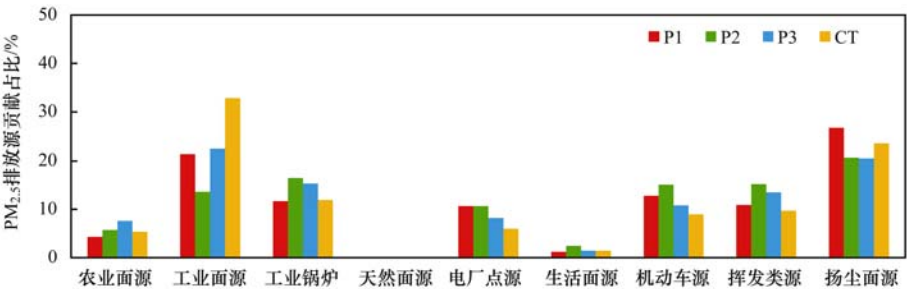


图 13 模拟区域内主要大气污染源对上海城区不同时段 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度贡献模拟均值对比

Fig. 13 Region source contributions of $\text{PM}_{2.5}$ during different time period in urban Shanghai

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。P2 时段排放源贡献浓度保持高值且积累时间长,12 月 6 日凌晨 $\text{PM}_{2.5}$ 最高浓度甚至超过了 $250 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,工业过程、工业锅炉和窑炉以及燃煤电厂是三类贡献最大的污染源。P3 污染则开始于 12 月 8 日夜间工业过程、工业锅炉、挥发类源和扬尘源细颗粒物排放的持续积累,至 12 月 9 日 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度凌晨出现峰值。从贡献均值图来看,扬尘源贡献最大,占比是 25.1%,其次是挥发类源和移动源,两者贡献比例分别是 15.8%、15.6%,再次,工业类源贡献比重较大,工业面源和工业锅炉点源总占比超过了 28%,有效控制和降低工业排放对缓解 $\text{PM}_{2.5}$ 污染具有十分重要的现实意义。

模拟区域内主要大气污染源对上海城区不同时段 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度贡献均值对比如图 13 所示。P1 时段扬尘源贡献要明显高于 P2、P3 和 CT,表明本地贡献在 P1 中影响较大。工业过程源排在 P2 时段排放占比要明显低于另外两个时段,仅是清洁时段贡献的一半左右,而工业锅炉、移动源和挥发类源贡献占比均有所增加。在 P3 时段工业过程则成为最大贡献源,农业源贡献也出现高值。电厂点源在各个时段则一直有稳定的输出占比,天然源和生活源贡献较小。CT 时段工业面源是最主要的排放源,贡献占比超过 30%,这一比例要比污染时段高很多。

2.3.3 上海市 $\text{PM}_{2.5}$ 本地排放源贡献

模拟区域内主要大气污染源对上海城区 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度贡献时间序列及其贡献均值如图 14 所示. P1 时段开始阶段本地源排放 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度大约稳定在 $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 12 月 1 日傍晚至 12 月 2 日早晨排放浓度连续保持高值, 12 月 2 日傍晚排放源贡献达到峰值接近 $200 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 在 12 月 4 日夜间移动源、挥发类源和扬尘源贡献突出, 上海本地 $\text{PM}_{2.5}$ 排放浓度已经累积超过 $150 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 12 月 5 日早上挥发类源贡献开始增大, 在大雾天气影响下, 细颗粒物浓度污染达到最大值, 仅本地排放 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度已超过 $200 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 从贡献均值图来看, 上海本地扬尘源和挥发类源是贡献最大的两类源, 占比分别是 31.0% 和

19.7%. 移动源贡献均值是 17%, 已超过工业面源 11.5% 的占比.

从图 15 的上海本地主要大气污染源对上海城区不同时段 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度贡献均值对比情况来看, P1 时段扬尘源贡献尤为突出, 比例接近 40%, 明显高于其他时段的贡献, 只有工业锅炉贡献占比低于 CT. P2 时段扬尘源、挥发类源、工业源依旧是主要的贡献源, 而电厂点源贡献比例明显增大则很可能是由 12 月 5 日大雾及静小风天气等不利的扩散条件导致的. 由于 P3 是外围传送主导造成的污染, 上海本地各污染排放源并没有出现较为明显的占比变化. 在清洁时段, 扬尘源、工业面源、挥发类源和移动源是最主要的 $\text{PM}_{2.5}$ 排放源.

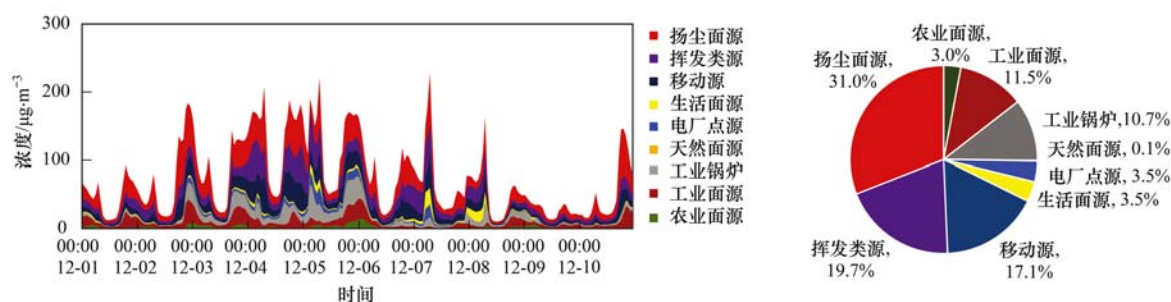


图 14 上海本地主要大气污染源对上海城区 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度贡献时间序列及其贡献模拟均值

Fig. 14 Time series of the local source contribution and average contributions to $\text{PM}_{2.5}$ in urban Shanghai

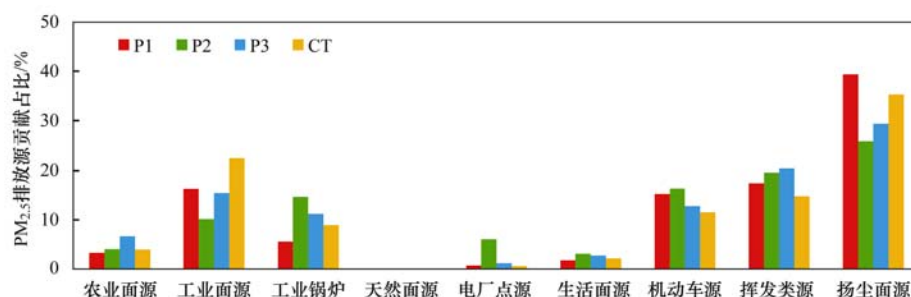


图 15 上海本地主要大气污染源对上海城区不同污染时段 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度贡献模拟均值对比

Fig. 15 Local source contributions of $\text{PM}_{2.5}$ during different time period in urban Shanghai

3 结论

(1) 研究表明, 2013 年 12 月上旬东部地区严重污染事件中, 上海市发生高压低湿静稳下的灰霾、高压高湿静稳下的湿霾, 以及大风低温导致的过境污染 3 次污染过程. 模拟结果表明, 3 次过程中硝酸盐在 $\text{PM}_{2.5}$ 中的占比显著上升, 分别为 23.7%、23.9%、19.4% (清洁时段 15.5%), 硫酸盐占比分别是 9.0%、13.7%、14.5%, 表明上海市在严重污染期间硝酸盐贡献突出.

(2) 在 3 次细颗粒物污染过程中, 硝酸盐与污染严重程度呈现正相关关系, 本地排放源中工业锅炉、移动源和电厂是硝酸盐贡献最大的三类排放源; 硫酸盐本地主要排放源比例的变化则反映出本地积累对加重污染有显著影响, 总体来看工业锅炉、工业面源和移动源是硫酸盐最主要的排放源; 本地挥发类源和移动源分别主导了铵盐和元素碳的排放; 有机碳来源相对分散, 贡献占比较为突出的排放源分别是挥发类源、移动源和扬尘源等.

(3) 上海市 3 次高浓度 $\text{PM}_{2.5}$ 污染中, 上海本地

贡献依次是 35.3%、44.8%、22.7%，外围分别是 42.0%、41.1%、59.8%，江苏贡献 20.5%、10.8%、10.4%，浙江贡献则较低。模拟区域内扬尘面源、工业面源、挥发类源、工业锅炉及移动源是最主要的细颗粒贡献源，平均贡献占比分别是 25.1%、14.9%、15.8%、13.7% 和 15.9%。

(4) 上海本地主要大气污染源在 3 次污染过程中，贡献依旧最为突出，最高贡献甚至超过了 $200 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。本地排放源中，扬尘源是最大的排放源，贡献占比依次是 39.4%、25.8%、29.3%，其次是包括 NH_3 、VOCs 等在内的挥发类源，分别贡献 17.4%、19.6%、20.4%，第三大类是工业锅炉，分别贡献 11.7%、16.5%、15.3%，移动源贡献也较为突出，占比是 15.3%、16.4%、12.8%。从本地污染控制来看，削减扬尘、挥发源、工业源及机动车、船舶等移动源将有利于改善严重污染态势。

参考文献：

- [1] Tie X X, Cao J J. Aerosol pollution in China: Present and future impact on environment [J]. *Particuology*, 2009, **7**(6): 426-431.
- [2] Zhang Q H, Zhang J P, Xue H W. The challenge of improving visibility in Beijing [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(16): 7821-7827.
- [3] Menon S, Hansen J, Nazarenko L, *et al.* Climate effects of black carbon aerosols in China and India [J]. *Science*, 2002, **297**(5590): 2250-2253.
- [4] 张小曳. 中国大气气溶胶及其气候效应的研究[J]. *地球科学进展*, 2007, **22**(1): 12-16.
- [5] Craig L, Brook J R, Chiotti Q, *et al.* Air pollution and public health: a guidance document for risk managers [J]. *Journal of Toxicology and Environmental Health, Part A: Current Issues*, 2008, **71**(9-10): 588-698.
- [6] Huang W, Tan J G, Kan H D, *et al.* Visibility, air quality and daily mortality in Shanghai, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2009, **407**(10): 3295-3300.
- [7] WHO (World Health Organization). Global health risks: Mortality and burden of disease attributable to selected major risks [M/OL]. ISBN: 978 92 4 156387 1, 2009. http://www.who.int/healthinfo/global_burden_disease/GlobalHealthRisks_report_full.pdf.
- [8] Duan J C, Tan J H. Atmospheric heavy metals and Arsenic in China: Situation, sources and control policies [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **74**: 93-101.
- [9] Duan J C, Bi X H, Tan J H, *et al.* Seasonal variation on size distribution and concentration of PAHs in Guangzhou city, China [J]. *Chemosphere*, 2007, **67**(3): 614-622.
- [10] Kleeman M J, Cas G R. A 3D Eulerian source-oriented model for an externally mixed aerosol [J]. *Environmental Science & Technology*, 2001, **35**(24): 4834-4848.
- [11] Held T, Ying Q, Kaduwela A, *et al.* Modeling particulate matter in the San Joaquin Valley with a source-oriented externally mixed three-dimensional photochemical grid model [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**(22): 3689-3711.
- [12] Zhang M G, Han Z W, Zhu L Y. Simulation of atmospheric aerosols in East Asia using modeling system RAMS-CMAQ: Model evaluation [J]. *China Particuology*, 2007, **5**(5): 321-327.
- [13] Fu J S, Jang C J, Streets D G, *et al.* MICS-Asia II: Evaluating gaseous pollutants and evaluating an advanced modeling system over East Asia [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(15): 3571-3583.
- [14] Quan J N, Zhang X S. Assessing the role of ammonia in sulfur transformation and deposition in China [J]. *Atmospheric Research*, 2008, **88**(1): 78-88.
- [15] Song Y, Dai W, Shao M, *et al.* Comparison of receptor models for source apportionment of volatile organic compounds in Beijing, China [J]. *Environmental Pollution*, 2008, **156**(1): 174-183.
- [16] 王丽涛, 潘雪梅, 郑佳, 等. 河北及周边地区霾污染特征的模拟研究[J]. *环境科学学报*, 2012, **32**(4): 925-931.
- [17] 安俊岭, 李健, 张伟, 等. 京津冀污染物跨界输送通量模拟[J]. *环境科学学报*, 2012, **32**(11): 2684-2692.
- [18] Cheng S Y, Lang J L, Zhou Y, *et al.* A new monitoring-simulation-source apportionment approach for investigating the vehicular emission contribution to the $\text{PM}_{2.5}$ pollution in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **79**: 308-316.
- [19] 程念亮, 李云婷, 张大伟, 等. 2014 年 10 月北京市 4 次典型空气重污染过程成因分析[J]. *环境科学研究*, 2015, **28**(2): 163-170.
- [20] Wu D W, Fung J C H, Yao T, *et al.* A study of control policy in the Pearl River Delta region by using the particulate matter source apportionment method [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **76**: 147-161.
- [21] Feng Y R, Wang A Y, Wu D, *et al.* The influence of tropical cyclone Melor on PM_{10} concentrations during an aerosol episode over the Pearl River Delta region of China: Numerical modeling versus observational analysis [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(21): 4349-4365.
- [22] Chen X L, Feng Y R, Li J N, *et al.* Numerical simulations on the effect of sea-land breezes on atmospheric haze over the Pearl River Delta Region [J]. *Environmental Modeling & Assessment*, 2009, **14**(3): 351-363.
- [23] 李莉, 陈长虹, 黄成, 等. 长江三角洲地区大气 O_3 和 PM_{10} 的区域污染特征模拟[J]. *环境科学*, 2008, **29**(1): 237-245.
- [24] 胡荣章, 刘红年, 张美根, 等. 南京地区大气灰霾的数值模拟[J]. *环境科学学报*, 2009, **29**(4): 808-814.
- [25] Li L, Chen C H, Fu J S, *et al.* Air quality and emissions in the Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**: 1621-1639.
- [26] Wagstrom K M, Pandis S N, Yarwood G, *et al.* Development and application of a computationally efficient particulate matter

- apportionment algorithm in a three-dimensional chemical transport model [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(22): 5650-5659.
- [27] 安静宇, 李莉, 黄成, 等. 2013 年 1 月中国东部地区重污染过程中上海市细颗粒物的来源追踪模拟研究[J]. *环境科学学报*, 2014, **34**(10): 2635-2644.
- [28] Boylan J W, Russell A G. PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(26): 4946-4959.

欢迎订阅 2016 年《环境科学》

《环境科学》创刊于 1976 年,由中国科学院主管,中国科学院生态环境研究中心主办,是我国环境科学学科中最早创刊的学术性期刊。

《环境科学》自创刊以来,始终坚持“防治污染,改善生态,促进发展,造福人民”的宗旨,报道我国环境科学领域内具有创新性高水平,有重要意义的基础研究和应用研究成果,以及反映控制污染,清洁生产和生态环境建设等可持续发展的战略思想、理论和实用技术等。

《环境科学》在国内外公开发行,并在国内外科技界有较大影响,被国内外一些重要检索系统收录,如美国医学索引 MEDLINE;美国化学文摘 CA;俄罗斯文摘杂志 AJ;美国生物学文摘预评 BP;美国医学索引 IM;日本科学技术情报中心数据库 JICST;英国动物学记录 ZR;剑桥科学文摘(CSA):Environmental Sciences;剑桥科学文摘(CSA):Pollution Abstracts;剑桥科学文摘(CAS):Life Sciences Abstracts 等;国内的检索系统有中国科技论文统计与引文数据库(CSTPCD);中文科技期刊数据库(维普);中国期刊全文数据库(CNKI);数字化期刊全文数据库(万方);中国科学引文数据库(CSCD);中国生物学文摘等。

全国各地邮局均可订阅,如有漏订的读者可直接与编辑部联系,办理补订手续。

《环境科学》2016 年为大 16 开本,120 元/册,全年 12 期。

国内统一刊号:CN11-1895/X 国际标准刊号:ISSN 0250-3301

国外发行代号:M 205 国内邮发代号:2-821

编辑部地址:北京市海淀区双清路 18 号(2871 信箱) 邮编:100085

电话:010-62941102;传真:010-62849343;E-mail:hjlx@rcees.ac.cn;网址:www.hjlx.ac.cn

CONTENTS

Source Contribution Analysis of the Fine Particles in Shanghai During a Heavy Haze Episode in December, 2013 Based on the Particulate Matter Source Apportionment Technology	LI Li, AN Jing-yu, YAN Ru-sha (3543)
Transformation Mechanism and Sources of Secondary Inorganic Components in PM _{2.5} at an Agriculture Site (Quzhou) in the North China Plain in Summer	CHEN Shi-yi, ZENG Li-min, DONG Hua-bin, <i>et al.</i> (3554)
Pollution Level and Sources of Organic Phosphorus Esters in Airborne PM _{2.5} in Chengdu City	YIN Hong-ling, LI Shi-ping, YE Zhi-xiang, <i>et al.</i> (3566)
Simulation Study of the Emission of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Sugar Alcohols from Biomass Burning	HUANG Shuai, HUANG Xin-yi, WU Shui-ping, <i>et al.</i> (3573)
Characteristics and Parameterization for Atmospheric Extinction Coefficient in Beijing	CHEN Yi-na, ZHAO Pu-sheng, HE Di, <i>et al.</i> (3582)
Photocatalytic Degradation of Gaseous Toluene by a Photo-Fenton Reaction	ZHENG Si-can, CHEN Tian-hu, LIU Hai-bo, <i>et al.</i> (3590)
Emission of PCDD/Fs from Crematories and Its Influencing Factors	YIN Wen-hua, YU Xiao-wei, HAN Jing-lei, <i>et al.</i> (3596)
Odor Emission Characteristics from Biochemical Treatment Facilities of Kitchen Waste in China	ZHANG Yan, WANG Yuan-gang, LU Zhi-qiang, <i>et al.</i> (3603)
Temporal and Spatial Characteristics of Lake Taihu Surface Albedo and Its Impact Factors	CAO Chang, LI Xu-hui, ZHANG Mi, <i>et al.</i> (3611)
Remote Sensing Inversion of Diffuse Attenuation Coefficient in Lake Taihu Based on the GOCI Images	WANG Shan-shan, LI Yun-mei, WANG Qiao, <i>et al.</i> (3620)
Porewater Dissolved Methane in <i>Cyperus malaccensis</i> Marshes Along Salinity Gradient in the Minjiang River Estuary	YANG Ping, ZHANG Zi-chuan, DU Wei-ning, <i>et al.</i> (3633)
Stable Isotopes Characters of Soil Water Movement in Shijiazhuang City	CHEN Tong-tong, CHEN Hui, HAN Lu, <i>et al.</i> (3641)
Seasonal Variations in Vertical Profile of Hg Species and the Influential Factors in Changshou Reservoir	BAI Wei-yang, ZHANG Cheng, TANG Zhen-ya, <i>et al.</i> (3649)
Nutrient Characteristics and Nitrogen Forms of Rhizosphere Soils Under Four Typical Plants in the Littoral Zone of TGR	WANG Xiao-feng, YUAN Xing-zhong, LIU Hong, <i>et al.</i> (3662)
Exchange Fluxes and Coupling Relationship of Dissolved Inorganic Carbon and Dissolved Organic Carbon Across the Water-Sediment Interface in Lakes	WANG Wei-ying, LÜ Chang-wei, HE Jiang, <i>et al.</i> (3674)
Mass Transport in Porous Sediments During a Turbulent Disturbance	LI Shao-long, CHEN Dao-yi (3683)
Characterization of Pollutant Wash-off in the Urban Stormwater	WU Jun-liang, REN Yu-fen, WANG Xue-mei, <i>et al.</i> (3691)
Research of the Stormwater Runoff and Pollution Characteristics in Rural Area of Yuhang District, Hangzhou	DUAN Sheng-hui, ZHAO Yu, SHAN Bao-qing, <i>et al.</i> (3697)
Formation and Variation of Brominated Disinfection By-products in A Combined Ultrafiltration and Reverse Osmosis Process for Seawater Desalination	YANG Zhe, SUN Ying-xue, SHI Na, <i>et al.</i> (3706)
Effect of Natural Organic Matter and Electrolytes on the Aggregation of C ₆₀ Nanoparticles in Aquatic Systems	FANG Hua, JING Jie, YU Jiang-hua, <i>et al.</i> (3715)
Efficiency of Sediment Amendment with Zirconium-Modified Kaolin Clay to Control Phosphorus Release from Sediments in Heavily Polluted Rivers	WANG Hong, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (3720)
Transformation of Nitrogen Nutrients in the Urban Sewage Pipe Network	JIN Peng-kang, JIAO Ding, REN Wu-ang (3730)
Application of Micro-aerobic Hydrolysis Acidification in the Pretreatment of Petrochemical Wastewater	ZHU Chen, WU Chang-yong, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i> (3738)
Efficacy of A ² /O-MBR Combined Process in Wastewater Treatment and the Characteristics of Membrane Fouling	WANG Xu-dong, MA Ya-bin, WANG Lei, <i>et al.</i> (3743)
Effect of High Ammonium on Nitrogen Removal in an Partial Nitrification-ANAMMOX Process with Reflux System	LI Xiang, CUI Jian-hong, YUAN Yan, <i>et al.</i> (3749)
Reductive Dechlorination of Trichloroethylene by Benzoate-Enriched Anaerobic Cultures	LI Jiang-wei, YANG Xiao-yong, HU An-yi, <i>et al.</i> (3756)
2,4,6-Trichlorophenol Mineralization Promoted by Anaerobic Reductive Dechlorination of Acclimated Sludge and Extracellular Respiration Dechlorination Pathway	SONG Jia-xiu, LI Ling, SHENG Fan-fan, <i>et al.</i> (3764)
Short or Long Term Influence of Phenol on Nitrogen Removal Efficiency of ANAMMOX Sludge	YANG Peng-bing, LI Xiang, HUANG Yong, <i>et al.</i> (3771)
Process Optimization of Aerobic Granular Sludge Continuous-Flow System for the Treatment of Low COD/N Ratio Sewage	LU Lei, XIN Xin, LU Hang, <i>et al.</i> (3778)
Long-Term Inhibition of FNA on Aerobic Phosphate Uptake and Variation of Phosphorus Uptake Properties of the Sludge	MA Juan, LI Lu, YU Xiao-jun, <i>et al.</i> (3786)
Performance and Factors Analysis of Sludge Dewatering in Different Wastewater Treatment Processes	LIU Ji-bao, LI Ya-ming, LÜ Jian, <i>et al.</i> (3794)
Effect of Residual Hydrogen Peroxide on Hydrolysis Acidification of Sludge Pretreated by Microwave -H ₂ O ₂ -Alkaline Process	JIA Rui-lai, LIU Ji-bao, WEI Yuan-song, <i>et al.</i> (3801)
Vertical Distribution Characteristics of Typical Forest Soil Organic Nitrogen in Dawei Mountain	DING Xian-qing, MA Hui-jing, ZHU Xiao-long, <i>et al.</i> (3809)
Effects of Different Land Uses on Soil Active Organic Carbon and Nitrogen Fractions in Jinyun Mountain	QI Xin, JIANG Chang-sheng, HAO Qing-ju, <i>et al.</i> (3816)
Control of Soil Nutrient Loss of Typical Reforestation Patterns Along the Three Gorges Reservoir Area	WU Dong, HUANG Zhi-lin, XIAO Wen-fa, <i>et al.</i> (3825)
Effects of Slope Position and Soil Horizon on Soil Microbial Biomass and Abundance in Karst Primary Forest of Southwest China	FENG Shu-zhen, SU Yi-rong, ZHANG Wei, <i>et al.</i> (3832)
Effects of Different Plantation Type on the Abundance and Diversity of Soil Microbes in Subtropical Red Soils	SHEN Bing-jie, ZHU Zhen-ke, YUAN Hong-zhao, <i>et al.</i> (3839)
Accumulation of Mercury in Soil-maize System of Non-ferrous Metals Smelting Area and Its Related Risk Assessment	JI Xiao-feng, ZHENG Na, WANG Yang, <i>et al.</i> (3845)
Effects of Different Modifier Concentrations on Lead-Zinc Tolerance, Subcellular Distribution and Chemical Forms for Four Kinds of Woody Plants	CHEN Yong-hua, ZHANG Fu-yun, WU Xiao-fu, <i>et al.</i> (3852)
Isolation, Purification and Identification of Antialgal Activity Substances of Ethyl Acetate Extracts from the Submerged Macrophytes <i>Potamogeton crispus</i>	SUN Ying-ying, SU Zhen-xia, PU Yin-fang, <i>et al.</i> (3860)
Distribution Characteristics and Potential Risk of CBs in Aquatic Organisms from Typical Epidemic Areas of Schistosomiasis Prevalence	LI Kun, ZHAO Gao-feng, ZHOU Huai-dong, <i>et al.</i> (3866)
Application of Whole-cell Biosensor ADPI _p WHlux for Acute Toxicity Detection in Water Environment	TANG Hui, SONG Yi-zhi, JIANG Bo, <i>et al.</i> (3872)
Application of Rainbow Trout CYP1 Gene Expression Patterns in Gill and Liver for Haihe River Bio-monitoring	GAO Kai, YAN Pei, TAN Cui-ling, <i>et al.</i> (3878)
Toxic Effect of Nano-ZnO in Liver of Zebrafish	LIU Lin, ZHAO Qun-fen, JIN Kai-xing, <i>et al.</i> (3884)
Acute Toxicity of <i>Coptis chinensis</i> Rhizome Extracts to <i>Daphnia carinata</i>	CHEN Ya-nan, YUAN Ling (3892)
Adsorption-desorption Characteristics of Fermented Rice Husk for Ferrous and Sulfur Ions	XIE Xiao-mei, LIAO Min, HUA Jia-yuan, <i>et al.</i> (3896)
Application of Stir Bar Sorptive Extraction and Gas Chromatograph Mass Spectrometer to the Phthalic Acid Esters Analysis in Seawater	GAO Chen-chen, LI Feng-min, LU Lun, <i>et al.</i> (3906)
Experimental Conditions and Reliability Analysis of Results of COD Components	LI Zhi-hua, ZHANG Yin, HAN Xing, <i>et al.</i> (3913)
Method for Simultaneous Determination of 11 Veterinary Antibiotics in Piggery Wastewater and Sludge and Its Application in Biological Treatment	DING Jia-li, LIU Rui, ZHENG Wei, <i>et al.</i> (3918)
Research Progress in Technology of Using Soil Micro-organisms to Generate Electricity and Its Potential Applications	DENG Huan, XUE Hong-jing, JIANG Yun-bin, <i>et al.</i> (3926)

《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 刘 毅 汤鸿霄 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)

2015年10月15日 第36卷 第10期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 10 Oct. 15, 2015

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: 120.00 元

国外发行代号: M 205

国 内 外 公 开 发 行