

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第10期

Vol.38 No.10

**2017**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

中国城市热岛时空特征及其影响因子的分析 ..... 曹畅, 李旭辉, 张弥, 刘寿东, 徐家平 (3987)  
卫星遥感在 NO<sub>x</sub> 总量控制中的应用 ..... 武卫玲, 薛文博, 王燕丽, 雷宇 (3998)  
京津冀城市群空气污染的模式总结与治理效果评估 ..... 王振波, 梁龙武, 林雄斌, 刘海猛 (4005)  
南京北郊冬春季气溶胶数浓度变化特征分析 ..... 吴丹, 张璠, 刘刚, 吴明, 夏俊荣, 盖鑫磊, 李凤英, 杨孟 (4015)  
冬季临安大气本底站气溶胶来源解析及其粒径分布特征 ..... 施双双, 王红磊, 朱彬, 林旭, 郭婷, 沙丹丹, 蒋琳, 张玉欣, 师远哲 (4024)  
成都市大气颗粒物粒径分布及水溶性离子组成的季节变化特征 ..... 陶月乐, 李亲凯, 张俊, 李斯奇, 李晓东 (4034)  
泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子季节变化特征及来源解析 ..... 张云峰, 于瑞莲, 胡恭任, 孙境蔚, 张棕巍, 许文质 (4044)  
2011~2012 年北京大气 PM<sub>2.5</sub> 中重金属的污染特征与来源分析 ..... 周雪明, 郑乃嘉, 李英红, 段菁春, 谭吉华, 张元勋, 贺克斌, 马永亮 (4054)  
厦门海沧区 PM<sub>2.5</sub> 中金属元素污染评价及来源分析 ..... 赵莉斯, 于瑞莲, 徐玲珍, 胡恭任, 吴鑫, 陈衍婷 (4061)  
道路扬尘 PM<sub>2.5</sub> 中金属元素污染特征及健康风险评价 ..... 张静, 张衍杰, 方小珍, 李风华, 吴琳, 毛洪钧 (4071)  
福建九仙山大气 PM<sub>10</sub> 及部分化学组成的季节变化 ..... 魏雅, 林长城, 胡清华, 吴水平 (4077)  
北京城区冬季空气污染时期 C2~C6 碳氢化合物含量特征 ..... 李月, 魏巍, 杨干, 陈东升, 程水源, 韩力慧 (4084)  
2016 年北京市春节大气颗粒物污染特征激光雷达监测分析 ..... 石琳琳, 李令军, 李倩, 姜磊, 周一鸣, 李云婷, 刘保献, 张大伟 (4092)  
廊坊市夏季臭氧体积分数影响因素及生成敏感性 ..... 李磊, 赵玉梅, 王旭光, 刘炜, 佟洁, 宋丽芸, 李怀瑞, 王清川 (4100)  
人类活动对漓江地表水体水-岩作用的影响 ..... 李磊, 赵玉梅, 王旭光, 刘炜, 佟洁, 宋丽芸, 李怀瑞, 王清川 (4108)  
岩溶区水库冬季溶解有机质组成特征及来源:以桂林五里峡水库为例 ..... 卢晓漩, 彭文杰, 李强, 房君佳, 靳振江, 宋昂, 黄炳惠, 于爽 (4120)  
岩溶关键带微量元素运移的时空变化:以豫西鸡冠洞为例 ..... 梁沙, 杨琰, 张娜, 孙喆, 张萍, 田宁, 凌新有, 任小敏 (4130)  
龟石水库夏季富营养化状况与蓝藻水华暴发特征 ..... 苟婷, 马千里, 王振兴, 王丽, 姚玲爱, 许振成, 赵学敏, 梁荣昌, 蓝郁 (4141)  
阿哈水库叶绿素 a 时空分布特征及其与藻类、环境因子的关系 ..... 罗宜富, 李磊, 李秋华, 焦树林, 李红梅, 陈峰峰 (4151)  
天目湖沙河水库浮游植物群落结构的时空异质性 ..... 孙祥, 朱广伟, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽, 史浩辰, 杭心语, 徐涤非 (4160)  
程海沉积物重金属时空变化及人为污染与潜在生态风险 ..... 于真真, 刘恩峰, 张恩楼, 林琪, 沈吉, 王荣, 李艳玲 (4169)  
自然降雨条件下红壤坡地磷素随径流垂向分层输出特征 ..... 左继超, 郑海金, 奚同行, 王凌云, 聂小飞, 刘昭 (4178)  
邻苯二甲酸酯在三峡库区消落带非淹水期土壤中污染特征及健康风险 ..... 杨婷, 何明靖, 杨志豪, 魏世强 (4187)  
滦河干流水体多环芳烃与有机氯农药季节性分布、组成及源解析 ..... 王乙震, 张世禄, 孔凡青, 袁媛 (4194)  
潍坊滨海经济技术开发区饮用水中有机磷酸酯的水平及人体暴露风险评估 ..... 董政, 马玉龙, 李珺琪, 袁浩东, 金军, 王英 (4212)  
道路灰尘中有机磷阻燃剂污染特征及人体暴露 ..... 李静, 王俊霞, 许婉婷, 尚荣双, 顾海东, 温耀进, 张丽君 (4220)  
居民经手口途径摄入含 PAHs 颗粒物的致癌风险评价 ..... 佟瑞鹏, 杨校毅, 张磊, 程蒙召 (4228)  
基于空间自相关的地下水脆弱性时空演变 ..... 刘宇, 兰双双, 张永祥, 李芳春, 侯树楷 (4236)  
Ag-AgI/CN/MA 复合物的制备及其可见光催化性能 ..... 张塞, 张丽丽, 胡春 (4245)  
凤眼莲对富营养化水体中氨氮化和反硝化微生物的影响 ..... 李洁, 蒋丽娟, 王晓琳, 肖琳 (4253)  
利用含 Cu(II) 废水强化微生物燃料电池处理含 Cr(VI) 废水 ..... 熊晓敏, 吴夏芈, 贾红华, 雍晓雨, 周俊, 韦萍 (4262)  
生态高负荷土地快速渗滤系统处理猪场废水的效能及微生态 ..... 宿程远, 刘凡凡, 钟余, 黄智, 郑鹏, 农志文, 卢宇翔 (4271)  
细菌对城市污水中小球藻生长和油脂积累的影响 ..... 涂仁杰, 金文标, 韩松芳, 陈洪一 (4279)  
污水处理厂消毒技术对抗生素抗性菌的强化去除 ..... 刘亚兰, 马岑鑫, 丁河舟, 邱勇, 李冰, 王硕, 李激 (4286)  
AnMBR-A-MBR 和 A<sup>2</sup>-MBR 工艺处理焦化废水效果与急性毒性物质特征对比 ..... 朱佳迪, 李菲菲, 陈吕军 (4293)  
基于实时控制技术的 CANON 工艺稳定性运行 ..... 孙延芳, 韩晓宇, 张树军, 李星, 曹相生 (4302)  
新型硫铁复合填料强化再生水深度脱氮除磷 ..... 周彦卿, 郝瑞霞, 刘思远, 王丽莎 (4309)  
连续流亚硝化中试反应器的启动及其能力提升 ..... 朱强, 刘凯, 董石语, 顾澄伟, 王凡, 李祥, 黄勇 (4316)  
基于不同接种污泥复合型厌氧氨氧化反应器的快速启动特征 ..... 阎刚, 李田, 徐乐中, 沈耀良, 吴鹏, 张婷, Samwine Thomas (4324)  
两段式曝气对好氧颗粒污泥脱氮性能的影响 ..... 王文啸, 卞伟, 王盟, 阚睿哲, 赵青, 梁东博, 李军 (4332)  
醋糟高效厌氧消化体系构建 ..... 周云龙, 许之扬, 赵明星, 施万胜, 黄振兴, 何迪, 阮文权 (4340)  
基于总量及形态的土壤重金属生态风险评价对比:以龙岩市适中镇为例 ..... 王蕊, 陈明, 陈楠, 刘冠男, 张二喜, 刘晓端, 张佳文 (4348)  
锌冶炼区耕地土壤和农作物重金属污染状况及风险评价 ..... 陈凤, 董泽琴, 王程程, 韦雪花, 胡宇, 张丽娟 (4360)  
三峡库区典型消落带 CH<sub>4</sub> 排放的变化特征及影响因素 ..... 柴雪思, 郝庆菊, 黄哲, 范志伟, 江长胜 (4370)  
地膜覆盖对菜地生态系统 N<sub>2</sub>O 排放的影响 ..... 冯迪, 郝庆菊, 张凯莉, 石将来, 石孝均, 江长胜 (4380)  
不同用量竹炭对污泥堆肥过程温室气体排放的影响 ..... 向秋洁, 杨雨洽, 张成, 相欣奕, 木志坚 (4390)  
半固态培养条件下烟曲霉去除土壤中镉 ..... 陈耀宁, 汪元南, 黎媛萍, 李辉, 陈艳容, 伍艳馨, 苟宇, 朱福造, 张道利, 刘耀, 曾光明 (4398)  
猪粪堆肥过程中金霉素去除及重金属形态变化 ..... 温沁雪, 曹永森, 陈志强 (4405)  
堆肥-生物强化对重度石油污染土壤的修复作用 ..... 吴蔓莉, 陈凯丽, 叶茜琼, 祁燕云, 徐会宁, 王卓, 薛鹏飞, 朱常琳 (4412)  
微生物多样性对土壤碳代谢特征的影响 ..... 安丽芸, 李君剑, 严俊霞, 李洪建 (4420)  
冬小麦田 O<sub>3</sub> 气孔与非气孔沉降及风险评估 ..... 徐静馨, 郑有飞, 赵辉, 储仲芳, 黄积庆, 袁月 (4427)  
中国西南酸雨区降水化学特征研究进展 ..... 周晓得, 徐志方, 刘文景, 武瑶, 赵童, 蒋浩 (4438)  
《环境科学》征稿简则(4261) 《环境科学》征订启事(4270) 信息(4186, 4404, 4446)

# 泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子季节变化特征及来源解析

张云峰<sup>1,2</sup>, 于瑞莲<sup>1</sup>, 胡恭任<sup>1\*</sup>, 孙境蔚<sup>1,2</sup>, 张棕巍<sup>1</sup>, 许文质<sup>3</sup>

(1. 华侨大学环境科学与工程系, 厦门 361021; 2. 泉州师范学院资源与环境科学学院, 泉州 362000; 3. 泉州市环境监察支队, 泉州 362000)

**摘要:** 为掌握泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中无机水溶性离子的季节变化特征, 于 2014 年 3 月 ~ 2015 年 1 月同步采集了泉州市 5 个采样点共 116 个 PM<sub>2.5</sub> 样品. 用离子色谱法分析了 PM<sub>2.5</sub> 中 Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、F<sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 等 9 种水溶性无机离子. 观测期间, 总水溶性离子浓度季节变化特征为春季 (14.24 ± 6.43) μg·m<sup>-3</sup> > 冬季 (8.54 ± 7.61) μg·m<sup>-3</sup> > 夏季 (4.10 ± 2.67) μg·m<sup>-3</sup> > 秋季 (3.91 ± 2.58) μg·m<sup>-3</sup>; SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> (SNA) 是 PM<sub>2.5</sub> 中主要的 3 种离子, 占水溶性离子总质量浓度比例分别为春季 (90.3 ± 3.3)%、夏季 (68.8 ± 11.7)%、秋季 (78.9 ± 7.1)% 和冬季 (74.0 ± 18.4)%, 说明春季二次污染较为严重; PM<sub>2.5</sub> 中阴、阳离子电荷平衡分析显示, 阴离子相对亏损, 大气细颗粒物组分呈弱碱性; 春、冬季 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 主要以 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub> 和 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 等形式存在, 而夏、秋季则主要以 NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub> 和 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 形式存在; PMF 源解析结果表明, 泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子主要来自海盐、二次源、建筑扬尘、垃圾焚烧源和生物质燃烧源.

**关键词:** 泉州市; PM<sub>2.5</sub>; 水溶性离子; 季节变化; 来源

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)10-4044-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201703108

## Seasonal Variation and Source Apportionment of Water-Soluble Ions in PM<sub>2.5</sub> in Quanzhou City

ZHANG Yun-feng<sup>1,2</sup>, YU Rui-lian<sup>1</sup>, HU Gong-ren<sup>1\*</sup>, SUN Jing-wei<sup>1,2</sup>, ZHANG Zong-wei<sup>1</sup>, XU Wen-zhi<sup>3</sup>

(1. Department of Environmental Science and Engineering, Huaqiao University, Xiamen 361021, China; 2. School of Resources and Environmental Science, Quanzhou Normal University, Quanzhou 362000, China; 3. Quanzhou Environmental Supervising Detachment, Quanzhou 362000, China)

**Abstract:** In this study, the seasonal characteristics of water-soluble ions (WSIs) present in fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) in Quanzhou City were investigated. PM<sub>2.5</sub> samples were collected at five different sites in the city from March 2014 to January 2015 and the concentrations of Na<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, F<sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, and SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> were determined by ion-exchange chromatography. In order to identify the sources of these WSIs, the positive matrix factorization (PMF) analysis was applied. The seasonal variations in total WSI concentrations were found to decrease in the order of spring > winter > summer > autumn. The ions SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, and NH<sub>4</sub><sup>+</sup> were the major WSIs found in PM<sub>2.5</sub>, accounting for 90.3% ± 3.3%, 68.8% ± 11.7%, 78.9% ± 7.1%, and 74.0% ± 18.4% of the total amount of ions found in spring, summer, autumn, and winter, respectively. These results suggested that the level of secondary ions was relatively high in the spring season. The anion-to-cation ratio in each of the four seasons was less than one, which indicated that PM<sub>2.5</sub> in Quanzhou City was slightly alkaline. Furthermore, NH<sub>4</sub><sup>+</sup> ions in PM<sub>2.5</sub> mostly existed in the form of (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>, and NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> during spring and winter, while they were primarily found as NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub> and NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> in the summer and autumn seasons. PMF analysis revealed that marine salt, secondary sources, fugitive dust from construction, municipal incineration, and biomass burning were the main potential sources of the ionic components of PM<sub>2.5</sub>.

**Key words:** Quanzhou City; PM<sub>2.5</sub>; water-soluble ions; seasonal variation; source

PM<sub>2.5</sub>对大气环境质量和人体健康的不利影响已经得到国内外学者的普遍认识<sup>[1,2]</sup>. 近年来为有效控制大气 PM<sub>2.5</sub> 污染, 研究者已对 PM<sub>2.5</sub> 的化学组成<sup>[3,4]</sup>、污染来源<sup>[5]</sup>、区域传输规律<sup>[6,7]</sup>等展开了广泛而深入的研究. 无机水溶性离子是 PM<sub>2.5</sub> 的重要组成部分, 研究显示, 水溶性离子占 PM<sub>2.5</sub> 总质量的比例一般在 20% ~ 60%<sup>[7-10]</sup>, 最高可达 80% 以上<sup>[11,12]</sup>. 显然, 研究 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子的浓度

特征对全面掌握 PM<sub>2.5</sub> 化学特性和来源解析具有重要的意义. 目前, 国内主要城市大气颗粒物中水溶性离子污染特征的研究已充分开展<sup>[13-15]</sup>.

收稿日期: 2017-03-14; 修订日期: 2017-05-14

基金项目: 国家自然科学基金项目 (21477042, 21377042); 福建省自然科学基金项目 (2016J01065, 2015J01600); 福建省中青年教育科研项目 (JA13273)

作者简介: 张云峰 (1980 ~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为大气环境化学, E-mail: zyfbest@163.com

\* 通信作者, E-mail: grhu@hqu.edu.cn

泉州市地处福建省东南沿海, 与台湾省隔海相望, 是我国“一带一路”战略海上丝绸之路的先行区。在经济高速发展的同时, 泉州作为国家环保模范城市, 其大气环境问题得到越来越多的关注<sup>[16]</sup>。目前针对泉州大气 PM<sub>2.5</sub> 化学组成特征的研究报道较少, 涉及泉州市大气颗粒物水溶性离子污染特征的研究主要是针对海峡西岸城市群开展进行的<sup>[17, 18]</sup>, 而单独对泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子变化特征进行的研究罕见报道。因此, 本文以泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 为研究对象, 在春、夏、秋、冬季代表月份同步采集了泉州市区 5 个采样点共 116 个有效 PM<sub>2.5</sub> 样品, 分析

了 PM<sub>2.5</sub> 中无机水溶性离子的浓度水平、季节变化特征和污染来源, 以期为泉州市进一步开展大气 PM<sub>2.5</sub> 化学组成特征分析和来源解析提供基础数据, 同时也为控制大气 PM<sub>2.5</sub> 污染提供科学依据。

## 1 材料与方法

### 1.1 采样方法

综合考虑功能区分布、区域主导风向和人口密集程度, 结合现有监测站位, 布置 5 个采样站位 (背景点 1 个, 商业居住区 3 个, 居住工业混合区 1 个)。各采样点位详细信息见表 1。

表 1 采样站位情况描述

Table 1 Specific description of sampling sites

采样点类型	站点编号	经度	纬度	采样高度(约)/m	站点描述
背景点	BG	24°56'12.4"N	118°35'43.9"E	7	清源街道环山村某民房屋顶
商业居住区	RD1	24°54'22.4"N	118°35'34.8"E	9	九一街中国银行办公楼屋顶
商业居住区	RD2	24°54'02.5"N	118°36'15.2"E	24	丰泽新村某居民楼屋顶
商业居住区	RD3	24°55'08.9"N	118°39'01.5"E	10	城东街道东辅路某民房屋顶
居住工业混合区	ID	24°52'19.9"N	118°33'52.0"E	12	清濛工业园区某企业办公楼屋顶

采样分春、夏、秋、冬 4 个季节进行。春季采样时间为 2014 年 3 月 30 日~4 月 1 日共 3 d; 夏季采样时间为 2014 年 7 月 17~21 日、2014 年 7 月 26~27 日共 7 d; 秋季采样时间为 2014 年 10 月 1~7 日共 7 d; 冬季采样时间为 2015 年 1 月 8~14 日共 7 d。每天同步采集 5 个 PM<sub>2.5</sub> 样品, 每个样品连续采样 23 h (08:00~次日 07:00)。采样仪器为武汉天虹 TH-150 型中流量采样器, 设定采样流量为 100 L·min<sup>-1</sup>。采样滤膜为聚丙烯纤维滤膜 (PPFs,  $\phi$  90 mm), 采样前后所有滤膜经恒温恒湿平衡 24 h (温度为 25℃, 相对湿度为 50%) 后于电子天平称重 (T-114 型, Sartorius 公司, 德国)。大气 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度测定根据 HJ618-2011《环境空气 PM<sub>10</sub> 和 PM<sub>2.5</sub> 的测定 重量法》<sup>[19]</sup> 要求进行。所有 PM<sub>2.5</sub> 样品均用聚乙烯自封袋密封并于 -18℃ 下冷冻保存。

### 1.2 分析方法

将 1/4 张 PM<sub>2.5</sub> 滤膜用陶瓷剪刀剪碎, 用 10 mL 超纯水浸泡在 15 mL 聚丙烯离心管中, 经超声萃取 30 min 后静置, 上层液经微孔滤膜 (0.45  $\mu$ m) 过滤后, 转移至 2 mL 的进样瓶中进行上机分析。分析仪器为离子色谱仪 (ICS-3000 型, Dionex 公司, 美国)。9 种水溶性离子 (F<sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup> 和 Mg<sup>2+</sup>) 的详细分析方法见文献<sup>[10]</sup>。

### 1.3 质量保证与质量控制

分析用的玻璃器皿清洗干净后, 再用超纯水浸泡超过 24 h, 并超声波处理 30 min。样品处理用水为超纯水 (电阻率 > 18 M $\Omega$ ·cm)。标准曲线相关系数达到 0.999 以上。分析结果扣除空白。样品测定过程中每 10 个样品间加入一个标准样品进行测定, 以检测仪器的稳定性。浓度高的样品进行稀释处理后再进行测定, 保证结果的准确性。水溶性阴阳离子检出限均为 0.05  $\mu$ g·mL<sup>-1</sup>。水溶性离子的标准样购自国家标准物质标准样品信息中心。

### 1.4 PMF 源解析方法

正矩阵因子分解法 (positive matrix factorization, PMF) 是美国 EPA 推荐的源解析方法。PMF 模型是将样品数据矩阵  $X(n \times m)$  分解为源成分谱矩阵  $F(p \times m)$  和源贡献矩阵  $G(n \times p)$  以及一个残差矩阵  $E(p \times m)$ , 定义为:

$$E = X_{nm} - \sum_{j=1}^p G_{np} F_{pm}$$

式中,  $X_{nm}$  为第  $n$  个样品中的第  $m$  个水溶性离子组分;  $p$  为源的数目。PMF 算法中, 约束矩阵  $F$  和矩阵  $G$  为非负, 构造目标函数  $Q$ , 采用最小二乘法进行迭代计算求出使得目标函数  $Q$  值最小的  $F$  和  $G$ , 目标函数定义如下:

$$Q(E) = \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n (E_{ij}/\sigma_{ij})^2$$

式中,  $\sigma_{ij}$  为第  $j$  个样品中第  $i$  个水溶性离子组分的标准偏差或不确定性 (uncertainty)<sup>[20]</sup>. 本文采用美国 EPA PMF 5.0 软件对泉州市大气  $PM_{2.5}$  中水溶性离子来源进行定量解析.

## 2 结果与讨论

### 2.1 $PM_{2.5}$ 质量浓度季节变化特征

图 1 为泉州市  $PM_{2.5}$  质量浓度的季节变化. 从中可知, 各采样点  $PM_{2.5}$  质量浓度变化趋势基本一致, 说明其具有相似的污染来源. 采样期间泉州市大气  $PM_{2.5}$  质量浓度平均值为  $(40.6 \pm 18.2) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . 从季节变化特点来看,  $PM_{2.5}$  质量浓度由高到低顺序为春季  $(60.0 \pm 17.8) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  夏季  $(41.3 \pm 16.7) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  冬季  $(31.0 \pm 17.0) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$

秋季  $(30.2 \pm 10.5) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . 从空间变化特征来看, 5 个采样点大气  $PM_{2.5}$  质量浓度由高到低分别为: ID  $(48.7 \pm 19.0) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  RD1  $(36.1 \pm 21.4) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  RD2  $(40.2 \pm 17.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  RD3  $(31.3 \pm 12.7) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  BG  $(31.1 \pm 13.8) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . 可见泉州市  $PM_{2.5}$  总体污染程度较轻, 质量浓度水平远低于北方城市<sup>[21, 22]</sup>, 略低于福建省的福州<sup>[23]</sup>、厦门<sup>[10, 23]</sup>和漳州<sup>[24]</sup>等相邻城市, 这与泉州市积极推行锅炉煤改气的能源使用政策有一定的关系. 工业居住混合区 (ID)  $PM_{2.5}$  污染程度高于背景点 (BG) 和居住区 (RD1、RD2 和 RD3). BG 采样点  $PM_{2.5}$  质量浓度水平与 RD3 相仿, 但均低于 RD1 和 RD2 两个采样点. 这主要是由于 RD1 和 RD2 位于中心城区, 为人口密集的交通繁忙区域, 而 RD3 则位于城郊区域.

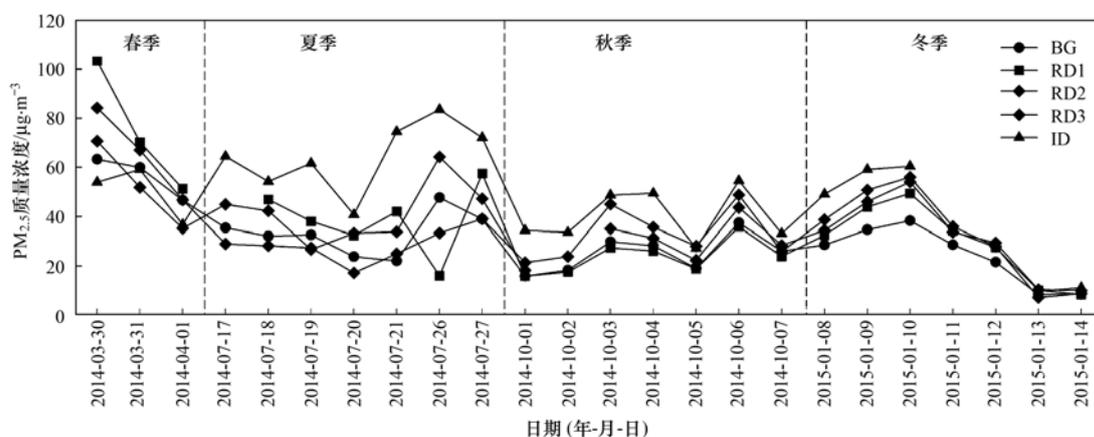


图 1 泉州市  $PM_{2.5}$  质量浓度的季节变化特征

Fig. 1 Seasonal variations in  $PM_{2.5}$  in Quanzhou City

### 2.2 水溶性离子浓度季节变化特征

采样期间, 水溶性离子浓度水平由高到低顺序为  $\text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^- > \text{NH}_4^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{K}^+ > \text{Cl}^- > \text{Mg}^{2+} > \text{Na}^+ > \text{F}^-$ . 9 种水溶性离子总质量浓度在春、夏、秋和冬季分别为  $(14.24 \pm 6.43)$ 、 $(4.10 \pm 2.67)$ 、 $(3.91 \pm 2.58)$  和  $(8.54 \pm 7.61) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 春、冬季高于夏、秋季.  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  和  $\text{NH}_4^+$  (SNA) 是  $PM_{2.5}$  中主要的 3 种离子, 其占水溶性离子总质量浓度的比例在春、夏、秋和冬季分别为  $(90.3 \pm 3.3)\%$ 、 $(68.8 \pm 11.7)\%$ 、 $(78.9 \pm 7.1)$  和  $(74.0 \pm 18.4)\%$ , 说明泉州市春季大气二次污染较为严重. 值得注意的是夏季的  $PM_{2.5}$  质量浓度较高, 而离子总质量浓度水平反而在夏季相对较低. 这可能是因为夏季风速较大, 导致建筑扬尘对  $PM_{2.5}$  的贡献占比增大所致. 通过计算发现,  $\text{Ca}^{2+}$  在  $PM_{2.5}$  中的占比在不同季节分别为: 春季 0.92%、夏季 1.30%、秋季 1.09% 和冬季 1.54%. 夏季相对较高的  $\text{Ca}^{2+}$  /

$PM_{2.5}$  比值也印证了建筑扬尘在该季节对  $PM_{2.5}$  质量浓度的影响较大.

表 2 列出了国内某些城市大气  $PM_{2.5}$  水溶性离子浓度, 泉州市大气  $PM_{2.5}$  中水溶性离子浓度与厦门市较为接近, 原因是厦门与泉州同为福建省东南沿海城市, 两市地理位置和气候条件较为相似. 与其他城市相比较, 泉州市大气  $PM_{2.5}$  水溶性离子浓度明显偏低.

泉州市大气  $PM_{2.5}$  中水溶性离子的季节变化特征和相关系数矩阵如图 2 和表 3 所示. 图 2(a) 中,  $\text{Na}^+$  浓度呈现夏、秋季高于春、冬季的季节变化特征. 泉州位于福建省东南沿海, 属亚热带海洋性季风气候, 夏季风从海洋吹向陆地<sup>[16]</sup>. 夏季气温高, 海洋水蒸发量大, 在东南季风主导下夏、秋季  $\text{Na}^+$  浓度高于春、冬季. 图 2(g) 中,  $\text{Cl}^-$  的变化规律刚好与  $\text{Na}^+$  相反, 即春、冬季浓度明显高于夏、秋季, 说明  $\text{Na}^+$  和  $\text{Cl}^-$  的来源可能不同. 值得注意的是

表 2 国内某些城市 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子浓度分布/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ Table 2 Mass concentration of water-soluble ions in PM<sub>2.5</sub> in several domestic cities/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 

城市	观测年份	Na <sup>+</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	F <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	文献
泉州	2014-2015	0.02	1.32	0.32	0.48	0.05	0.02	0.24	2.23	3.01	本研究
厦门	2014(夏季)	0.12	1.96	0.23	0.24	0.12	0.06	0.07	0.74	2.67	[10]
厦门	2014(冬季)	0.19	4.29	0.5	0.38	0.03	0.07	1.47	5.49	3.94	[10]
天津	2012~2013	0.5	8.5	3.9	0.9	0.2	0.4	6.0	19.6	24.2	[13]
北京	2012~2013	1.19	13.5	1.05	0.78	0.05	0.57	3.61	20.3	19.4	[11]
苏州	2015	1.76	9.78	0.71	0.33	0.09	0.10	1.54	15.19	14.45	[15]
乌鲁木齐	2012~2012	2.59	6.74	1.31	2.95	— <sup>1)</sup>	—	4.13	6.79	12.89	[25]
广州	2014	0.40	3.80	0.70	0.20	—	—	0.20	2.20	9.30	[26]
武汉	2013	0.24	9.67	1.08	0.54	0.14	—	1.24	11.28	16.78	[27]

1) 未有相关数据

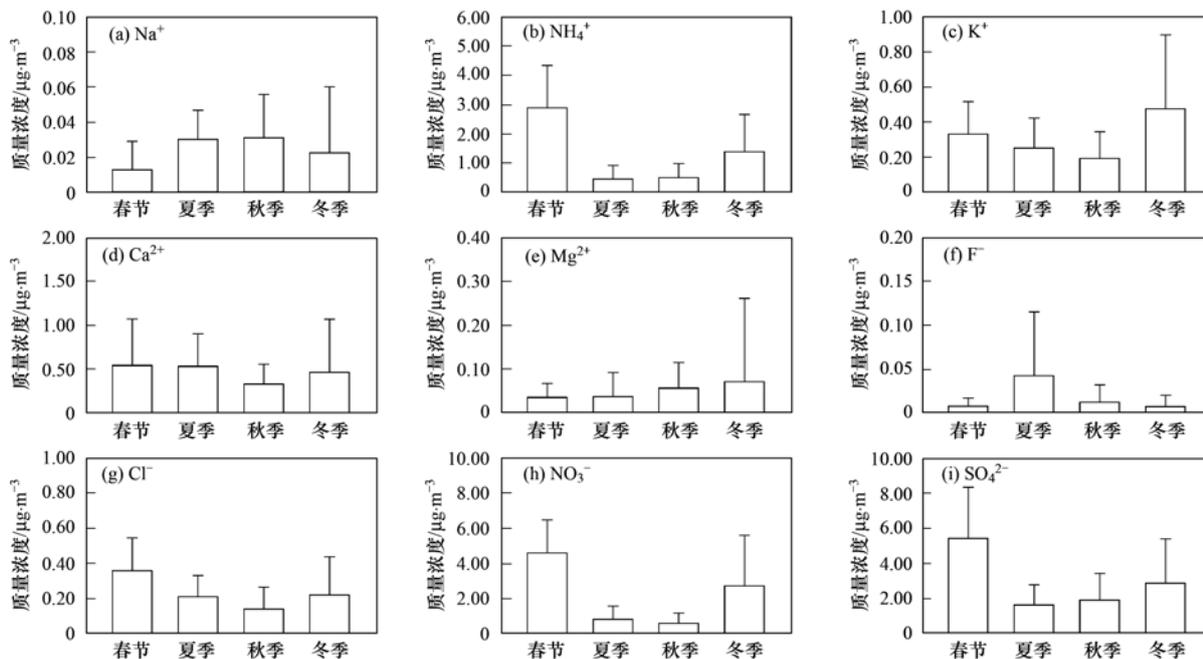
Cl<sup>-</sup> 的浓度明显高于 Na<sup>+</sup>, 不同季节 Na<sup>+</sup>/Cl<sup>-</sup> 值分别为  $0.05 \pm 0.09$  (春季)、 $0.14 \pm 0.06$  (夏季)、 $0.22 \pm 0.08$  (秋季) 和  $0.08 \pm 0.05$  (冬季)。显然夏、秋季 Cl<sup>-</sup> 损耗程度大于春、冬季, 这可能与夏、秋季温度较高, NH<sub>4</sub>Cl 易于挥发导致氯盐的损失有关<sup>[15]</sup>。通常认为海洋源是 Na<sup>+</sup> 和 Cl<sup>-</sup> 的主要来源之一, 而海水中 Na<sup>+</sup>/Cl<sup>-</sup> 值为  $0.557$ <sup>[28]</sup>, 可见泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中 Cl<sup>-</sup> 浓度相对于海水出现一定程度的富集, 说明 Cl<sup>-</sup> 除了海洋源之外还有其他来源。此外, 表 3 中, Na<sup>+</sup> 和 Cl<sup>-</sup> 的线性相关系数并不高 (仅为  $0.521$ ), 说明这两种离子之间可能存在更复杂的变量关系, 这同样说明了 Cl<sup>-</sup> 可能还有非海洋来源。有研究显示, 生活垃圾焚烧厂飞灰中存在很高比例的氯, 武博然等<sup>[29]</sup> 对国内不同城市生活垃圾焚烧厂飞灰分析发现, 飞灰中氯质量分数达  $4.6\% \sim 12.7\%$ , 可溶性氯约占到总氯的  $75\%$ 。王军等<sup>[30]</sup> 研究显示垃圾焚烧厂飞灰的氯含量为  $6.9\% \sim 29.2\%$ 。目前, 泉州市区唯一一座垃圾填埋场已经封场, 泉州市区垃圾主要运往周边垃圾焚烧厂进行处置, 采样区域周边现有垃圾焚烧厂的数量已多达 5 个。因此, 垃圾焚烧厂可能也是泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中 Cl<sup>-</sup> 的另一个主要来源。此外, Cl<sup>-</sup> 还可能来自矿物粉尘。有研究表明沙尘期大气颗粒物中矿物粉尘占比显著增加<sup>[31]</sup>, 并且矿物粉尘可能与 HCl 等酸性气体发生非均相反应形成少量含氯盐的表面覆盖层 (coating)<sup>[32]</sup>。泉州市位于我国东南沿海, 受沙尘影响并不大, 因此, 泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中 Cl<sup>-</sup> 可能主要来自海盐和垃圾焚烧厂飞灰。

大气颗粒物中水溶性 K<sup>+</sup> 可能来自海洋源<sup>[27]</sup>、燃煤源<sup>[33]</sup> 和生物质燃烧源<sup>[34]</sup>。由图 2(c) 所示, 春、冬季 K<sup>+</sup> 浓度高于夏、秋季, 可见 K<sup>+</sup> 与 Na<sup>+</sup> 的季节变化规律并不一致, 两者相关系数亦不高, 说

明海洋源可能不是泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中 K<sup>+</sup> 的主要来源。泉州市地处福建东南沿海, 夏季气温较高, 空调等制冷设备大量使用, 因此, 夏季城市煤炭用量高于其他季节。然而, K<sup>+</sup> 在夏季却处于较低水平, 可见, 燃煤源可能不是泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中 K<sup>+</sup> 的主要来源。此外, 有研究表明 K<sup>+</sup> 可能与农业生物质燃烧有关<sup>[15]</sup>, 而表 3 也显示了 K<sup>+</sup> 与 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 有较好的相关性, 为此, 春、冬季较高的 K<sup>+</sup> 浓度可能来自农业生物质燃烧源。

图 2(d) 和图 2(e) 中, Ca<sup>2+</sup> 在春、夏季浓度较高, 分别为  $(0.55 \pm 0.53) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  和  $(0.54 \pm 0.37) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。Mg<sup>2+</sup> 最高浓度则出现在冬季, 为  $(0.09 \pm 0.19) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。Ca<sup>2+</sup> 和 Mg<sup>2+</sup> 浓度季节变化特征不是很明显, 相对平缓的季节变化趋势说明 Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup> 的污染来源相对稳定。泉州市正处于经济快速发展期, 每年均有较多基础设施建设和房地产开发项目在进行。采样期间, 除了 BG 采样点外, 其他 4 个采样点周边均有多个建筑施工现场。而钙和镁是土壤扬尘和建筑扬尘的主要组成元素。因此, 建筑扬尘可能是该地区 PM<sub>2.5</sub> 中 Ca<sup>2+</sup> 和 Mg<sup>2+</sup> 的主要来源。

SNA 是泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中主要的水溶性离子, 其占全部水溶性离子总质量浓度的  $78\%$ 。由图 2(b)、图 2(h) 和图 2(i) 可看出, SNA 浓度表现出共同的季节变化特征, 即春、冬季高于夏、秋季。由表 2 可知, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 是泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中首要的水溶性离子, 其季节变化特征为春季  $(5.44 \pm 2.89) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  冬季  $(2.96 \pm 2.49) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  秋季  $(1.97 \pm 1.48) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  夏季  $(1.66 \pm 1.12) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ; NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 平均浓度由高到低为春季  $(4.61 \pm 1.86) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  冬季  $(2.84 \pm 2.84) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  夏季  $(0.84 \pm 0.73) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} >$  秋季  $(0.64 \pm 0.55) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

图2  $PM_{2.5}$  中水溶性离子季节变化特征Fig. 2 Seasonal variations in water-soluble ions in  $PM_{2.5}$ 

$NH_4^+$  平均浓度由高到低为春季 ( $2.89 \pm 1.44$ )  $\mu g \cdot m^{-3}$  > 冬季 ( $1.41 \pm 1.27$ )  $\mu g \cdot m^{-3}$  > 秋季 ( $0.52 \pm 0.48$ )  $\mu g \cdot m^{-3}$  > 夏季 ( $0.47 \pm 0.46$ )  $\mu g \cdot m^{-3}$ . 由

表3可知, SNA 之间有较高的相关系数, 说明  $NH_4^+$  主要以  $(NH_4)_2SO_4$ 、和  $NH_4NO_3$  等形式存在于大气中(铵盐的存在形式在2.3节将进一步分析).

表3 水溶性离子间相关系数矩阵<sup>1)</sup>Table 3 Matrix of correlation coefficients between water-soluble ions in  $PM_{2.5}$ 

	$Na^+$	$NH_4^+$	$K^+$	$Ca^{2+}$	$Mg^{2+}$	$F^-$	$Cl^-$	$NO_3^-$	$SO_4^{2-}$
$Na^+$	1								
$NH_4^+$	0.161	1							
$K^+$	0.376 **	0.815 **	1						
$Ca^{2+}$	0.684 **	0.370 **	0.456 **	1					
$Mg^{2+}$	0.661 **	0.436 **	0.591 **	0.646 **	1				
$F^-$	0.412 **	-0.059	0.064	0.361 **	0.145	1			
$Cl^-$	0.521 **	0.641 **	0.700 **	0.496 **	0.654 **	0.234 **	1		
$NO_3^-$	0.349 **	0.912 **	0.770 **	0.559 **	0.529 **	0.017	0.678 **	1	
$SO_4^{2-}$	0.345 **	0.952 **	0.834 **	0.548 **	0.572 **	0.039	0.639 **	0.869 **	1

1) \* \* 表示在 0.01 水平(双侧)上显著相关

$SO_4^{2-}$  主要来自燃煤排放的  $SO_2$  经均相或非均相反应的氧化过程, 比如  $SO_2$  与  $\cdot OH$  发生的均相反应,  $SO_2$  与  $H_2O_2$  或  $O_3$  发生的非均相反应<sup>[13]</sup>.  $NO_2$  则主要来自机动车尾气排放, 可通过均相和非均相氧化形成  $NO_3^-$ , 而后者与  $NH_3$  结合形成  $NH_4NO_3$ . 春冬两季泉州市区大气静稳、逆温天气出现频率高<sup>[16]</sup>, 空气相对湿度较大,  $SO_2$  可通过液相反应形成大量  $SO_4^{2-}$ <sup>[35]</sup>, 同时春、冬季较低的气温有利于  $NH_4NO_3$  颗粒的积累. 春季较高的  $PM_{2.5}$  浓度可为  $SO_2$  和  $NO_2$  的非均相氧化提供有利条件. 此外, 夏季泉州市区降水充沛, 气温高, 近地层气团对流强

烈, 有利于空气中污染物的消除和  $NH_4NO_3$  颗粒的分解. 因此, 春、冬季 SNA 浓度高于夏、秋季.

### 2.3 阴、阳离子电荷平衡及铵盐存在形式

阴、阳离子电荷平衡对大气颗粒物酸碱性具有指示意义<sup>[13, 14]</sup>. 阴离子电荷当量计算公式 AE (anion equivalent) 和阳离子电荷当量计算公式 CE (cation equivalent) 如式(1)和式(2):

$$AE = \frac{F^-}{19} + \frac{Cl^-}{35.5} + \frac{NO_3^-}{62} + \frac{SO_4^{2-}}{48} \quad (1)$$

$$CE = \frac{Na^+}{23} + \frac{NH_4^+}{18} + \frac{K^+}{39} + \frac{Ca^{2+}}{40} + \frac{Mg^{2+}}{12} \quad (2)$$

阴、阳离子电荷平衡关系如图 3 所示, 不同季节 PM<sub>2.5</sub> 中阴阳离子间均有较好的相关性, 4 个季节 AE/CE 均小于 1. 由图 3 中回归曲线的斜率可知, AE/CE 值由大到小顺序为春季 (0.989 9) > 冬季 (0.946 5) > 夏季 (0.892 1) > 秋季 (0.880 8). 可见, 泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 呈弱碱性. 春、冬季 PM<sub>2.5</sub> 中阴离子亏损大于夏、秋季, 这可能是夏、秋季气温较高, 近地层对流强烈, 产生较多的建筑扬尘, 其中含有的碱性离子 (Ca<sup>2+</sup> 和 Mg<sup>2+</sup>) 增大了 PM<sub>2.5</sub> 的碱性. AE/CE 小于 1 也意味着颗粒物中的 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 可能未被 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 和 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 完全中和, 即在中和反应中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 相对过量, 这一现象在夏、秋季尤为突出.

大气中 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 主要以 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 和 NH<sub>4</sub>Cl 等铵盐形式存在. 由于 NH<sub>4</sub>Cl 的挥发性强, 且 PM<sub>2.5</sub> 中 Cl<sup>-</sup> 相对于 SNA 含量较小, 本研究假设 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub> 和 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 是泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中铵盐的主要存在形式. 已有研究中<sup>[10, 24, 36]</sup>, 常用式(3)和式(4)计算 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 浓度.

$$[\text{NH}_4^+] = [\text{NO}_3^-] \times (18/62) + [\text{SO}_4^{2-}] \times (36/96) \quad (3)$$

$$[\text{NH}_4^+] = [\text{NO}_3^-] \times (18/62) + [\text{SO}_4^{2-}] \times (18/97) \quad (4)$$

式中, [NH<sub>4</sub><sup>+</sup>]、[NO<sub>3</sub><sup>-</sup>] 和 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>] 分别代表 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 的质量浓度 (μg·m<sup>-3</sup>). 假设 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、

NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 主要以 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 和 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 的形式存在, 采用式(3)计算 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 的浓度; 假设 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 主要以 NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub> 和 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 的形式存在时, 采用式(4)计算 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 的浓度. 然后将式(3)和式(4)计算得出的 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 浓度值与实际测定的 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 浓度值进行比较分析, 最后确定铵盐的存在形式. 显然, 上述公式并未考虑 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 和 NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub> 同时存在的情景, 这与实际情况并不完全吻合. 为了解决这一问题, 本研究对式(3)和式(4)进行了修正, 如式(5)和式(6)所示.

$$[\text{NH}_4^+] = [\text{NO}_3^-] \times (18/62) + [\text{SO}_4^{2-}]_{m1} \times (36/96) + [\text{SO}_4^{2-}]_{m2} \times (18/97) \quad (5)$$

$$[\text{SO}_4^{2-}] = [\text{SO}_4^{2-}]_{m1} + [\text{SO}_4^{2-}]_{m2} \quad (6)$$

式中, [NH<sub>4</sub><sup>+</sup>]、[NO<sub>3</sub><sup>-</sup>] 和 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>] 分别代表 NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 质量浓度 (μg·m<sup>-3</sup>), [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]<sub>m1</sub> 和 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]<sub>m2</sub> 分别代表 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 和 NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub> 中 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 的质量浓度 (μg·m<sup>-3</sup>). 通过实验数据计算得到, 春季 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]<sub>m1</sub> = 0.439 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>], [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]<sub>m2</sub> = 0.561 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]; 夏季 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]<sub>m1</sub> = -0.267 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>], [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]<sub>m2</sub> = 1.267 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]; 秋季 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]<sub>m1</sub> = -0.003 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>], [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]<sub>m2</sub> = 1.003 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]; 冬季 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]<sub>m1</sub> = 0.154 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>], [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]<sub>m2</sub> = 0.846 [SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>]. 可见, 夏、秋季 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 与 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 的结合形式主要为

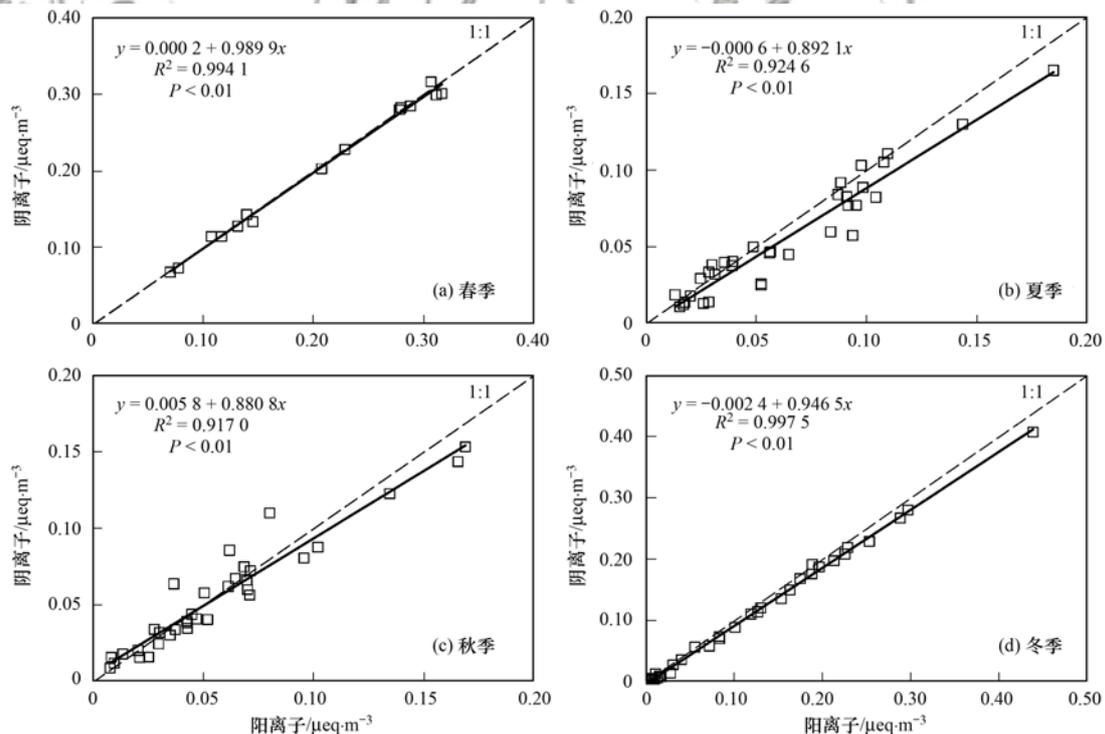


图 3 不同季节 PM<sub>2.5</sub> 中阴、阳离子电荷平衡

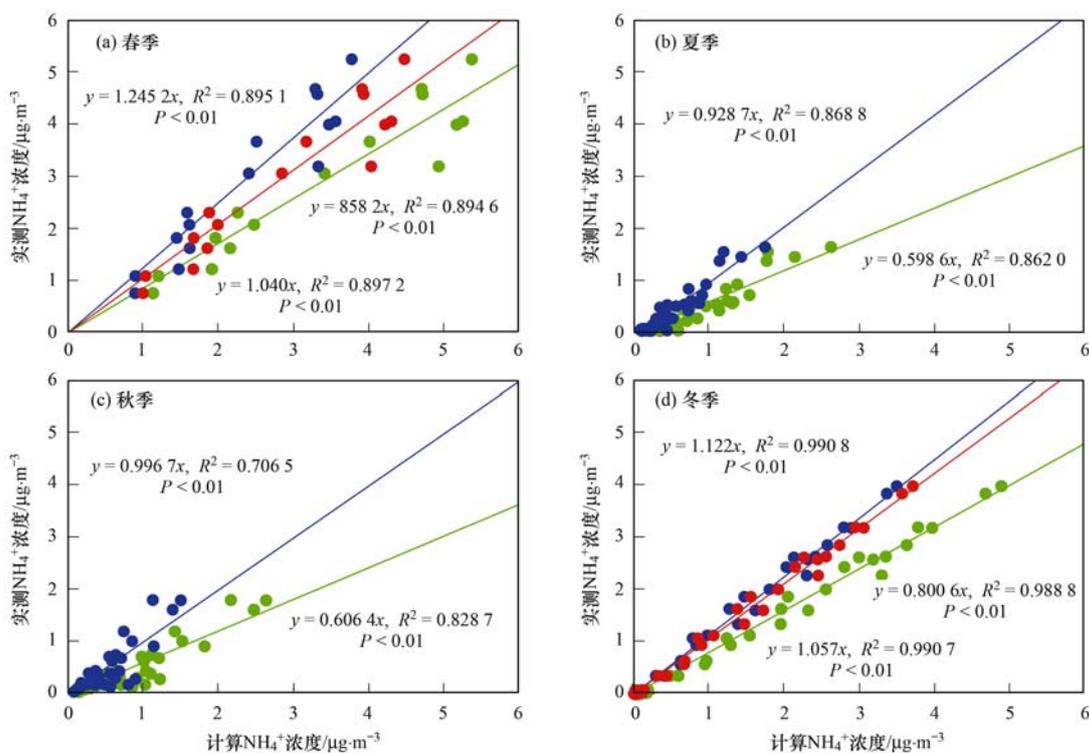
Fig. 3 Charge balance of anions and cations in water-soluble ions in four seasons

$\text{NH}_4\text{HSO}_4$ , 应采用式(4)计算理论  $\text{NH}_4^+$  浓度; 而春、冬季  $\text{NH}_4^+$  与  $\text{SO}_4^{2-}$  的结合形式为  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  和  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$ , 应采用式(5)计算理论  $\text{NH}_4^+$  浓度.

图4为不同公式计算得出的  $\text{NH}_4^+$  浓度值与实测  $\text{NH}_4^+$  浓度值的对比图. 为便于讨论, 由式(3)、式(4)和式(5)计算的  $\text{NH}_4^+$  浓度值与实测  $\text{NH}_4^+$  浓度值的回归曲线分别称为式(3)回归线、式(4)回归线和式(5)回归线. 如图4(a)和图4(d)所示, 式(3)回归线斜率小于1, 说明高估了  $\text{NH}_4^+$  浓度值, 相反, 式(4)回归线斜率大于1, 对  $\text{NH}_4^+$  浓度值的估算存在低估. 而式(5)回归线斜率接近于1, 说明采用式(5)计算的  $\text{NH}_4^+$  浓度值与实测值较为吻合. 由图4(b)和图4(c)可知, 式(4)回归线斜率比式(3)回归线更接近于1, 说明采用式(4)对  $\text{NH}_4^+$  浓

度值的估算更为准确. 此外, 从回归方程的复相关系数也可看出, 式(5)计算值与实测值的相关性在多数情况下略优于式(3)和式(4).

综合以上分析, 泉州市大气  $\text{PM}_{2.5}$  中铵盐的主要存在形式, 在春、冬季为  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 $\text{NH}_4\text{HSO}_4$  和  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ , 其中春季  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  和  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$  大致以 0.439:0.561(摩尔比)的比例混合存在, 而冬季这一比例为 0.154:0.846(摩尔比). 在夏、秋季铵盐的主要存在形式是  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$  和  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ . 本研究对已有的计算公式进行修正, 能够更好地估算泉州市大气  $\text{PM}_{2.5}$  中的  $\text{NH}_4^+$  浓度值, 并较为准确地确定铵盐存在形式. 但应注意到, 式(5)仅应用于本文研究区域, 对其他地区的适用性有待进一步研究.



绿色、蓝色和红色直线分别为式(3)、式(4)和式(5)计算浓度值与实测浓度值的回归线

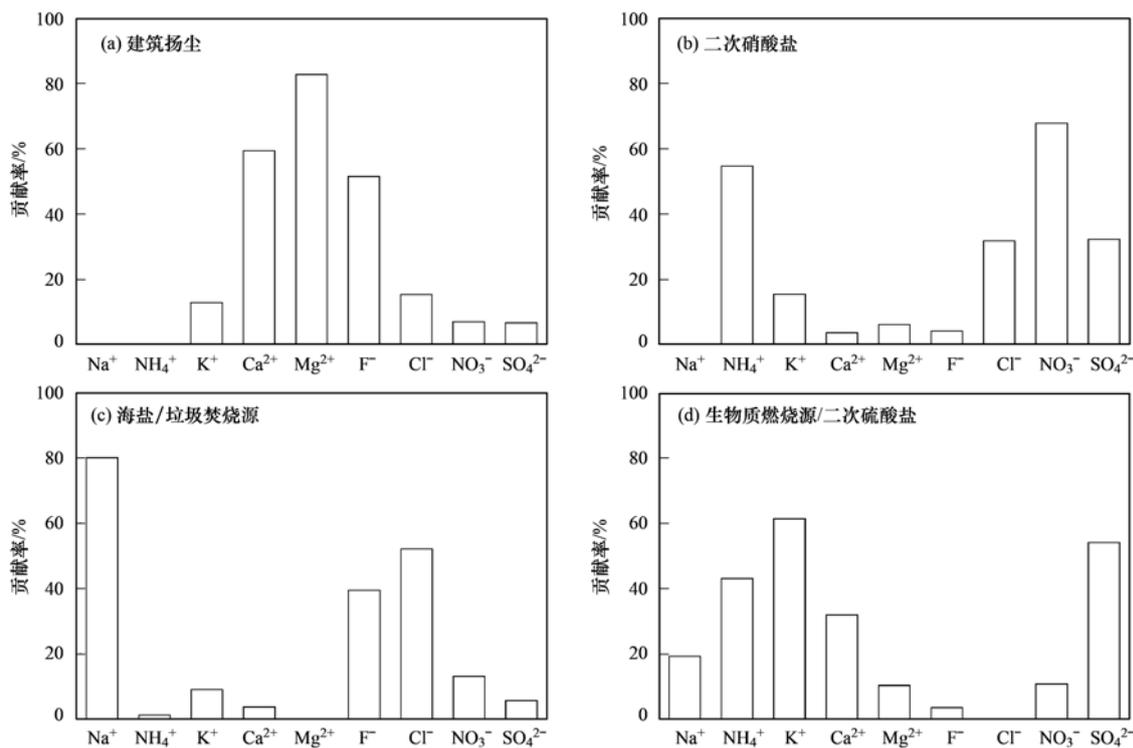
图4 计算  $\text{NH}_4^+$  浓度与实测  $\text{NH}_4^+$  浓度对比

Fig. 4 Comparisons between calculated and measured  $\text{NH}_4^+$

#### 2.4 基于 PMF 模型的水溶性离子来源解析

利用 EPA PMF 5.0 软件, 采用不同因子参数, 多次优化计算, 最终确定 4 个合理因子. PMF 解析结果如图 5 所示. 各因子对  $\text{PM}_{2.5}$  中水溶性离子的贡献率分别为, 10.2% (因子 1), 43.3% (因子 2), 9.3% (因子 3), 37.2% (因子 4). 因子 1 以  $\text{Ca}^{2+}$  和  $\text{Mg}^{2+}$  为主, 对  $\text{PM}_{2.5}$  中  $\text{Ca}^{2+}$  和  $\text{Mg}^{2+}$  的贡献率分别为 59.6% 和 82.8%, 代表了建筑扬尘. 因子 2 以  $\text{NH}_4^+$

和  $\text{NO}_3^-$  为主, 对  $\text{PM}_{2.5}$  中  $\text{NH}_4^+$  和  $\text{NO}_3^-$  的贡献率分别为 54.9% 和 67.9%, 代表二次硝酸盐粒子, 为二次源. 因子 3 以  $\text{Na}^+$  和  $\text{Cl}^-$  为主, 对  $\text{PM}_{2.5}$  中  $\text{Na}^+$  和  $\text{Cl}^-$  的贡献率分别为 80.3% 和 52.2%,  $\text{Na}^+$  和  $\text{Cl}^-$  是海盐粒子的特征离子, 同时  $\text{Cl}^-$  还可能来自燃煤和垃圾焚烧排放, 由于泉州市近年来大力推行工业锅炉改造升级, 在市区新建燃煤锅炉审批非常严格, 同时对现有锅炉正积极进行煤改气和煤改电的

图5 PM<sub>2.5</sub>中水溶性离子不同来源的贡献率Fig. 5 Contributions of different sources of water-soluble ions in PM<sub>2.5</sub>

整改工作, 因此燃煤源可能不是 Cl<sup>-</sup> 的主要贡献源, 而采样区周边有垃圾焚烧厂, 如 2.2 节所述, 垃圾焚烧厂可能是 Cl<sup>-</sup> 的主要来源之一. 因此, 因子 3 可认定为海盐和垃圾焚烧源, 因子 4 为生物质燃烧源和二次硫酸盐, 特征离子为 K<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 和 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, 对 PM<sub>2.5</sub> 中 K<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 和 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 的贡献率分别为 61.7%、43.4% 和 54.4%. 综上分析, 泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子主要来自海盐、二次源、建筑扬尘、垃圾焚烧源和生物质燃烧源.

### 3 结论

(1) 泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子浓度与厦门市相近, 但明显低于北京、天津等北方城市. 春、冬季 9 种水溶性离子总质量浓度明显高于夏、秋季. SNA 是泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 水溶性离子中的主要离子, 其占水溶性离子总质量浓度的比例为春季 (90.3 ± 3.3)%、夏季 (68.8 ± 11.7)%、秋季 (78.9 ± 7.1) 和冬季 (74.0 ± 18.4)%, 说明春季泉州市大气颗粒物二次污染比其他季节严重. 采样期间, 水溶性离子浓度水平由高到低顺序为 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> > NO<sub>3</sub><sup>-</sup> > NH<sub>4</sub><sup>+</sup> > Ca<sup>2+</sup> > K<sup>+</sup> > Cl<sup>-</sup> > Mg<sup>2+</sup> > Na<sup>+</sup> > F<sup>-</sup>, 各离子浓度季节变化特征存在一定的差异.

(2) 泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 阴阳离子电荷当量比值

(AE/CE) 大小顺序为: 春季 (0.989 9) > 冬季 (0.946 5) > 夏季 (0.892 1) > 秋季 (0.880 8), 说明 PM<sub>2.5</sub> 中阴离子相对亏损, 颗粒物组分呈弱碱性.

(3) 对理论 NH<sub>4</sub><sup>+</sup> 浓度计算公式 (3) 和式 (4) 进行修正, 解决了以往研究中未能考虑 NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub> 和 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 共存的问题. 通过修正公式 (5) 和式 (6) 确定了泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中铵盐存在主要形式: 在春、冬季铵盐为 (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub> 和 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> 这 3 种形式共存, 夏、秋季铵盐的主要存在形式是 NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub> 和 NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>.

(4) PMF 模型解析了泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子主要来自海盐、二次源 (二次硝酸盐和二次硫酸盐)、建筑扬尘、垃圾焚烧源和生物质燃烧源.

#### 参考文献:

- [1] Tam W W S, Wong T W, Wong A H S. Association between air pollution and daily mortality and hospital admission due to ischaemic heart diseases in Hong Kong [J]. Atmospheric Environment, 2015, **120**: 360-368.
- [2] Gao Y, Guo X Y, Ji H B, et al. Potential threat of heavy metals and PAHs in PM<sub>2.5</sub> in different urban functional areas of Beijing [J]. Atmospheric Research, 2016, **178-179**: 6-16.
- [3] Hua Y, Cheng Z, Wang S X, et al. Characteristics and source apportionment of PM<sub>2.5</sub> during a fall heavy haze episode in the Yangtze River Delta of China [J]. Atmospheric Environment, 2015, **123**: 380-391.
- [4] Sánchez-Soberón F, Rovira J, Mari M, et al. Main components

- and human health risks assessment of  $PM_{10}$ ,  $PM_{2.5}$ , and  $PM_1$  in two areas influenced by cement plants [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **120**: 109-116.
- [ 5 ] Cesari D, Donato A, Conte M, *et al.* An inter-comparison of  $PM_{2.5}$  at urban and urban background sites: chemical characterization and source apportionment [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **174-175**: 106-119.
- [ 6 ] Kaneyasu N, Yamamoto S, Sato K, *et al.* Impact of long-range transport of aerosols on the  $PM_{2.5}$  composition at a major metropolitan area in the northern Kyushu area of Japan [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **97**: 416-425.
- [ 7 ] Li T C, Yuan C S, Huang H C, *et al.* Clustered long-range transport routes and potential sources of  $PM_{2.5}$  and their chemical characteristics around the Taiwan Strait [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **148**: 152-166.
- [ 8 ] Huang T, Chen J, Zhao W T, *et al.* Seasonal variations and correlation analysis of water-soluble inorganic ions in  $PM_{2.5}$  in Wuhan, 2013 [J]. *Atmosphere*, 2016, **7**(4): 49.
- [ 9 ] 王新, 聂燕, 陈红, 等. 兰州城区大气  $PM_{2.5}$  污染特征及来源解析 [J]. *环境科学*, 2016, **37**(5): 1619-1628.  
Wang X, Nie Y, Chen H, *et al.* Pollution characteristics and source apportionment of  $PM_{2.5}$  in Lanzhou city [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(5): 1619-1628.
- [ 10 ] 张棕巍, 胡恭任, 于瑞莲, 等. 厦门市大气  $PM_{2.5}$  中水溶性离子污染特征及来源解析 [J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(7): 1947-1954.  
Zhang Z W, Hu G R, Yu R L, *et al.* Characteristics and sources apportionment of water-soluble ions in  $PM_{2.5}$  of Xiamen City, China [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(7): 1947-1954.
- [ 11 ] 杨懂艳, 刘保献, 张大伟, 等. 2012~2013 年间北京市  $PM_{2.5}$  中水溶性离子时空分布规律及相关性分析 [J]. *环境科学*, 2015, **36**(3): 768-773.  
Yang D Y, Liu B X, Zhang D W, *et al.* Correlation, seasonal and temporal variation of water-soluble ions of  $PM_{2.5}$  in Beijing during 2012-2013 [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(3): 768-773.
- [ 12 ] Liu P F, Zhang C L, Mu Y J, *et al.* The possible contribution of the periodic emissions from farmers' activities in the North China Plain to atmospheric water-soluble ions in Beijing [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(15): 10097-10109.
- [ 13 ] Zhou J B, Xing Z Y, Deng J J, *et al.* Characterizing and sourcing ambient  $PM_{2.5}$  over key emission regions in China I: water-soluble ions and carbonaceous fractions [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **135**: 20-30.
- [ 14 ] Yang Y J, Zhou R, Wu J J, *et al.* Seasonal variations and size distributions of water-soluble ions in atmospheric aerosols in Beijing, 2012 [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2015, **34**: 197-205.
- [ 15 ] 王念飞, 陈阳, 郝庆菊, 等. 苏州市  $PM_{2.5}$  中水溶性离子的季节变化及来源分析 [J]. *环境科学*, 2016, **37**(12): 4482-4489.  
Wang N F, Chen Y, Hao Q J, *et al.* Seasonal variation and source analysis of the water-soluble inorganic ions in fine particulate matter in Suzhou [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(12): 4482-4489.
- [ 16 ] 谢瑞加. 2014 年泉州市区  $PM_{2.5}$  浓度的时空变化特征分析研究 [J]. *环境科学与管理*, 2016, **41**(4): 127-129.  
Xie R J. Analysis on temporal-spatial variations of  $PM_{2.5}$  in Quanzhou city in 2014 [J]. *Environmental Science and Management*, 2016, **41**(4): 127-129.
- [ 17 ] Yin L Q, Niu Z C, Chen X Q, *et al.* Characteristics of water-soluble inorganic ions in  $PM_{2.5}$  and  $PM_{2.5-10}$  in the coastal urban agglomeration along the western Taiwan Strait Region, China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, **21**(7): 5141-5156.
- [ 18 ] 于艳科, 尹丽倩, 牛振川, 等. 中国海峡西岸城市群冬季  $PM_{2.5}$  和  $PM_{10}$  中水溶性离子的污染特征 [J]. *中国环境科学*, 2012, **32**(9): 1546-1553.  
Yu Y K, Yin L Q, Niu Z C, *et al.* Pollution characteristics of water-soluble ions in  $PM_{2.5}$  and  $PM_{10}$  in Haixi Urban Agglomeration in wintertime [J]. *China Environmental Science*, 2012, **32**(9): 1546-1553.
- [ 19 ] HJ 618-2011, 环境空气  $PM_{10}$  和  $PM_{2.5}$  的测定 重量法 [S].  
HJ 618-2011, Determination of atmospheric particles  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  in ambient air by gravimetric method [S].
- [ 20 ] 朱坦, 冯银厂. 大气颗粒物来源解析 [M]. 北京: 科学出版社, 2012. 8-9.
- [ 21 ] Meng C C, Wang L T, Zhang F F, *et al.* Characteristics of concentrations and water-soluble inorganic ions in  $PM_{2.5}$  in Handan city, Hebei province, China [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **171**: 133-146.
- [ 22 ] 姚青, 韩素芹, 蔡子颖. 天津采暖期大气  $PM_{2.5}$  中重金属元素污染及其生态风险评价 [J]. *中国环境科学*, 2013, **33**(9): 1596-1600.  
YAO Q, Han S Q, Cai Z Y. The pollution characteristics and potential ecological risk of heavy metals in  $PM_{2.5}$  during heating season in Tianjin [J]. *China Environmental Science*, 2013, **33**(9): 1596-1600.
- [ 23 ] 陈衍婷, 陈进生, 胡恭任, 等. 福建省三大城市冬季  $PM_{2.5}$  中有机碳和元素碳的污染特征 [J]. *环境科学*, 2013, **34**(5): 1988-1994.  
Chen Y T, Chen J S, Hu G R, *et al.* Characterization of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in  $PM_{2.5}$  during the winter in three major cities in Fujian province, China [J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(5): 1988-1994.
- [ 24 ] 邱天雪, 陈进生, 尹丽倩, 等. 闽南重点城市春季  $PM_{2.5}$  中水溶性无机离子特征研究 [J]. *生态环境学报*, 2013, **22**(3): 512-516.  
Qiu T X, Chen J S, Yin L Q, *et al.* Study on the characteristics of water-soluble inorganic ions in  $PM_{2.5}$  in spring in the key cities of southern Fujian province [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2013, **22**(3): 512-516.
- [ 25 ] 赵克蕾, 刘新春, 陆辉, 等. 乌鲁木齐冬季大气细颗粒物水溶性离子特征及来源 [J]. *中国沙漠*, 2015, **35**(3): 707-714.  
Zhao K L, Liu X C, Lu H, *et al.* Characteristics and sources of water-soluble ions of  $PM_{2.5}$  in winter in Urumqi [J]. *Journal of Desert Research*, 2015, **35**(3): 707-714.
- [ 26 ] Tao J, Zhang L M, Cao J J, *et al.* Source apportionment of  $PM_{2.5}$  at urban and suburban areas of the Pearl River Delta region, South China-With emphasis on ship emissions [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **574**: 1559-1570.

- [27] Huang T, Chen J, Zhao W T, *et al.* Seasonal variations and correlation analysis of water-soluble inorganic ions in PM<sub>2.5</sub> in Wuhan, 2013[J]. *Atmosphere*, 2016, **7**(4): 49.
- [28] Wang H B, Shooter D. Water soluble ions of atmospheric aerosols in three New Zealand cities: seasonal changes and sources[J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(34): 6031-6040.
- [29] 武博然, 王冬扬, 柴晓利. 生活垃圾焚烧飞灰生物脱氯机制研究[J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(8): 2470-2476.  
Wu B R, Wang D Y, Chai X L. Dechlorination mechanism of municipal solid wastes incineration fly ash by biological process [J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(8): 2470-2476.
- [30] 王军, 蒋建国, 隋继超, 等. 垃圾焚烧飞灰基本性质的研究[J]. *环境科学*, 2006, **27**(11): 2283-2287.  
Wang J, Jiang J G, Sui J C, *et al.* Fundamental properties of fly ash from municipal solid waste incineration [J]. *Environmental Science*, 2006, **27**(11): 2283-2287.
- [31] Sun Y L, Zhuang G S, Tang A H, *et al.* Chemical Characteristics of PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> in haze-fog episodes in Beijing [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(10): 3148-3155.
- [32] Li W J, Shao L Y. Observation of nitrate coatings on atmospheric mineral dust particles[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(6): 1863-1871.
- [33] Qiao T, Zhao M F, Xiu G L, *et al.* Seasonal variations of water soluble composition (WSOC, Hulis and WS II s) in PM<sub>1</sub> and its implications on haze pollution in urban Shanghai, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **123**: 306-314.
- [34] Wang H L, Zhu B, Shen L J, *et al.* Water-soluble ions in atmospheric aerosols measured in five sites in the Yangtze River Delta, China: size-fractionated, seasonal variations and sources [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **123**: 370-379.
- [35] 刘新春, 陈红娜, 赵克蕾, 等. 乌鲁木齐大气细颗粒物 PM<sub>2.5</sub> 水溶性离子浓度特征及其来源分析[J]. *生态环境学报*, 2015, **24**(12): 2002-2008.  
Liu X C, Chen H N, Zhao K L, *et al.* Analysis the effect and source on water-soluble ions of fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) in Urumqi [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2015, **24**(12): 2002-2008.
- [36] Kaneyasu N, Yoshikado H, Mizuno T, *et al.* Chemical forms and sources of extremely high nitrate and chloride in winter aerosol pollution in the Kanto Plain of Japan [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(11): 1745-1756.



## CONTENTS

Correlation Analysis of the Urban Heat Island Effect and Its Impact Factors in China .....	CAO Chang, LI Xu-hui, ZHANG Mi, <i>et al.</i> (3987)
Application of Satellite Remote Sensing in NO <sub>x</sub> Emission Control .....	WU Wei-ling, XUE Wen-bo, WANG Yan-li, <i>et al.</i> (3998)
Control Models and Effect Evaluation of Air Pollution in Jing-Jin-Ji Urban Agglomeration .....	WANG Zhen-bo, LIANG Long-wu, LIN Xiong-bin, <i>et al.</i> (4005)
Pollution Characteristics of Aerosol Number Concentration in Winter and Spring in a Northern Suburb of Nanjing .....	WU Dan, ZHANG Fan, LIU Gang, <i>et al.</i> (4015)
Source Apportionment and Size Distribution of Aerosols at Lin'an Atmosphere Regional Background Station During Winter .....	SHI Shuang-shuang, WANG Hong-lei, ZHU Bin, <i>et al.</i> (4024)
Seasonal Variations in Particle Size Distribution and Water-soluble Ion Composition of Atmospheric Particles in Chengdu .....	TAO Yue-le, LI Qin-kai, ZHANG Jun, <i>et al.</i> (4034)
Seasonal Variation and Source Apportionment of Water-Soluble Ions in PM <sub>2.5</sub> in Quanzhou City .....	ZHANG Yun-feng, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (4044)
Chemical Characteristics and Sources of Heavy Metals in Fine Particles in Beijing in 2011-2012 .....	ZHOU Xue-ming, ZHENG Nai-jia, LI Ying-hong, <i>et al.</i> (4054)
Pollution Assessment and Source Analysis of Metals in PM <sub>2.5</sub> in Haicang District, Xiamen City, China .....	ZHAO Li-si, YU Rui-lian, XU Ling-ling, <i>et al.</i> (4061)
Characteristics and Health Risk Assessment of Metallic Elements in PM <sub>2.5</sub> Fraction of Road Dust .....	ZHANG Jing, ZHANG Yan-jie, FANG Xiao-zhen, <i>et al.</i> (4071)
Seasonal Variations in PM <sub>10</sub> and Associated Chemical Species in Jiuxian Mountain in Fujian Province .....	WEI Ya, LIN Chang-cheng, HU Qiong-hua, <i>et al.</i> (4077)
Characteristics of C2-C6 Hydrocarbons During the Winter Air Pollution Period in Beijing Urban Area .....	LI Yue, WEI Wei, YANG Gan, <i>et al.</i> (4084)
Analysis of Atmospheric Particulate Matter Pollution Characteristics by LIDAR in Beijing During Spring Festival, 2016 .....	SHI Lin-lin, LI Ling-jun, LI Qian, <i>et al.</i> (4092)
Influence Factors and Sensitivity of Ozone Formation in Langfang in the Summer .....	LI Lei, ZHAO Yu-mei, WANG Xu-guang, <i>et al.</i> (4100)
Impact of Human Activities on Water-Rock Interactions in Surface Water of Lijiang River .....	ZHAO Hai-juan, XIAO Qiong, WU Xia, <i>et al.</i> (4108)
Distinguishing the Properties and Sources of the Dissolved Organic Matter in Karst Reservoir Water During Winter Using Three-Dimensional Fluorescence Spectrum Technology: A Case Study in Wulixia Reservoir of Guangxi Province .....	LU Xiao-xuan, PENG Wen-jie, LI Qiang, <i>et al.</i> (4120)
Analysis of Temporal and Spatial Variations in Trace Element Migration in Karst Critical Zone: An Example of Jiguan Cave, Henan .....	LIANG Sha, YANG Yan, ZHANG Na, <i>et al.</i> (4130)
Eutrophication and Characteristics of Cyanobacteria Bloom in the Summer in Guishi Reservoir .....	GOU Ting, MA Qian-li, WANG Zhen-xing, <i>et al.</i> (4141)
Spatial and Temporal Distribution of Chlorophyll a and Its Relationship to Algae and Environmental Factors in Aha Reservoir .....	LUO Yi-fu, LI Lei, LI Qiu-hua, <i>et al.</i> (4151)
Spatio-temporal Variations in Phytoplankton Community in Shahe Reservoir, Tianmuhu, China .....	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, YANG Wen-bin, <i>et al.</i> (4160)
Spatio-temporal Variations, Contamination and Potential Ecological Risk of Heavy Metals in the Sediments of Chenghai Lake .....	YU Zhen-zhen, LIU En-feng, ZHANG En-lou, <i>et al.</i> (4169)
Characteristics of Phosphorus Output Through Runoff on a Red Soil Slope Under Natural Rainfall Conditions .....	ZUO Ji-chao, ZHENG Hai-jin, XI Tong-hang, <i>et al.</i> (4178)
Occurrence, Distribution and Health Risk of the Phthalate Esters in Riparian Soil in the Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir .....	YANG Ting, HE Ming-jing, YANG Zhi-hao, <i>et al.</i> (4187)
Seasonal Distribution, Composition, and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Organochlorine Pesticides in the Main Stream of the Luanhe River .....	WANG Yi-zhen, ZHANG Shi-lu, KONG Fan-qing, <i>et al.</i> (4194)
Occurrence and Human Exposure Risk Assessment of Organophosphate Esters in Drinking Water in the Weifang Binhai Economic-Technological Development Area .....	DONG Zheng, MA Yu-long, LI Jun-qi, <i>et al.</i> (4212)
Contamination Characteristics and Human Exposure to Organophosphate Flame Retardants in Road Dust from Suzhou City .....	LI Jing, WANG Jun-xia, XU Wan-ting, <i>et al.</i> (4220)
Cancer Risk of Human Intake of PAH-Contaminated Particles Based on Hand-to-Mouth Activities .....	TONG Rui-peng, YANG Xiao-yi, ZHANG Lei, <i>et al.</i> (4228)
Spatio-temporal Evolution of Groundwater Vulnerability Based on Spatial Autocorrelation .....	LIU Yu, LAN Shuang-shuang, ZHANG Yong-xiang, <i>et al.</i> (4236)
Preparation of Ag-AgI/CN/MA Composites and Their Visible-light Photocatalytic Performance .....	ZHANG Sai, ZHANG Li-li, HU Chun (4245)
Effect of <i>Eichhornia crassipes</i> on Ammonification and Denitrification Microorganisms in Eutrophic Freshwaters .....	LI Jie, JIANG Li-juan, WANG Xiao-lin, <i>et al.</i> (4253)
Utilization of Copper ( II ) Wastewater for Enhancing the Treatment of Chromium ( VI ) Wastewater in Microbial Fuel Cells .....	XIONG Xiao-min, WU Xia-yuan, JIA Hong-hua, <i>et al.</i> (4262)
Efficiency and Microecology of a Soil Infiltration System with High Hydraulic Loading for the Treatment of Swine Wastewater .....	SU Cheng-yuan, LIU Fan-fan, ZHONG Yu, <i>et al.</i> (4271)
Effects of Bacteria on the Growth of and Lipid Accumulation in <i>Chlorella pyrenoidosa</i> Cultivated in Municipal Wastewater .....	TU Ren-jie, JIN Wen-biao, HAN Song-fang, <i>et al.</i> (4279)
Enhanced Antibiotic Resistant Bacteria Removal from Wastewater Treatment Plant by Different Disinfection Technologies .....	LIU Ya-lan, MA Cen-xin, DING He-zhou, <i>et al.</i> (4286)
Coking Wastewater Treatment Efficiency and Comparison of Acute Toxicity Characteristics of the AnMBR-A-MBR and A <sup>2</sup> -MBR Processes .....	ZHU Jia-di, LI Fei-fei, CHEN Li-jun (4293)
Stability of the CANON Process Based on Real-Time Control Technologies .....	SUN Yan-fang, HAN Xiao-yu, ZHANG Shun-jun, <i>et al.</i> (4302)
Improving Nitrogen and Phosphorus Removal from Reclaimed Water Using a Novel Sulfur/Iron Composite Filler .....	ZHOU Yan-qing, HAO Rui-xia, LIU Si-yuan, <i>et al.</i> (4309)
Start-up and Capacity Enhancement of a Partial Nitrification Pilot Reactor in Continuous Flow .....	ZHU Qiang, LIU Kai, DONG Shi-yu, <i>et al.</i> (4316)
Quick Start-up Performance of Combined ANAMMOX Reactor Based on Different Inoculated Sludge Types .....	LÜ Gang, LI Tian, XU Le-zhong, <i>et al.</i> (4324)
Effect of Two-Stage Aeration on Nitrogen Removal Performance of Aerobic Granular Sludge .....	WANG Wen-xiao, BIAN Wei, WANG Meng, <i>et al.</i> (4332)
Construction of a High Efficiency Anaerobic Digestion System for Vinegar Residue .....	ZHOU Yun-long, XU Zhi-yang, ZHAO Ming-xing, <i>et al.</i> (4340)
Comparison of Ecological Risk Assessment Based on the Total Amount and Speciation Distribution of Heavy Metals in Soil: A Case Study for Longyan City, Fujian Province .....	WANG Rui, CHEN Ming, CHEN Nan, <i>et al.</i> (4348)
Heavy Metal Contamination of Soils and Crops near a Zinc Smelter .....	CHEN Feng, DONG Ze-qin, WANG Cheng-cheng, <i>et al.</i> (4360)
Characteristics and Influencing Factors of CH <sub>4</sub> Emissions from the Drawdown Area of the Three Gorges Reservoir .....	CHAI Xue-si, HAO Qing-ju, HUANG Zhe, <i>et al.</i> (4370)
Effects of Plastic Film Mulching on Nitrous Oxide Emissions from a Vegetable Field .....	FENG Di, HAO Qing-ju, ZHANG Kai-li, <i>et al.</i> (4380)
Effects of Bamboo Biochar on Greenhouse Gas Emissions During the Municipal Sludge Composting Process .....	XIANG Qiu-jie, YANG Yu-han, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (4390)
Removal of Cd from Soil by <i>Aspergillus fumigatus</i> in a Semi-solid Culture .....	CHEN Yao-ning, WANG Yuan-nan, LI Yuan-ping, <i>et al.</i> (4398)
Removal of Chlortetracycline and Morphological Changes in Heavy Metals in Swine Manure Using the Composting Process .....	WEN Qin-xue, CAO Yong-sen, CHEN Zhi-qiang (4405)
Remediation of Petroleum-Contaminated Soil Using a Bioaugmented Compost Technique .....	WU Man-li, CHEN Kai-li, YE Xi-qiong, <i>et al.</i> (4412)
Effects of Microbial Diversity on Soil Carbon Mineralization .....	AN Li-yun, LI Jun-jian, YAN Jun-xia, <i>et al.</i> (4420)
Ozone Deposition and Risk Assessment for a Winter Wheat Field; Partitioning Between Stomatal and Non-stomatal Pathways .....	XU Jing-xin, ZHENG You-fei, ZHAO Hui, <i>et al.</i> (4427)
Progress in the Studies of Precipitation Chemistry in Acid Rain Areas of Southwest China .....	ZHOU Xiao-de, XU Zhi-fang, LIU Wen-jing, <i>et al.</i> (4438)