

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第4期

Vol.36 No.4

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

中美空气质量指数(AQI)对比研究及启示	高庆先,刘俊蓉,李文涛,高文康(1141)
2013年1月北京市PM _{2.5} 区域来源解析	李璇,聂滕,齐珺,周震,孙雪松(1148)
2013年1月北京市一次空气重污染成因分析	程念亮,李云婷,张大伟,聂滕,邱启鸿,徐文帅(1154)
上海大气总悬浮颗粒物中金属的可溶性特征	常燕,冯冲,瞿建国,张经(1164)
厦门春季PM ₁₀ 中PAHs成分谱特征及其与气象要素相关性分析	张健,樊曙先,孙玉,张悦,魏锦成(1173)
硫氧同位素示踪南京北郊大气PM _{2.5} 中硫酸盐来源	魏英,郭照冰,葛鑫,祝胜男,姜文娟,石磊,陈姝(1182)
结合激光雷达分析2014年春季南京地区一次大气污染过程	包青,贺军亮,查勇,程峰,李倩楠(1187)
春季华东高山背景区域PM _{2.5} 和PM _{2.5-10} 中水溶性无机离子特征	苏彬彬,张智胜,陶俊,许梹洋,纪贤鑫,刘心东,张若宇(1195)
落叶燃烧排放的颗粒物及有机碳、元素碳的研究	杨伟宗,刘刚,李久海,徐慧,吴丹(1202)
四川省秸秆露天焚烧污染物排放清单及时空分布特征	何敏,王幸锐,韩丽,冯小琼,毛雪(1208)
深圳市船舶排放清单与时空特征研究	杨静,尹佩玲,叶斯琪,王水胜,郑君瑜,区家敏(1217)
超细颗粒通过建筑狭缝的传输特性	孙在,陈秋方,蔡志良,杨文俊,汪晗(1227)
空调病房真菌气溶胶浓度及粒径分布特征	张华玲,冯鹤华,方子梁,王本栋,李丹(1234)
基于氢氧稳定同位素的黄土高原云下二次蒸发效应	靳晓刚,张明军,王圣杰,朱小凡,董蕾,任正果,陈粉丽(1241)
黄河小浪底水库水沙调控对DOC输送的影响	张永领,王明仕,董玉龙(1249)
调水调沙工程长期实施对黄河口近岸沉积物粒度分布与黏土矿物组成特征的影响	王苗苗,孙志高,卢晓宁,王伟,王传远(1256)
春季生物作用对山地岩溶池水地球化学特征的影响	于正良,杨平恒,赵瑞一,李林立,张琳,童小容,罗刚(1263)
降雨期间岩溶城镇区地下水重金属变化特征及来源解析	任坤,杨平恒,江泽利,王尊波,师阳,王凤康,李晓春(1270)
北江和珠江广州河段水体的三卤甲烷风险评价	钟惠舟,韦朝海(1277)
丰水期洪湖水水质空间变异特征及驱动力分析	李昆,王玲,李兆华,王祥荣,陈红兵,吴忠,朱鹏(1285)
三峡库区典型干-支流相互作用过程中的营养盐交换:以梅溪河为例	操满,傅家楠,周子然,邓兵,王雨春,汪福顺(1293)
营养盐输入对太湖水体中磷形态转化及藻类生长的影响	王睿喆,王沛芳,任凌霄,王超,王颖雪(1301)
一小型藻华池塘浮游植物群落动态及其影响因子研究	杨文,朱津永,张克鑫,万莉,陆开宏(1309)
昌黎生态监控区夏季浮游植物群落年际变化特征分析	梁晓林,杨阳,王玉良,张月明,赵志楠,韩晓庆,张鉴达,高伟明(1317)
河道曝气提升河流水质的WASP模型研究	朱文博,王洪秀,柳翠,张建,梁爽(1326)
γ辐射降解水中的盐酸环丙沙星的研究	祝胜男,郭照冰,赵永富,葛鑫,魏英,陈姝,王静(1332)
电化学氢化物发生法处理含锑废水及对锑的回收	陈京晶,张国平,李海霞,付志平,欧阳小雪,吴琼(1338)
Fe-MCM-41催化臭氧氧化间甲酚废水	孙文静,王亚旻,卫皇墨,王森,李旭宁,李敬美,孙承林,安路阳(1345)
生物阳极及其反转为生物阴极降解氯霉素	孔德勇,梁斌,云慧,王爱杰,任南琪(1352)
308 nm光作用下α-Fe ₂ O ₃ 表面HNO ₃ 的光解	陆军,孙云东,谢晶晶,赵军,邹家骥,朱承强(1359)
L-组氨酸-赤藓红复合膜修饰电极同时检测对苯二酚、邻苯二酚	何家洪,徐强,丁武泉,李强(1365)
酞基功能型高分子生物载体(PET-AQS)制备及催化生物反硝化特性研究	许晴,侯正浩,田秀蕾,牛春梅,郭延凯,廉静,郭建博(1374)
枯草芽孢杆菌对土臭素和2-甲基异冰片的降解动力学特性	马念念,罗国芝,谭洪新,姚妙兰,王晓用(1379)
嗜碱降解菌筛选及其对焦化废水强化处理	李静,李文英(1385)
Fe ³⁺ 对同步硝化反硝化过程氮元素迁移转化及N ₂ O释放的影响	李浩,闫玉洁,谢慧君,贾文林,胡振,张建(1392)
内循环半短程亚硝化工艺运行条件与微生物群落研究	赵志瑞,焦海华,崔丙健,黄迪,曹世超,王云,刘上千,马斌,白志辉(1399)
利用处理含4-氯苯酚模拟废水的剩余污泥培养普通小球藻	王璐,陈秀荣,闫龙,何怡萱,施震东(1406)
进水渗滤液总氮和BOD ₅ /TN对填埋场反应器反硝化和厌氧氨氧化协同脱氮的影响	杨盈盈,陈奕,李明杰,谢冰(1412)
重庆金佛山土壤中PAHs含量的海拔梯度分布及来源解析	师阳,孙玉川,梁作兵,任坤,袁道先(1417)
湖南攸县典型煤矿和工矿区水稻田土壤镉污染特征及污染途径分析	张敏,王美娥,陈卫平,牛俊杰(1425)
沟渠化对三江平原湿地铁元素沉积过程的影响	苏文辉,于晓菲,王国平,栾金花,邹元春(1431)
施用磷酸盐和沸石对土壤镉形态转化的影响	王秀丽,梁成华,马子惠,韩月(1437)
不同条件下皂苷对污染壤土中Cu、Pb的淋洗修复	邓红侠,杨亚莉,李珍,许岩,李荣华,孟昭福,杨亚提(1445)
陕北某化工企业周围污灌区土壤-作物系统重金属积累特征及评价	齐雁冰,楚万林,蒲洁,刘梦云,常庆瑞(1453)
有机无机缓释复合肥对不同土壤微生物群落结构的影响	王菲,袁婷,谷守宽,王正银(1461)
玉米对铅胁迫的响应及体内铅化学形态研究	程海宽,张彪,景鑫鑫,杨素勤,赵鹏,孙晓雪,周志云(1468)
硼锑交互作用对水稻吸收积累锑和硼的影响	向猛,黄益宗,蔡立群,保琼莉,黄永春,王小玲,乔敏,胡莹,金姝兰,李季,王斐(1474)
丛枝菌根真菌对不同含盐量湿地土壤中芦苇生长的影响	郭江源,郭伟,毕娜,付瑞英,赵文静,赵仁鑫,王立新(1481)
滨海区芦苇和香蒲耐盐碱性及除氮磷效果对比研究	陈友媛,孙萍,陈广琳,王宁宁(1489)
不同温度下的土壤微生物呼吸及其与水溶性有机碳和转化酶的关系	吴静,陈书涛,胡正华,张旭(1497)
工业VOCs经济手段和工程技术减排对比性分析	王宇飞,刘昌新,程杰,郝郑平,王铮(1507)
《环境科学》征订启事(1216) 《环境科学》征稿简则(1248) 信息(1163,1194,1248,1424)	

春季华东高山背景区域 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{2.5 \sim 10}$ 中水溶性无机离子特征

苏彬彬¹, 张智胜², 陶俊², 许据洋¹, 纪贤鑫¹, 刘心东¹, 张若宇¹

(1. 福建省国家大气环境背景值武夷山监测站, 武夷山 354302; 2. 环境保护部华南环境科学研究所, 广州 510655)

摘要: 为了探讨华东高山背景区域春季颗粒物中水溶性组分的特征, 2014年3月至5月在国家大气背景监测福建武夷山站采集 $PM_{2.5}$ 及 $PM_{2.5 \sim 10}$ 样品, 获取了水溶性无机离子组分, 并同步收集气象因子及 SO_2 、 NO_2 、 O_3 、 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 等污染物质量浓度数据。结果表明, 春季武夷山背景点 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{2.5 \sim 10}$ 中水溶性无机离子总浓度分别为 $(8.3 \pm 2.8) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(1.3 \pm 0.9) \mu g \cdot m^{-3}$, 分别占 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{2.5 \sim 10}$ 质量浓度的 $(43.7 \pm 7.5)\%$ 和 $(24.4 \pm 6.4)\%$ 。 SO_4^{2-} 占 $PM_{2.5}$ 质量浓度百分比最高, 为 $(32.4 \pm 6.3)\%$; NO_3^- 占 $PM_{2.5 \sim 10}$ 质量浓度百分比最高, 为 $(8.9 \pm 3.7)\%$ 。春季武夷山背景点硫酸盐主要存在于细颗粒物中, 且以 $(NH_4)_2SO_4$ 和 K_2SO_4 的形式存在, 粗颗粒中的硝酸盐则主要以 $Mg(NO_3)_2$ 的形式存在。春季武夷山背景点水溶性无机离子主要来源于沙尘、海盐及高污染区域的远距离输送。

关键词: 高山背景站; 细颗粒物; 粗颗粒物; 水溶性无机离子; 气体污染物; 区域输送

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)04-1195-07 DOI: 10.13227/j.hjks.2015.04.008

Characteristics of Water-soluble Inorganic Ions in $PM_{2.5}$ and $PM_{2.5 \sim 10}$ in Mountain Background Region of East China in Spring

SU Bin-bin¹, ZHANG Zhi-sheng², TAO Jun², XU Ju-yang¹, JI Xian-xin¹, LIU Xin-dong¹, ZHANG Ruo-yu¹

(1. Atmospheric Background Monitoring Station in Wuyishan of Fujian Province, Wuyishan 354302, China; 2. South China Institute of Environmental Sciences, Ministry of Environmental Protection, Guangzhou 510655, China)

Abstract: $PM_{2.5}$ and $PM_{2.5 \sim 10}$ samples were collected during March to May of 2014 at the National atmospheric background monitoring station (Wuyishan station) in Fujian Province. Water-soluble inorganic ions in $PM_{2.5}$ and $PM_{2.5 \sim 10}$ were determined. Meteorological parameters and air pollutants including SO_2 , NO_2 , O_3 , PM_{10} and $PM_{2.5}$ were also recorded. The results showed the total water-soluble inorganic ions concentrations were $(8.3 \pm 2.8) \mu g \cdot m^{-3}$ and $(1.3 \pm 0.9) \mu g \cdot m^{-3}$, which accounted for $(43.7 \pm 7.5)\%$ and $(24.4 \pm 6.4)\%$ of the $PM_{2.5}$ and $PM_{2.5 \sim 10}$ mass, respectively. Sulfate and nitrate were the dominant ions in $PM_{2.5}$ and $PM_{2.5 \sim 10}$, respectively, which accounted for $(32.4 \pm 6.3)\%$ and $(8.9 \pm 3.7)\%$ of them, respectively. Sulfate mainly existed in fine particle in the forms of $(NH_4)_2SO_4$ and K_2SO_4 , while nitrate mainly existed in coarse particle in the form of $Mg(NO_3)_2$. The water-soluble inorganic ions at the Wuyishan background monitoring station in spring mainly came from long-distance transportation of dust, sea salt and pollutant of heavy polluted regions.

Key words: high mountain background site; fine particle; coarse particle; water-soluble inorganic ions; gaseous pollutant; regional transportation

大气气溶胶是悬浮在大气中的固体和液体微粒共同组成的多相体系, 对人体健康、环境及气候等都存在着重要影响^[1~8], 因此受到广泛关注。水溶性无机离子是大气气溶胶中非常重要的化学组成部分, 有研究表明^[9,10], 水溶性组分约占城市大气 $PM_{2.5}$ 质量的30%以上。其主要成分如硫酸盐、硝酸盐和铵盐等具有较强的亲水性, 可通过吸湿增长增强颗粒物对大气能见度的影响^[11,12], 对于霾的形成及气候变化等均有重要影响, 因此开展颗粒物中水溶性组分的观测研究具有十分重要的意义。

国内外近年来对城市颗粒物中水溶性无机离子进行了大量的研究, 包括水溶性无机离子污染特征及其来源分析^[13~15], 气体污染物与水溶性无机离子

的转化机制^[16]、不同粒径颗粒物中的水溶性无机离子浓度分布^[17,18]和水溶性无机离子对气溶胶光学特性影响等^[19]。对不同区域背景地区颗粒物中水溶性无机离子也进行了相关的研究。如赵亚南等对我国东北背景地区长白山^[20]和青藏高原贡嘎山^[21]大气气溶胶中水溶性无机离子的组成、变化特征及其来源进行了探讨; Ma等^[22]研究了全球内陆大气本底站瓦里关山气溶胶中水溶性离子粒径分

收稿日期: 2014-10-09; 修订日期: 2014-11-30

基金项目: 2008年中央财政主要污染物减排专项资金项目; 环境保护公益性行业科研专项(200709054)

作者简介: 苏彬彬(1980~), 女, 工程师, 主要研究方向为大气背景监测, E-mail: binwys@163.com

布及 NO_3^- 的气粒转化过程;刘鲁宁等^[23]研究了鼎湖山地区大气颗粒物中水溶性无机盐粒径分布特征;高晓梅等^[24]研究了泰山春、夏两季大气颗粒物及其水溶性无机离子的粒径分布特征;李杏茹等^[25]研究了兴隆背景站气溶胶中水溶性无机离子的组成和浓度变化特征;Sezuki 等^[26]研究了日本富士山顶大气气溶胶中水溶性离子浓度及季节变化趋势. 目前还未见对我国华东背景区域颗粒物中水溶性无机离子的研究报道.

国家大气背景监测福建武夷山站是我国 15 个大气背景监测站之一,代表我国华东森林及高山区域的大气背景状况. 为了探讨我国华东背景地区春季细颗粒物中水溶性无机离子的组成及特征,本研究收集了 2014 年 3 月至 5 月在该站点采集的 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{PM}_{2.5-10}$ 样品,分析其水溶性组分,结合该站点同步观测的气象因子、污染物浓度数据,分析 SO_2 与硫酸盐、 NO_2 与硝酸盐之间的转化率,并利用后向气流轨迹聚类对颗粒物中水溶性无机离子的来源进行初步分析,以期制定华东地区颗粒物区域性控制政策提供参考依据.

1 材料与方法

1.1 采样地点

国家大气背景监测福建武夷山站由中国环境监测总站建立,监测点位于武夷山自然保护区摩天岭顶峰,东经 $117^\circ 43'$,北纬 $27^\circ 35'$,海拔高度 1 139 m. 站点周边视野开阔,且周围 50 km 范围内无明显大气污染源,基本能客观反映华东森林及高山背景区域的空气质量状况. 同时因其海拔较高且气流活跃,可用于观测远距离输送影响.

1.2 样品采集

本研究使用装备两级切割器的大流量滤膜采样器 (TE-6070V, Tisch Inc., 美国) 依次采集 $\text{PM}_{2.5-10}$ 和 $\text{PM}_{2.5}$ 样品,采样流量为 $1.063 \text{ m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$. 采样滤膜分别采用 $0.56 \text{ in} \times 0.58 \text{ in}$ 的格栅镂空石英膜 (Tisch Inc., 美国) 和 $8 \text{ in} \times 10 \text{ in}$ 的石英膜 (Whatman, 英国). 采样仪器安置于武夷山背景点监测楼楼顶,距地约为 10 m. 采样时间为 2014 年 3 月 20 日至 6 月 4 日,每周采样一次,每次累积采样 167 h,共采集 24 个样品 (包括空白样). 采样后将样品放入密封袋中,置于冰箱 (-18°C) 避光保存.

1.3 水溶性无机离子化学分析

截取 1.33 cm^2 面积样品于样品瓶中,加入 4 mL 去离子水,超声萃取 60 min. 然后,将样品通过装

特氟龙过滤膜的注射器以去除滤膜残渣和难溶颗粒获取待分析的萃取液. 使用环境保护部华南环境科学研究所美国戴安 ICS-1600 和 ICS-2100 型离子色谱仪分别分析萃取液中阳离子 (Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 和 Ca^{2+}) 与阴离子 (Cl^- 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-}). 阳离子使用 Ionpac CS12 分析柱和 Ionpac CG12 保护柱进行分离并在 CSRS 抑制器中检测;淋洗液使用 $20 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的甲基磺酸 ($\text{CH}_3\text{O}_3\text{S}$),流速设置为 $1 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$. 阴离子则使用 Ionpac AS19 层析柱和 Ionpac AG19 保护柱进行分离并在 ASRS 抑制器中检测;淋洗液使用 $20 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的氢氧化钾 (KOH),流速设置为 $1.0 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$.

1.4 同步在线监测数据采集

同步观测的 SO_2 采用 43iTLE 紫外荧光法气体分析仪 (Thermo Fisher Scientific, 美国), NO_2 采用 42iTL 化学发光法气体分析仪 (Thermo Fisher Scientific, 美国), O_3 采用 49i 紫外光度法气体分析仪 (Thermo Fisher Scientific, 美国), PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 观测采用 TEOM1405A 环境颗粒物监测仪 (Thermo Fisher Scientific, 美国),进行 24 h 连续在线监测,数据采集频率为 5 min.

1.5 后向气流轨迹计算

本研究用于轨迹计算的模式是由美国海洋与大气研究中心 NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration) 环境空气资源实验室 ARL (Air Resources Laboratory) 开发的混合单粒子拉格朗日积分传输、扩散模式 HYSPLIT4.8 (2008 年 2 月更新);模式计算所采用的气象资料是美国国家环境预报中心 NCEP (National Centers for Environmental Prediction) 的 FNL 全球再分析资料;垂直运动的计算方法采用模式所默认的气象模式垂直运动场,采用地形追随坐标系;聚类分析采用的是 HYSPLIT 4.8 模式中的聚类工具.

2 结果与讨论

2.1 浓度水平

将滤膜称重获得的 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} ($\text{PM}_{2.5} + \text{PM}_{2.5-10}$) 质量浓度和在线 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 浓度 (样品采集期间自动监测仪器同步监测的小时平均值) 进行对比 (见图 1). 由图 1 可见,滤膜称重 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 浓度和在线 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 浓度具有一致的变化趋势,手工 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 浓度和在线 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 浓度的相关性很好 (R^2 分别为 0.96 和 0.97),说明观测结果准确、可靠. 手工 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度略高于在线 $\text{PM}_{2.5}$

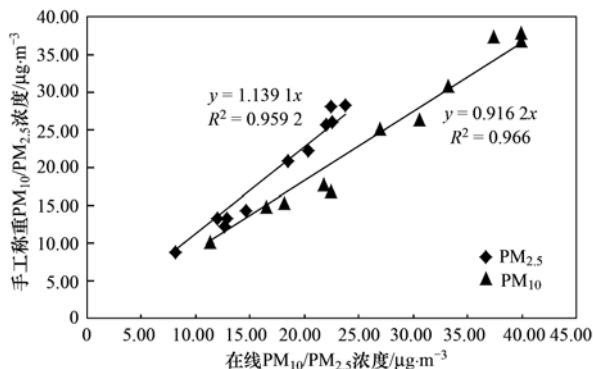


图1 滤膜称重 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 浓度与在线 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 浓度比较

Fig. 1 Comparison of filter-weighted PM_{2.5} and PM₁₀ concentrations and real-time PM_{2.5} and PM₁₀ concentrations

浓度,手工 PM₁₀ 浓度略低于在线 PM₁₀ 浓度.

通常情况下,背景区域大气环境质量应该代表未受人类活动直接影响的自然情况^[27]. 但由于大气的流动性,大气环境通常受研究区域外排放源长距离输送的影响^[28]. 考虑到武夷山背景点周围 50km 范围内无明显大气污染源,因此大气颗粒物主要来源于区域外的远距离输送^[29]. 由表 1 可知,武夷山背景点春季 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 质量浓度分别为 (19.4 ± 6.8) μg·m⁻³ 和 (5.1 ± 3.3) μg·m⁻³, 变化范围分别为 8.8 ~ 28.3 μg·m⁻³ 和 1.4 ~ 11.1 μg·m⁻³. PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中总水溶性无机离子浓度分别为 (8.3 ± 2.8) μg·m⁻³ 和 (1.3 ± 0.9) μg·m⁻³, 占 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 质量浓度的 (43.7 ± 7.5)% 和 (24.4 ± 6.4)%. 在 PM_{2.5} 中,SO₄²⁻ 是最主要的水溶性无机离子,占 PM_{2.5} 总离子浓度的质量分数高达 74.2%, 占 PM_{2.5} 质量分数达 32.4%; 其次是 NH₄⁺, 占 PM_{2.5} 质量分数为 8.8%. 在 PM_{2.5-10} 中,NO₃⁻ 是最主要的水溶性无机离子,占 PM_{2.5-10} 质量分数为 8.9%; 其次是 SO₄²⁻ 和 Ca²⁺, 占 PM_{2.5-10} 质量分数分别为 7.6% 和 4.7%. 由此可见,SO₄²⁻ 是武夷山背景点颗粒物中最最重要的水溶性无机离子. 此外,水溶性无机离子在 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中的分布有明显差异,特别是 SO₄²⁻、NH₄⁺、K⁺ 和 NO₃⁻. SO₄²⁻、NH₄⁺ 主要分布在细粒子中且浓度较高,其浓

度水平分别是粗粒子的 18 倍和 43 倍. K⁺ 也主要分布在细粒子中,而 NO₃⁻ 则主要分布在粗粒子中. 总体来看,SO₄²⁻ 是武夷山背景点 PM_{2.5} 中的主要水溶性无机离子,而 NO₃⁻ 是 PM_{2.5-10} 中的主要无机离子.

与其它背景地区相比(见表 2),武夷山背景点大气气溶胶中水溶性无机离子浓度水平除 SO₄²⁻ 和 NH₄⁺ 外,其它组分接近或低于长白山和贡嘎山,特别是 NO₃⁻ 远远低于其它区域背景点;各水溶性无机离子浓度均显著低于泰山,除 K⁺ 外也远远低于兴隆背景点. 与城市采样点相比,显著低于城市采样点及城市对照点,其中,最主要的 3 种离子,SO₄²⁻ 为城市观测点浓度的 1/3 ~ 1/2, NH₄⁺ 为城市观测点浓度的 1/7 ~ 2/5, 而 NO₃⁻ 浓度水平比城市点位低 1 ~ 2 数量级,城市观测点细颗粒物中的 NO₃⁻ 浓度是武夷山背景点的 127 倍 ~ 162 倍. 总体来讲,武夷山背景点 PM_{2.5} 中主要水溶性无机离子浓度处于背景地区的中等水平,但显著小于城市地区.

特别地,相对于其它背景地区,武夷山背景点 NO₃⁻ 浓度很低,且主要分布在粗粒子中,其主要因为大气气溶胶中的 NO₃⁻ 主要来自 NO_x 在大气中的化学转化,而 NO_x 主要来自工业排放和机动车尾气排放^[30]. 采样点位于武夷山自然保护区内,人为源排放的 NO_x 对气溶胶中 NO₃⁻ 的贡献较小,光化学反应产生的“凝结模态”的 NO₃⁻ 浓度低;污染区域产生的颗粒态 NH₄NO₃ 在输送过程中可能由于随着海拔高度增加相对湿度降低^[31] 以及高空强烈的太阳辐射,不利于 NH₄NO₃ 的保存,分解为 NH₃ 和气态 HNO₃,使得细颗粒态的硝酸盐浓度降低;同时在输送过程中由于 NH₄NO₃ 与酸性较强的 H₂SO₄ 或 (NH₄)₂SO₄ 发生反应变成气态 HNO₃,加之与粗粒子海盐或矿物质发生反应,使其粒径从细粒子转变到粗粒子模态中,输送至武夷山背景点,所以在 PM_{2.5-10} 中的浓度明显高于在 PM_{2.5} 中的浓度. 相比之下,污染区域产生的 (NH₄)₂SO₄ 很稳定,且能较好地保存在细颗粒物中输送至武夷山背景点,因此武夷山背景点细颗粒物中 SO₄²⁻ 浓度较高.

表 1 武夷山背景点春季 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中水溶性无机离子浓度水平及所占质量分数

Table 1 Concentration levels and percentages of water-soluble inorganic ions in PM_{2.5} and PM_{2.5-10} at Wuyishan background station in spring

样品类型	质量浓度	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	总离子
PM _{2.5} /μg·m ⁻³	19.4 ± 6.8	0.01 ± 0.02	0.06 ± 0.11	6.19 ± 2.13	0.08 ± 0.04	1.67 ± 0.52	0.21 ± 0.10	0.03 ± 0.02	0.10 ± 0.07	8.3 ± 2.8
占 PM _{2.5} /%	—	0.0 ± 0.1	0.3 ± 0.4	32.4 ± 6.3	0.4 ± 0.1	8.8 ± 1.4	1.1 ± 0.3	0.1 ± 0.1	0.5 ± 0.3	43.7 ± 7.5
PM _{2.5-10} /μg·m ⁻³	5.1 ± 3.3	0.02 ± 0.03	0.55 ± 0.49	0.34 ± 0.16	0.06 ± 0.06	0.04 ± 0.02	0.02 ± 0.01	0.03 ± 0.02	0.25 ± 0.20	1.3 ± 0.9
占 PM _{2.5-10} /%	—	0.3 ± 0.3	8.9 ± 3.7	7.6 ± 2.3	1.0 ± 0.7	0.9 ± 0.7	0.6 ± 0.3	0.5 ± 0.3	4.7 ± 4.4	24.4 ± 6.4

表 2 不同采样地点春季颗粒物中水溶性无机离子浓度水平/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

Table 2 Concentration levels of water-soluble inorganic ions in particles at different stations in spring / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$													
采样地点	站点类型	样品类型	采样时间	季节	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	文献
武夷山	国家背景站	PM _{2.5}	2014 年	春季	0.01	0.06	6.19	0.08	1.67	0.21	0.03	0.10	本研究
长白山	区域本底站	PM _{2.5}	2006 年	春季	0.5	1.9	2.4	0.2	1.1	0.1	0.1	0.3	[20]
贡嘎山	区域本底站	PM _{2.5}	2006 年	春季	0.22	0.79	3.63	0.09	1.49	0.26	0.06	0.37	[21]
泰山	气象站	PM _{1.8}	2007 年	春季	0.55	4.73	9.43	0.24	4.53	0.83	0.12	0.55	[24]
兴隆	背景站	PM _{2.1}	2010 年	春季	2.38	10.29	13.18	1.33	7.06	0.19	1.34	8.69	[25]
成都	城市	PM _{2.5}	2009 年	春季	2.7	9.7	15.5	0.5	4.7	3.0	0.0	2.4	[13]
西安	城市	PM _{2.5}	2005 年	春季	2.7	7.6	20.4	1.0	6.6	2.3	0.2	1.7	[14]
上海	城市	PM _{2.5}	2004 年	春季	5.28	9.05	11.73	0.57	4.05	0.53	0.27	1.45	[32]
武夷山	国家背景站	PM ₁₀	2014 年	春季	0.03	0.61	6.53	0.14	1.71	0.23	0.06	0.35	本研究
贡嘎山	区域本底站	PM ₁₀	2006 年	春季	0.41	1.32	5.28	0.15	1.87	0.32	0.12	0.90	[21]
泰山	气象站	PM ₁₀	2007 年	春季	0.95	8.40	13.08	0.69	5.22	1.05	0.37	3.48	[24]
厦门	城市对照点	PM ₁₀	2005 年	春季	2.88	14.97	18.15	2.02	12.1	0.8	0.09	1.36	[15]

2.2 水溶性离子浓度间的相关性分析

通过相关性分析,一方面可以了解其来源,另一方面也可了解离子之间的化学组合形式. 由图 2 可以看出在 $\text{PM}_{2.5}$ 中 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 有非常好的相关性 ($R^2=0.95$),线性回归方程的斜率即 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 摩尔比为 1.26, 低于 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 中两者的摩尔比 2.0, 表明 SO_4^{2-} 未完全被 NH_4^+ 中和, SO_4^{2-} 还会以与其它阳离子结合的形式存在. 由表 3 可知, 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中, NH_4^+ 更倾向于与 SO_4^{2-} 结合, 未被 NH_4^+ 中和的 SO_4^{2-} 主要与 K^+ 和 Mg^{2+} 结合. 在 $\text{PM}_{2.5\sim10}$ 中 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 的相关性很差, 表明 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 主要存在于细粒子中而非粗粒子, 粗粒子中的 SO_4^{2-} 则主要与矿物质型阳离子 (如 Ca^{2+} 、 Mg^{2+}) 结合生成 CaSO_4 或 MgSO_4 , 而粗粒子中的少量的 NH_4^+ 则可能主要通过吸附或表面反应存在于粗粒子中. 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中 NO_3^- 和 NH_4^+ 的相关性很差, 说明武夷山背景点细粒子中硝酸盐较难以 NH_4NO_3 形式存在, 而贡嘎山^[21]、泰山^[24]、兴隆^[25]、西安^[14]和鼎湖

山^[33]的观测结果则发现细粒子中存在 NH_4NO_3 , 其主要原因是: 一方面, 武夷山背景点颗粒物中 SO_4^{2-} 浓度较高, NH_4^+ 优先与 SO_4^{2-} 反应生成粒径较小的铵盐, 只有 NH_3 富裕时才会与其他酸性气体 (如 HCl 和 HNO_3 等) 发生中和反应^[16], 因此不利于 NH_4^+ 与 NO_3^- 结合; 另一方面, 由于武夷山背景点 NO_3^- 主要来源于区域性输送, 在输送过程中 NH_4NO_3 容易分解, 且过量的 SO_4^{2-} 会导致细模态的 NO_3^- 转换到粗模态中. 因此, 在粗粒子中 NO_3^- 主要以 NaNO_3 和 $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$ 或 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 形式存在. 在细粒子中, Cl^- 主要以 MgCl_2 和 CaCl_2 形式存在; 在粗粒子中, Cl^- 主要以 NaCl 形式存在. Cl^- 与 Na^+ 浓度在 $\text{PM}_{2.5\sim10}$ 中有很好的相关性, 说明粗粒子中的 Na^+ 与 Cl^- 具有同源性, 二者均来自海盐的远距离输送. 但武夷山背景点粗颗粒物中 Cl^- 与 Na^+ 的摩尔比为 0.24, 明显小于海水中 Cl^- 与 Na^+ 的摩尔比 1.81^[34], 说明部分 Na^+ 可能来自于非海洋的其他排放源; 另一个重要原因是海盐

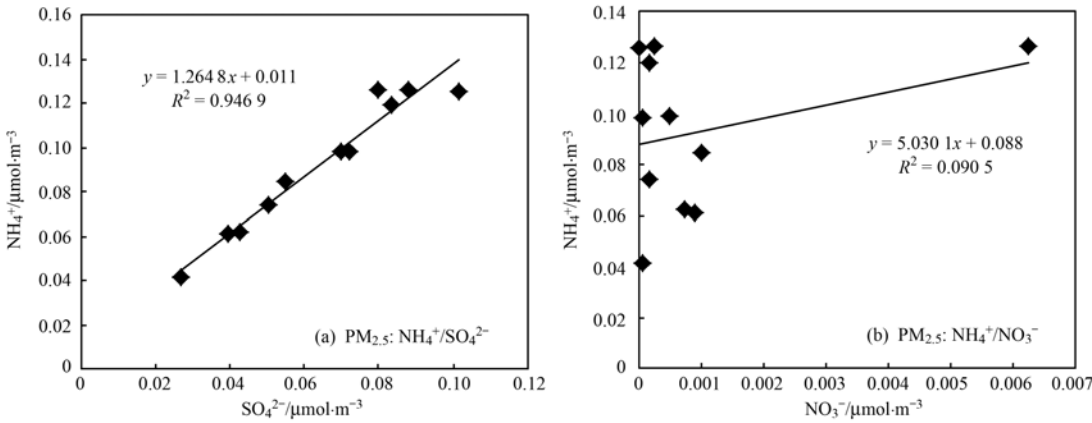


图 2 $\text{PM}_{2.5}$ 中 NH_4^+ 与 SO_4^{2-} 及 NO_3^- 的相关性

Fig. 2 Correlations between NH_4^+ , SO_4^{2-} and NO_3^- in $\text{PM}_{2.5}$

在向武夷山背景点输送过程中发生氯亏损^[35],可能是高浓度的 SO₂、NO_x 以及生成的 H₂SO₄ 和 HNO₃ 与海盐 (NaCl) 发生反应生成 HCl,加剧了 Cl⁻ 的损失. 另一方面,NH₄NO₃ 在远距离输送过程中分解为 NH₃ 和气态 HNO₃,与海盐发生反应生成 NH₄Cl 和 NaNO₃,表现为在 PM_{2.5-10} 中,Cl⁻ 与 NH₄⁺、NO₃⁻ 与 Na⁺ 有较强的相关性. Mg²⁺ 和 Ca²⁺ 为土壤、沙尘颗粒物中的典型离子,无论在粗粒子

还是细粒子中,相关性均很好,说明 Mg²⁺、Ca²⁺ 具有同源性. 武夷山背景点周边生态良好,无大面积裸露土壤且无施工工程,受扬尘和建筑尘影响很小,可能来源于沙尘的远距离输送. SO₄²⁻ 和 NO₃⁻ 在粗粒子中有较强的相关性,同时 SO₄²⁻、NO₃⁻ 与 Mg²⁺、Ca²⁺ 的相关性较好,可能是沙尘颗粒在输送或本地区停留期间发生酸化反应形成粒径较大的硫酸盐和硝酸盐.

表 3 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中水溶性无机离子浓度的相关性¹⁾

Table 3 Relationships of water-soluble inorganic ions concentrations in PM_{2.5} and PM_{2.5-10}

	SO ₄ ²⁻ -Na ⁺	SO ₄ ²⁻ -NH ₄ ⁺	SO ₄ ²⁻ -K ⁺	SO ₄ ²⁻ -Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻ -Ca ²⁺	NO ₃ ⁻ -Na ⁺	NO ₃ ⁻ -NH ₄ ⁺	NO ₃ ⁻ -K ⁺	NO ₃ ⁻ -Mg ²⁺
PM _{2.5}	0.67	0.97 **	0.81 **	0.75 *	0.73	0.72	0.39	0.72	0.14
PM _{2.5-10}	0.43	0.31	0.73	0.86 **	0.84 **	0.76 *	0.67	0.64	0.82 **
	NO ₃ ⁻ -Ca ²⁺	Cl ⁻ -Na ⁺	Cl ⁻ -NH ₄ ⁺	Cl ⁻ -K ⁺	Cl ⁻ -Mg ²⁺	Cl ⁻ -Ca ²⁺	SO ₄ ²⁻ -NO ₃ ⁻	Na ⁺ -K ⁺	Mg ²⁺ -Ca ²⁺
PM _{2.5}	0.09	0.55	0.50	0.37	0.78 *	0.75 *	0.27	0.93 **	0.99 **
PM _{2.5-10}	0.61	0.91 **	0.80 *	0.56	0.69	0.40	0.81 **	0.71	0.91 **

1) * 表示在 α=0.01 水平上,P<0.001(双侧检验),* 表示在 α=0.01 水平上,P<0.005(双侧检验)

2.3 SO₂、NO₂ 与硫酸盐和硝酸盐关系

硫氧化率 SOR[SO₄²⁻ 与总硫(SO₄²⁻ + SO₂) 的质量浓度比,其中 SO₄²⁻ 浓度采用 [nss-SO₄²⁻] = [SO₄²⁻] - 0.251 7[Na⁺]^[36] 和氮氧化率 NOR[NO₃⁻ 与总氮(NO₃⁻ + NO₂) 的质量浓度比]可以反映出气体二次转化的程度. 两者值越高就表示 SO₂ 和 NO₂ 气体更多地转化为二次气溶胶颗粒^[32]. 实际大气环境中 SOR 和 NOR 是实时变化的,利用在线小时浓度的气体和离子数据分析最为理想. 但实际在背景地区污染物浓度较低的情况下,获取实时的 SOR 和 NOR 是非常困难的. 鉴于武夷山地区颗粒物和污染气体主要来源于区域性输送,与城市点位情况有很大不同,污染物在输送过程中会发生类似气固转化的物理化学反应,从时间和空间尺度上讲,将时间分段进行平均处理在某种程度上也是科学的. 计算各个样品的硫氧化率和氮氧化率,其中 SO₂ 和 NO₂ 浓度通过统计单个样品采集期间小时均值获得. 观测期间 SO₂ 和 NO₂ 浓度分别为 (1.1 ± 0.8) μg·m⁻³ 和 (4.2 ± 2.0) μg·m⁻³,在 PM_{2.5} 中,SOR 和 NOR 平均值分别为 0.81 ± 0.08 和 0.01 ± 0.01,在 PM_{2.5-10} 中,SOR 和 NOR 平均值分别为 0.20 ± 0.09

和 0.08 ± 0.06,较高的 NO₂ 浓度和较低 NOR 值,说明春季武夷山背景点 NO₂ 的二次转化率远低于 SO₂ 的转化率. SOR 和 NOR 与样品采集期间同步观测的温度、相对湿度、SO₂、NO₂、O₃ 浓度比较,相关性分析结果见表 4. 在 PM_{2.5} 中,SOR 与 SO₂ 有很强的负相关性,与温度和相对湿度有较强的正相关性,说明较高的温度和相对湿度,有利于 SO₂ 通过均相或非均相反应生成硫酸盐;但武夷山背景点 SO₂ 浓度较低,且特别地,SOR 与 O₃ 浓度呈负相关性,与城市情况相反^[37],而 O₃ 与 SO₂ 及 SO₄²⁻ 浓度有较强的正相关性(相关系数 r 分别为 0.88 和 0.77),说明背景地区大气污染物主要来源于输送而非本地生成. NOR 与温度有较强的负相关性,主要是由于较高的温度不利于颗粒态的硝酸盐存在^[33]. NOR 与相对湿度具有一定的负相关性,这是因为用于做相关性分析的相对湿度值为周均值,数值高低与样品采集期间的降雨频率有较大的关系,而武夷山背景点硝酸盐主要分布在粒径较大的颗粒物中,降水对粗颗粒物的清除作用较强,表现为相对湿度与 NO₃⁻ 浓度的相关系数 r 在 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中分别为 -0.74 和 -0.96. SOR 与 O₃ 浓

表 4 PM_{2.5} 和 PM_{2.5-10} 中 SOR、NOR 与温度、相对湿度、SO₂、NO₂、O₃ 关系¹⁾

Table 4 Correlations between SOR, NOR and temperature, relative humidity, SO₂, NO₂, O₃ in PM_{2.5} and PM_{2.5-10}

	SOR-SO ₂	SOR-O ₃	SOR-温度	SOR-相对湿度	NOR-NO ₂	NOR-O ₃	NOR-温度	NOR-相对湿度
PM _{2.5}	-0.91 **	-0.71	0.85 **	0.79 *	0.74	0.27	-0.79 *	-0.58
PM _{2.5-10}	-0.62	-0.45	0.68	0.48	0.07	0.58	0.09	-0.63

1) * 表示在 α=0.01 水平上,P<0.001(双侧检验),* 表示在 α=0.01 水平上,P<0.005(双侧检验)

度、NOR 与相对湿度具有一定的负相关性,与城市点位^[37]的观测结果不同.在 $PM_{2.5 \sim 10}$ 中,SOR 和 NOR 与温度、相对湿度、 SO_2 、 NO_2 、 O_3 浓度的相关性较差.

2.4 水溶性无机离子浓度受区域输送影响分析

后向轨迹方法在许多研究中被用来分析气团来向,研究不同来源的气团对区域污染的作用^[38,39].聚类分析则将得到的单个轨迹按照空间相似性程度聚类,得到具有代表性的轨迹簇,判断气团来源和途经区域^[40,41].为探讨武夷山背景点水溶性无机离子的可能来源,利用 HYSPLIT4.8 模式和 NCEP 气象资料,计算在 2014 年 3 月 20 日~6 月 4 日样品采集期间每日到达武夷山背景点的后向气流轨迹,即对 $27.59^\circ N$ 、 $117.73^\circ E$ 、1 149 m (背景点坐标和采样点高程)进行后向 48 h 气流轨迹追踪,共获得 77 条后向气流轨迹.应用 HYSPLIT 4.8 模式中的聚类功能对这些轨迹进行统计分析,因有 1 条气流轨迹无法实现聚类,故只有 76 条轨迹参与聚类,得到抵达武夷山背景点的 5 类不同气流轨迹,对应于 5 种不同的典型气团(见图 3).

由图 3 可见,1 类气团来自西北方向,起源于江西省,移动高度较低,且移动速度极慢,沿途会夹带一些污染物到达武夷山背景点,对点位颗粒物中水溶性无机离子浓度造成一定影响.2 类气团起源于内蒙古的沙漠地区,移动高度较高,移动速度极快,沿途经过我国华北及华东地区;5 类气团起源于西北偏北方向,受华北、华中和华东区域影响;春季我国西北地区发生较为强烈的沙尘天气,据中国气象局国家气候中心的监测(http://cmdp.ncc-cma.net/Monitoring/cn_china_extreme.php),春季西北地区共发生 5 次较强的沙尘天气过程,通过西风输送到华北地区,而 2 类气团经过我国华北地区,因此武夷山背景点受到我国西北沙尘天气的间接影响,此外,西北地区的沙尘在东扩过程中对华中地区也有一定的影响,因此 5 类气团经过华中地区,也可能携带沙尘粒子至武夷山;同时由于京津冀和长三角地区城市群污染较重,来自此方向的气团还容易夹带高浓度的污染物包括二次无机盐^[32,38,42,43].3 类气团起源于广东省沿海,4 类气团起源于南海,带来了海盐的影响,同时因为途经广东省,也夹带了较高浓度的气态污染物及硫酸盐和硝酸盐^[37],到达武夷山背景点.总体来讲,武夷山背景点主要的水溶性离子特别是硫酸盐不仅来源于华北、华东地区,也受到华南地区的影响.

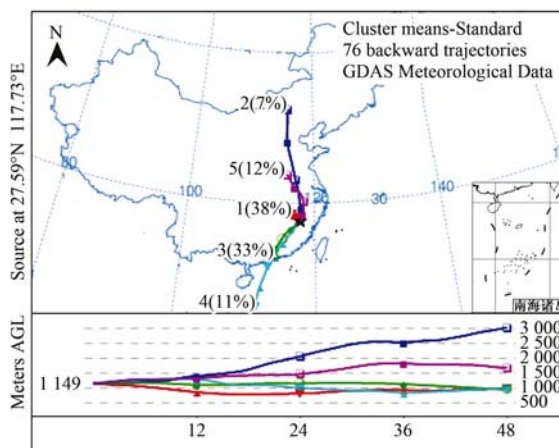


图 3 武夷山背景点平均后向轨迹分布示意

Fig. 3 Mean trajectories for Wuyishan background station

3 结论

(1)春季武夷山背景点 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{2.5 \sim 10}$ 中水溶性无机离子浓度分别为 $(8.3 \pm 2.8) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(1.3 \pm 0.9) \mu g \cdot m^{-3}$, 占 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{2.5 \sim 10}$ 质量浓度的 $(43.7 \pm 7.5)\%$ 和 $(24.4 \pm 6.4)\%$. SO_4^{2-} 是颗粒物中最重要的水溶性无机离子,其主要分布在 $PM_{2.5}$ 中,而 NO_3^- 浓度则较低且主要分布在 $PM_{2.5 \sim 10}$.

(2) $PM_{2.5}$ 中 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 有很强的相关性,主要以 $(NH_4)_2SO_4$ 形式存在; NO_3^- 和 NH_4^+ 的相关性则很差, NO_3^- 较难以 NH_4NO_3 形式存在.

(3)春季武夷山背景点 NO_2 的二次转化率远低于 SO_2 的转化率,较高的温度和相对湿度,有利于 SO_2 转化为硫酸盐.

(4)春季武夷山背景点水溶性无机离子主要来源于沙尘、海盐及高污染区域的远距离输送.

参考文献:

- [1] 戴海夏,宋伟民,高翔,等.上海市A城区大气 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 污染与居民日死亡数的相关分析[J].卫生研究,2004,33(3):293-297.
- [2] 谢媚,刘涛,陆小安,等.广州市SARS传播与空气污染相关性研究[J].安全与环境学报,2004,4(3):73-76.
- [3] Vallius M, Janssen N A H, Heinrich J, et al. Sources and elemental composition of ambient $PM_{2.5}$ in three European cities [J]. Science of the Total Environment, 2005, 337(1-3):147-162.
- [4] Na K, Cocker III D R. Characterization and source identification of trace elements in $PM_{2.5}$ from Mira Loma, Southern California [J]. Atmospheric Research, 2009, 93(4):793-800.
- [5] Duan J C, Bi X H, Tan J H, et al. The differences of the size distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) between urban and rural sites of Guangzhou, China [J]. Atmospheric Research, 2005, 78(3-4):190-203.
- [6] Duan J C, Tan J H, Wang S L, et al. Size distributions and

- sources of elements in particulate matter at curbside, urban and rural sites in Beijing [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2012, **24**(1): 87-94.
- [7] 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.
- [8] 陶俊, 张仁健, 许振成, 等. 广州冬季大气消光系数的贡献因子研究[J]. *气候与环境研究*, 2009, **14**(5): 484-490.
- [9] Lin J J. Characterization of the major chemical species in $PM_{2.5}$ in the Kaohsiung City, Taiwan [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(12): 1911-1920.
- [10] Wang Y, Zhuang G, Tang A, *et al.* The ion chemistry and the source of $PM_{2.5}$ aerosol in Beijing [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(21): 3771-3784.
- [11] Lee C G, Yuan C S, Chang J C, *et al.* Effects of aerosol species on atmospheric visibility in Kaohsiung city, Taiwan [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2005, **55**(7): 1031-1041.
- [12] Dougle P G, Vlasenko A L, Veefkind J P, *et al.* Humidity dependence of the light scattering by mixtures of ammonium nitrate, ammonium sulfate and soot [J]. *Journal of Aerosol Science*, 1996, **27**(1): S513-S514.
- [13] 陶俊, 柴发合, 李朱华, 等. 2009 年春季成都城区碳气溶胶污染特征及其来源初探[J]. *环境科学学报*, 2011, **31**(12): 2756-2761.
- [14] 沈振兴, 李丽珍, 杜娜, 等. 西安市春季大气细粒子的质量浓度及其水溶性组分的特征[J]. *生态环境*, 2007, **16**(4): 1193-1198.
- [15] 庄马展, 杨红斌, 王坚, 等. 厦门大气可吸入颗粒物离子成分特征研究[J]. *现代科学仪器*, 2006, (6): 92-95.
- [16] Hu M, Wu Z J, Slanina J, *et al.* Acidic gases, ammonia and water-soluble ions in $PM_{2.5}$ at a coastal site in the Pearl River Delta, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(25): 6310-6320.
- [17] Zhuang H, Chan C K, Fang M, *et al.* Size distributions of particulate sulfate, nitrate, and ammonium at a coastal site in Hong Kong [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(6): 843-853.
- [18] 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.
- [19] Tao J, Ho K F, Chen L G, *et al.* Effect of chemical composition of $PM_{2.5}$ on visibility in Guangzhou, China, 2007 spring [J]. *Particology*, 2009, **7**(1): 68-75.
- [20] 赵亚南, 王跃思, 温天雪, 等. 长白山 $PM_{2.5}$ 中水溶性无机离子观测研究[J]. *环境化学*, 2011, **30**(4): 812-815.
- [21] 赵亚南, 王跃思, 温天雪, 等. 贡嘎山大气气溶胶中水溶性无机离子的观测与分析研究[J]. *环境科学*, 2009, **30**(1): 9-13.
- [22] Ma J Z, Tang J, Li S M, *et al.* Size distribution of ionic aerosols measured at Waliguan Observatory: Implication for nitrate gas-to-particle transfer processes in the free troposphere [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2003, **108**(D17): 4541-4553.
- [23] 刘鲁宁, 郝庆菊, 刘子锐, 等. 鼎湖山地区大气颗粒物中水溶性无机盐粒径分布特征[J]. *中国农学通报*, 2010, **26**(17): 357-361.
- [24] 高晓梅, 王韬, 周杨, 等. 泰山春、夏两季大气颗粒物及其水溶性无机离子的粒径分布特征[J]. *环境化学*, 2011, **30**(3): 686-692.
- [25] 李杏茹, 宋爱利, 王英锋, 等. 兴隆大气气溶胶中水溶性无机离子分析[J]. *环境科学*, 2013, **34**(1): 15-20.
- [26] Suzuki I, Hayashi K, Igarashi Y, *et al.* Seasonal variation of water-soluble ion species in the atmospheric aerosols at the summit of Mt. Fuji [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(34): 8027-8035.
- [27] 《环境科学大辞典》编辑委员会. 环境科学大辞典[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1991. 14.
- [28] 蔡旭晖, 张睿, 宋宇, 等. 北京地区大气 PM_{10} 和 SO_2 的背景浓度分析[J]. *气候与环境研究*, 2004, **9**(3): 445-453.
- [29] 苏彬彬, 许榕洋, 张若宇, 等. 区域传输对华东森林及高山背景点位大气污染物浓度的影响[J]. *环境科学*, 2014, **35**(8): 2871-2877.
- [30] 田贺忠, 郝吉明, 陆永琪, 等. 中国氮氧化物排放清单及分布特征[J]. *中国环境科学*, 2001, **21**(6): 493-497.
- [31] 高慧, 翁宁泉, 孙刚, 等. 我国不同区域高空温度和相对湿度的分布特征[J]. *大气与环境光学学报*, 2012, **7**(2): 101-107.
- [32] Wang Y, Zhuang G S, Zhang X Y, *et al.* The ion chemistry, seasonal cycle, and sources of $PM_{2.5}$ and TSP aerosol in Shanghai [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(16): 2935-2952.
- [33] 刘子锐, 王跃思, 刘全, 等. 鼎湖山秋季大气细粒子及其二次无机组分的污染特征及来源[J]. *环境科学*, 2011, **32**(11): 3160-3166.
- [34] 姚小红, 黄美元, 高会旺, 等. 沿海地区海盐和大气污染物反应的致酸作用[J]. *环境科学*, 1998, **19**(3): 22-27.
- [35] Cheng Z L, Lam K S, Chan L Y, *et al.* Chemical characteristics of aerosols at coastal station in Hong Kong. I. Seasonal variation of major ions, halogens and mineral dusts between 1995 and 1996 [J]. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**(17): 2771-2783.
- [36] Millero F J. *Chemical oceanography* [M]. Boca Raton: The Chemical Rubber Company Press, 1996. 469.
- [37] 陶俊, 张仁健, 董林, 等. 夏季广州城区细颗粒物 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中水溶性无机离子特征[J]. *环境科学*, 2010, **31**(7): 1417-1424.
- [38] 王艳, 柴发合, 王永红, 等. 长江三角洲地区大气污染物输送规律研究[J]. *环境科学*, 2008, **29**(5): 1430-1435.
- [39] 林伟立, 徐晓斌, 孙俊英, 等. 金沙大气本底站反应性气体本底浓度及长距离输送的影响[J]. *中国科学: 地球科学*, 2011, **41**(4): 573-582.
- [40] 徐晓斌, 刘希文, 林伟立. 输送对区域本底站痕量气体浓度的影响[J]. *应用气象学报*, 2009, **20**(6): 656-664.
- [41] 王芳, 陈东升, 程水源, 等. 基于气流轨迹聚类的大气污染输送影响[J]. *环境科学研究*, 2009, **22**(6): 637-642.
- [42] 孙颖, 潘月鹏, 李杏茹, 等. 京津冀典型城市大气颗粒物化学成分同步观测研究[J]. *环境科学*, 2011, **32**(9): 2732-2740.
- [43] 徐宏辉, 刘洁, 王跃思, 等. 杭州地区大气气溶胶中水溶性离子特征的城郊对比分析[J]. *环境化学*, 2009, **28**(4): 598-599.

CONTENTS

Comparative Analysis and Inspiration of Air Quality Index Between China and America	GAO Qing-xian, LIU Jun-rong, LI Wen-tao, <i>et al.</i>	(1141)
Regional Source Apportionment of PM _{2.5} in Beijing in January 2013	LI Xuan, NIE Teng, QI Jun, <i>et al.</i>	(1148)
Formation Mechanism of a Serious Pollution Event in January 2013 in Beijing	CHENG Nian-liang, LI Yun-ting, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i>	(1154)
Soluble of Metals within TSP in Shanghai	CHANG Yan, FENG Chong, QU Jian-guo, <i>et al.</i>	(1164)
Analysis of Component Spectral Characteristics of PM ₁₀ -Bound PAHs and the Influence of Weather Conditions During Spring in Xiamen	ZHANG Jian, FAN Shu-xian, SUN Yu, <i>et al.</i>	(1173)
Tracing Sources of Sulfate Aerosol in Nanjing Northern Suburb Using Sulfur and Oxygen Isotopes	WEI Ying, GUO Zhao-bing, GE Xin, <i>et al.</i>	(1182)
Analysis of an Air Pollution Process Using LiDAR in Nanjing, Spring of 2014	BAO Qing, HE Jun-liang, ZHA Yong, <i>et al.</i>	(1187)
Characteristics of Water-soluble Inorganic Ions in PM _{2.5} and PM _{2.5-10} in Mountain Background Region of East China in Spring	SU Bin-bin, ZHANG Zhi-sheng, TAO Jun, <i>et al.</i>	(1195)
Emission of Particulate Matter, Organic and Elemental Carbon from Burning of Fallen Leaves	YANG Wei-zong, LIU Gang, LI Jiu-hai, <i>et al.</i>	(1202)
Emission Inventory of Crop Residues Field Burning and Its Temporal and Spatial Distribution in Sichuan Province	HE Min, WANG Xing-rui, HAN Li, <i>et al.</i>	(1208)
Marine Emission Inventory and Its Temporal and Spatial Characteristics in the City of Shenzhen	YANG Jing, YIN Pei-ling, YE Si-qi, <i>et al.</i>	(1217)
Characteristic of Ultrafine Particles Transferring Through Building Envelopes	SUN Zai, CHEN Qiu-fang, CAI Zhi-liang, <i>et al.</i>	(1227)
Airborne Fungal Aerosol Concentration and Distribution Characteristics in Air-Conditioned Wards	ZHANG Hua-ling, FENG He-hua, FANG Zi-liang, <i>et al.</i>	(1234)
Effect of Below-cloud Secondary Evaporation in Precipitations over the Loess Plateau Based on the Stable Isotopes of Hydrogen and Oxygen	JIN Xiao-gang, ZHANG Ming-jun, WANG Sheng-jie, <i>et al.</i>	(1241)
Effect of the Runoff-sediment Control of the Xiaolangdi Reservoir on DOC Transport	ZHANG Yong-ling, WANG Ming-shi, DONG Yu-long	(1249)
Effects of Long-term Implementation of the Flow-Sediment Regulation Scheme on Grain and Clay Compositions of Inshore Sediments in the Yellow River Estuary	WANG Miao-miao, SUN Zhi-guo, LU Xiao-ning, <i>et al.</i>	(1256)
Influences of Biological Processes on Geochemical Characteristics: An Example of a Mountain Karst Pool in Spring Season	YU Zheng-liang, YANG Ping-heng, ZHAO Rui-yi, <i>et al.</i>	(1263)
Variation Characteristics and Sources of Heavy Metals in an Urban Karst Groundwater System during Rainfall Event	REN Kun, YANG Ping-heng, JIANG Ze-li, <i>et al.</i>	(1270)
Risk Assessment of Trihalomethane Production Using the Beijiang River and the Pearl River, Guangzhou as Drinking Water Sources	ZHONG Hui-zhou, WEI Chao-hai	(1277)
Spatial Variability Characteristics of Water Quality and Its Driving Forces in Honghu Lake During High Water-level Period	LI Kun, WANG Ling, LI Zhao-hua, <i>et al.</i>	(1285)
Nutrient Exchange Between Meixi River and Yangtze River Due to the Typical Interaction Process of the Three Gorges Reservoir and Its Tributary	CAO Man, FU Jia-nan, ZHOU Zi-ran, <i>et al.</i>	(1293)
Effects of Nutrient Inputs on Changes of Phosphorus Forms and Phytoplankton Growth in Taihu Lake	WANG Rui-zhe, WANG Pei-fang, REN Ling-xiao, <i>et al.</i>	(1301)
Community Dynamics of Phytoplankton and Related Affecting Factors in a Eutrophicated Small Pond	YANG Wen, ZHU Jin-yong, ZHANG Ke-xin, <i>et al.</i>	(1309)
Yearly Changes of Phytoplankton Community in the Ecology-monitoring Area of Changli, Hebei in Summer	LIANG Xiao-lin, YANG Yang, WANG Yu-liang, <i>et al.</i>	(1317)
Improvement of River Water Quality by Aeration: WASP Model Study	ZHU Wen-bo, WANG Hong-xiu, LIU Cui, <i>et al.</i>	(1326)
Radiolytic Decomposition of Ciprofloxacin Hydrochloride in Aqueous Solution Using γ Irradiation	ZHU Sheng-nan, GUO Zhao-bing, ZHAO Yong-fu, <i>et al.</i>	(1332)
Removal of Antimony in Wastewater by Electrochemical Hydride Generation and the Recovery of Antimony	CHEN Jing-jing, ZHANG Guo-ping, LI Hai-xia, <i>et al.</i>	(1338)
Degradation of <i>m</i> -Cresol with Fe-MCM-41 in Catalytic Ozonation	SUN Wen-jing, WANG Ya-min, WEI Huang-zhao, <i>et al.</i>	(1345)
Bioanode and Inversion of Bioanode to Biocathode for the Degradation of Antibiotic Chloramphenicol	KONG De-yong, LIANG Bin, YUN Hui, <i>et al.</i>	(1352)
Photolysis of Gaseous HNO ₃ on the α -Fe ₂ O ₃ Films Under 308 nm UV Light	LU Jun, SUN Yun-dong, XIE Jing-jing, <i>et al.</i>	(1359)
Simultaneous Determination of Hydroquinone and Catechol Based on L-Histidine-Erythrosine Composite Film Modified Glassy Carbon Electrode	HE Jia-hong, XU Qiang, DING Wu-quan, <i>et al.</i>	(1365)
Preparation and Characterization of Quinone Functional Polymer Biocarrier (PET-AQS) for Bionitrification Catalysis	XU Qing, HOU Zheng-hao, TIAN Xiu-lei, <i>et al.</i>	(1374)
Kinetic Characteristics of Degradation of Geosmin and 2-Methylisoborneol by <i>Bacillus subtilis</i>	MA Nian-nian, LUO Guo-zhi, TAN Hong-xin, <i>et al.</i>	(1379)
Screening of a Highly Efficient Quinoline-degrading Strain and Its Enhanced Biotreatment on Coking Waste Water	LI Jing, LI Wen-ying	(1385)
Effect of Ferric Iron on Nitrogen Immigration and Transformation and Nitrous Oxide Emission During Simultaneous Nitrification Denitrification Process	LI Hao, YAN Yu-jie, XIE Hui-jun, <i>et al.</i>	(1392)
Running Condition and Bacterial Community Associated with the Partial Nitrification System	ZHAO Zhi-rui, JIAO Hai-hua, CUI Bing-jian, <i>et al.</i>	(1399)
Using Excess Activated Sludge Treated 4-Chlorophenol Contained Waste Water to Cultivate <i>Chlorella vulgaris</i>	WANG Lu, CHEN Xiu-rong, YAN Long, <i>et al.</i>	(1406)
Effects of Total Nitrogen and BOD ₅ /TN on Anaerobic Ammonium Oxidation-Denitrification Synergistic Interaction of Mature Landfill Leachate in Aged Refuse Bioreactor	YANG Ying-ying, CHEN Yi, LI Ming-jie, <i>et al.</i>	(1412)
Altitudinal Gradient Distribution and Source Analysis of PAHs Content of Topsoil in Jinpo Mountain, Chongqing	SHI Yang, SUN Yu-chuan, LIANG Zuo-bing, <i>et al.</i>	(1417)
Characteristics and Inputs of Cd Contamination in Paddy Soils in Typical Mining and Industrial Areas in Youxian County, Hunan Province	ZHANG Min, WANG Mei-e, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i>	(1425)
Effects of Canalization on the Iron Deposition in Sanjiang Plain	SU Wen-hui, YU Xiao-fei, WANG Guo-ping, <i>et al.</i>	(1431)
Effects of Phosphate and Zeolite on the Transformation of Cd Speciation in Soil	WANG Xiu-li, LIANG Cheng-hua, MA Zi-hui, <i>et al.</i>	(1437)
Leaching Remediation of Copper and Lead Contaminated Lou Soil by Saponin Under Different Conditions	DENG Hong-xia, YANG Ya-li, LI Zhen, <i>et al.</i>	(1445)
Accumulation Characteristics and Evaluation of Heavy Metals in Soil-Crop System Affected by Wastewater Irrigation Around a Chemical Factory in Shenmu County	QI Yan-bing, CHU Wan-lin, PU Jie, <i>et al.</i>	(1453)
Effects of Organic and Inorganic Slow-Release Compound Fertilizer on Different Soils Microbial Community Structure	WANG Fei, YUAN Ting, GU Shou-kuan, <i>et al.</i>	(1461)
Response of Maize to Lead Stress and Relevant Chemical Forms of Lead	CHENG Hai-kuan, ZHANG Biao, JING Xin-xin, <i>et al.</i>	(1468)
Effect of Boron-antimony Interaction on the Uptake and Accumulation of Antimony and Boron by Rice Seedling	XIANG Meng, HUANG Yi-zong, CAI Li-qun, <i>et al.</i>	(1474)
Effects of Arbuscular Mycorrhizal Fungi on the Growth of Reeds in Wetland Soils with Different Salt Content	GUO Jiang-yuan, GUO Wei, BI Na, <i>et al.</i>	(1481)
A Contrastive Study on Salt-alkaline Resistance and Removal Efficiency of Nitrogen and Phosphorus by <i>Phragmites australis</i> and <i>Typha angustifolia</i> in Coastal Estuary Area	CHEN You-yuan, SUN Ping, CHEN Guang-lin, <i>et al.</i>	(1489)
Soil Microbial Respiration Under Different Soil Temperature Conditions and Its Relationship to Soil Dissolved Organic Carbon and Invertase	WU Jing, CHEN Shu-tao, HU Zheng-hua, <i>et al.</i>	(1497)
Comparison Analysis of Economic and Engineering Control of Industrial VOCs	WANG Yu-fei, LIU Chang-xin, CHENG Jie, <i>et al.</i>	(1507)

《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)

2015年4月15日 第36卷 第4期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 4 Apr. 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