

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第8期

Vol.37 No.8

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

中国地区二次有机气溶胶的时空分布特征和来源分析	陈卓,刘峻峰,陶玮,陶澍 (2815)
中国民用煤燃烧排放细颗粒物中重金属的清单	刘海彪,孔少飞,王伟,严沁 (2823)
基于长时间序列的北京 PM _{2.5} 浓度日变化及气象条件影响分析	苗蕾,廖晓农,王迎春 (2836)
2004~2015年北京市清洁点臭氧浓度变化特征	
程念亮,李云婷,张大伟,陈添,魏强,孙彤卉,王步英,富佳明,何乐为,程兵芬,皮帅,马立光,崔继宪,孟凡 (2847)	
抗战胜利70周年大阅兵期间石家庄大气细颗粒物在线来源解析	
周静博,李治国,路娜,徐曼,杨鹏,高康宁,王建国,靳伟 (2855)	
成都平原大气颗粒物中无机水溶性离子污染特征	蒋燕,贺光艳,罗彬,陈建文,王斌,杜云松,杜明 (2863)
嘉兴市春季一次持续雾霾过程中气象条件与污染物变化特征分析	
沈利娟,王红磊,李莉,吕升,袁婧,张孝寒,章国骏,王翥 (2871)	
泉州市大气降尘中金属元素污染特征及来源解析	张棕巍,胡恭任,于瑞莲,刘贤荣,胡起超,王晓明 (2881)
城市室内灰尘重金属水平、影响因素及健康风险:以贵阳市为例	李晓燕,汪浪,张舒婷 (2889)
桂林市酸雨变化特征及来源分析	郭雅思,于爽,黎泳珊,孙平安,何若雪 (2897)
农田土壤施用系列新型氮肥后气态氮(NH ₃ 和N ₂ O)减排效果比较:以夏玉米季为例	范会,姜姗姗,魏茨,蒋静艳 (2906)
青海南部高原积雪期与生长季高寒草甸土壤CO ₂ 、CH ₄ 和N ₂ O通量的观测	吴建国,周巧富 (2914)
三峡库区香溪河秋末至中冬CO ₂ 和CH ₄ 分压特征分析	张军伟,雷丹,肖尚斌,张成,穆晓辉,刘佳,李迎晨 (2924)
气候变化对于桥水库总磷与溶解氧的潜在影响分析	张晨,刘汉安,高学平,张文娜 (2932)
三峡库区小流域土地利用结构变化及其氮素输出控制效应:以兰陵溪小流域为例	
吴东,黄志霖,肖文发,曾立雄,韩黎阳 (2940)	
入湖河流水质对土地利用时空格局的响应研究:以洱海北部流域为例	项颂,庞燕,储昭升,胡小贞,孙莉,薛力强 (2947)
库湾营养盐循环对三峡库区营养盐运输的影响:以草堂河为例	王晓彤,罗光富,操满,王雨春,汪福顺,邓兵 (2957)
农田溪流人工深潭地貌格局暂态存储特征分析	李如忠,黄青飞,钱靖,殷晓曦,韦林 (2964)
农田排水沟渠水体-底泥中溶质氮分布特征试验研究	李强坤,胡亚伟,宋常吉,彭聪 (2973)
三峡库区典型消落带土壤微生物生物量碳、氮的变化特征及其影响因素探讨	
柴雪思,雷利国,江长胜,黄哲,范志伟,郝庆菊 (2979)	
重金属在河口区潮汐界面与盐度界面响应规律研究	刘静,郑丙辉,刘录三,马迎群,林岗璇,汪星,夏阳 (2989)
深圳地区全氟辛酸磺酸的环境多介质迁移和归趋行为研究	崔晓宇,张鸿,罗骥,张若冰 (3001)
柘林湾表层沉积物中有机氯农药的分布特征及生态风险评价	卫亚宁,潘佳钊,宋玉梅,郭鹏然,王毅 (3007)
北运河水体中荧光溶解性有机物空间分布特征及来源分析	陈永娟,胡玮璇,庞树江,王晓燕 (3017)
昌邑滨海湿地沉积物的放射性核素水平与环境指示意义	王启栋,宋金明,李学刚,袁华茂,李宁,曹磊 (3026)
甯醇对南山老龙洞地下水粪便污染的指示	廖昱,孙玉川,王尊波,梁作兵,张远瞩 (3034)
漳沱河冲洪积扇地下水中酚酸酯的污染现状与分布特征	昌盛,赵兴茹,刘琰,耿梦娇,肖晋翠 (3041)
雨季不同土地利用下表层岩溶泉中脂肪酸来源分析	张媚,孙玉川,谢正兰,余琴,赵瑞一,梁作兵 (3049)
Zn系LDHs覆膜改性人工湿地沸石基质除磷机制	张翔凌,黄华玲,郭露,陈巧珍,阮聪颖,冷玉洁 (3058)
Ce ³⁺ 与Cu ²⁺ 协同强化芬顿体系氧化苯酚的效能与机制研究	张剑桥,迟惠中,宋阳,罗从伟,江进,马军 (3067)
Pt/生物炭电极反应器处理水中腐殖酸的研究	丁文川,向星光,曾晓岚,厉晓宇,梁国强, M. M. Mian (3073)
石墨烯-TiO ₂ 光催化剂复合板制备及其对五氯酚的催化降解	徐琪,周泽宇,王洪涛 (3079)
单偶氮染料AY17的光催化降解动力学及机制	阳海,魏宏庆,胡乐天,胡倩,阳立平,刘华杰,易翔,易兵 (3086)
硫自养反硝化处理高含氟光伏废水可行性	马航,朱强,朱亮,李祥,黄勇,魏凡凯,杨朋兵 (3094)
膜曝气-生物膜反应器生物强化处理阿特拉津废水运行性能	刘春,于长富,张静,陈晓轩,张磊,杨景亮 (3101)
ABR工艺ANAMMOX耦合短程硝化协同脱氮处理城市污水	吴鹏,张诗颖,宋吟玲,徐乐中,沈耀良,张婷 (3108)
活性污泥厌氧Fe(III)还原氨氧化现象初探	李祥,林兴,杨朋兵,黄勇,刘恒蔚 (3114)
低浓度氨氮废水单级自养脱氮EGSB反应器的快速启动	顾书军,方芳,李凯,刘勇,郭劲松,陈猷鹏,蒋甫阳 (3120)
超低溶解氧条件下的EBPR系统除磷性能	马娟,宋璐,俞小军,李璐,孙雷军,孙洪伟,李光银 (3128)
活性污泥表面性质对絮凝沉降性能与出水悬浮物的影响	何志江,赵媛,张源凯,王洪臣,齐鲁,尹训飞,张晓军 (3135)
山东省典型金矿区土壤重金属空间特征分析与环境风险评估	
王菲,吴泉源,吕建树,董玉龙,曹文涛,康日斐,曹见飞 (3144)	
电子垃圾拆解区土壤重金属空间异质性及分布特征	赵科理,傅伟军,叶正钱,戴巍 (3151)
我国18种不同理化性质的土壤对硒酸盐的吸附解吸作用研究	冯璞阳,李哲,者渝芸,黄杰,梁东丽 (3160)
流动搅动法研究针铁矿对亚砷酸盐的吸附特征	李鑫,杨军,饶伟,王代长,杜光辉,化党领,刘世亮,刘红恩 (3169)
聚羧基铝柱撑硅藻土的制备及其对水溶液中Cu ²⁺ 、Zn ²⁺ 的吸附特性	朱健,雷明婧,王平,张伟丽,陈仰 (3177)
新型污泥基吸附材料制备及其氨氮去除性能评价	王文东,刘荟,张银婷,杨生炯 (3186)
纳米复合水凝胶的制备及其对重金属离子的吸附	朱倩,李正魁,张一品,韩华杨,王浩 (3192)
鼠李糖脂与β-环糊精复合提取预测污染土壤中PAHs的生物有效性	
张亚楠,杨兴伦,卞永荣,谷成刚,王芳,王代长,蒋新 (3201)	
不同磷水平下丛枝菌根真菌对纳米氧化锌生物效应的影响	景新新,苏志忠,邢红恩,王发园,石兆勇,刘雪琴 (3208)
中美水生生物基准受试物种敏感性差异研究	王晓南,闫振广,余若祯,王婉华,陈丽红,刘征涛 (3216)
贫营养和痕量抗生素对质粒抗生素抗性适应度代价的影响	林文芳,陈胜,万堃,王春明,林惠荣,于鑫 (3224)
不同氨水平下间作对玉米土壤硝化势和氨氧化微生物数量的影响	吕玉,周龙,龙光强,汤利 (3229)
《环境科学》征订启事(3025) 《环境科学》征稿简则(3057) 信息(3072, 3085, 3143)	

成都平原大气颗粒物中无机水溶性离子污染特征

蒋燕^{1,2}, 贺光艳¹, 罗彬¹, 陈建文¹, 王斌², 杜云松¹, 杜明^{1*}

(1. 四川省环境监测总站, 成都 610091; 2. 四川大学建筑与环境学院, 成都 610065)

摘要: 为探讨成都平原大气颗粒物中水溶性离子的污染特征, 识别水溶性离子的组成、分布和时空变化, 有针对性地控制重污染和灰霾天气, 于 2013 年 8 月~2014 年 7 月, 在成都平原的 5 个监测点位共采集 1 476 个颗粒物样品, 应用离子色谱法对 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 中 8 种无机水溶性离子 (SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Cl^-) 进行测量. 结果表明在观测期间, $PM_{2.5-10}$ 和 $PM_{2.5}$ 中无机水溶性离子总量分别为 $11.35 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $36.93 \mu g \cdot m^{-3}$, 分别占 $\rho(PM_{2.5-10})$ 和 $\rho(PM_{2.5})$ 的 37.8% 和 46.6%; 其中二次离子 (SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ , SNA) 约占各自水溶性离子总量的 81.1% 和 89.9%. 水溶性离子质量浓度冬季最高, 春秋相当, 夏季最低. $\rho(SO_4^{2-})/\rho(PM_{2.5})$ 夏秋季较高, 而 $\rho(NO_3^-)/\rho(PM_{2.5})$ 冬季最高, 夏季最低. SNA、 Cl^- 、 K^+ 大多分布在 $PM_{2.5}$ 中, Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 主要分布在 $PM_{2.5-10}$ 中. $PM_{2.5}$ 基本呈中性, 水溶性离子主要以 $(NH_4)_2SO_4$ 、 NH_4NO_3 、 KNO_3 、 $NaCl$ 、 KCl 等形式存在. $\rho(NO_3^-)/\rho(SO_4^{2-})$ 揭示固定源依然是 $PM_{2.5}$ 的主要来源. 硫酸化速率 (SOR) 和氮氧化速率 (NOR) 年均值分别为 0.31 和 0.13, SOR 夏季最高, NOR 冬季最高, 二者变化趋势相反. 成都平原 $PM_{2.5}$ 呈区域性复合污染特征, SNA 是造成 $\rho(PM_{2.5})$ 增加的主导因素.

关键词: 成都平原; $PM_{2.5}$; $PM_{2.5-10}$; 无机水溶性离子; 污染特征

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)08-2863-08 DOI: 10.13227/j.hjx.2016.08.006

Pollution Characteristics of Inorganic Water-soluble Ions in Atmospheric Particulate Matter in Chengdu Plain

JIANG Yan^{1,2}, HE Guang-yan¹, LUO Bin¹, CHEN Jian-wen¹, WANG Bin², DU Yun-song¹, DU Ming^{1*}

(1. Sichuan Environmental Monitoring Station, Chengdu 610091, China; 2. Academy of Architecture and Environment, Sichuan University, Chengdu 610065, China)

Abstract: To study the pollution characteristics of water-soluble ions in atmospheric particulate matter in Chengdu Plain, and identify the composition, distribution, time and spatial variation, achieve targeted control of heavy pollution and haze days, 1 476 samples were collected at five monitoring sites during August 2013-July 2014, in which eight kinds of inorganic water-soluble ions (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , K^+ , Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^-) were determined by ion chromatography. The results showed that the total mass concentrations of 8 ions in $PM_{2.5-10}$ and $PM_{2.5}$ were 11.35 and 36.93 $\mu g \cdot m^{-3}$, accounting for 37.8% and 46.6% respectively, and SNA (SO_4^{2-} , NO_3^- and NH_4^+) in $PM_{2.5-10}$ and $PM_{2.5}$ contributed 81.1% and 89.9% to the total ions, respectively. The concentration of water-soluble ions was highest in winter and lowest in summer. $\rho(SO_4^{2-})/\rho(PM_{2.5})$ was highest in summer and autumn, while $\rho(NO_3^-)/\rho(PM_{2.5})$ was highest in winter and lowest in summer. SNA, Cl^- , K^+ mostly distributed in $PM_{2.5}$, Ca^{2+} and Mg^{2+} in $PM_{2.5-10}$. $PM_{2.5}$ was generally neutral, the water-soluble ions in which existed as $(NH_4)_2SO_4$, NH_4NO_3 , KNO_3 , $NaCl$, KCl and so on. $\rho(NO_3^-)/\rho(SO_4^{2-})$ revealed that the main source of $PM_{2.5}$ was given priority to fixed sources. Sulfur oxidation ratio (SOR) and nitrogen oxidation ratio (NOR) were 0.31 and 0.13, respectively, which had opposite changing trend with a highest SOR in summer and NOR in winter. $PM_{2.5}$ had the characteristics of regional pollution complex, and SNA was the dominant factor causing the increase of $\rho(PM_{2.5})$.

Key words: Chengdu Plain; $PM_{2.5}$; $PM_{2.5-10}$; inorganic water-soluble ions; pollution characteristics

由于工业化和城市化进程的加快,我国大气污染呈现以细颗粒物、臭氧为主要污染物的快速蔓延性、综合性和区域性的大气复合污染特征,并由局地的一次污染向区域的二次污染转变^[1]. 按照新修订的 GB 3095-2012《环境空气质量标准》,全国约 70% 的城市不达标,颗粒物已成为绝大多数城市的首要污染物. 大气颗粒物对人体健康、能见度和气候变化有重要影响^[2~4]. 颗粒物主要组分包括水溶性离子、有机碳、元素碳、地壳元素和各种微量元

素等. 水溶性离子一般占到 $PM_{2.5}$ 的 30%~50%^[5], 是造成颗粒物质量浓度升高的重要因素. SNA 是水溶性离子的主要成分^[6], 此外还包括 K^+ 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 等. 近年来国内外许多学者对颗粒物中水溶性离子进行了深入研究, 大多集中在北

收稿日期: 2015-08-24; 修订日期: 2015-12-17

基金项目: 四川省环境保护重大科技专项 (2013HBZX01)

作者简介: 蒋燕 (1991~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气污染防治, E-mail: 419918175@qq.com

* 通讯联系人, E-mail: office@scemc.cn

京^[7,8]、南京^[9~11]、珠三角^[12,13]等区域,此外,文献^[14~16]还对背景区域大气颗粒物中水溶性离子进行了分析,研究结果均表明 SNA 为主要污染离子,且多来源于二次转化过程.目前,还未见对成都平原大气颗粒物中水溶性离子污染特征的系统性研究报道.

成都平原(102°29'E ~ 105°43'E、29°15'N ~ 33°03'N)包括成都、绵阳、德阳、眉山、资阳这5市,总面积达53 379 km²,已成为四川省污染最为严重的区域之一.成都平原位于显著的强逆温区域,地面风速小,大气稳定度以弱稳定和中性为主,污染气象条件极差.成都市作为成都平原的重要城市之一,对其大气颗粒物中水溶性离子的季节变化及二次离子污染特征已有一些研究^[1,17,18],但监测点单一、覆盖范围较小、缺乏长时间连续监测数据.为此,该研究在成都平原设置5个监测点,于2013年8月~2014年7月对成都平原大气颗粒物(PM_{2.5}和PM₁₀)中无机水溶性离子进行检测,并分析了其质量浓度水平、时空变化、粒径分布等,以期在成都平原重污染和灰霾天气控制及颗粒物污染治理提供一定的科学依据.

1 材料与方法

1.1 颗粒物采集

根据区域污染源分布、污染物排放格局等,考虑成都平原大气环流及污染传输通道,设置5个为期1年(2013年8月~2014年7月)的长期监测点(包括德阳市广汉市、成都市金牛区西南交通大学、成都市武侯区人民南路、成都市双流县、眉山市彭山县,以下称广汉、交大、人南、双流、彭山),具体监测点位分布见图1.广汉位于成都平原常年主导风向上风向,为郊区监测点;西南交大、人民南路、双流监测点位于成都市城区;彭山位于主导风向下风向,属于郊区监测点.

采样器为武汉天虹 TH-16A 四通道大气颗粒物智能采样器,每个通道采样流量均为 16.7 L·min⁻¹,其中1个通道使用47 mm Teflon 膜采集 PM₁₀样品,2个通道使用47 mm Teflon 膜采集 PM_{2.5}样品,1个通道使用石英膜采集 PM_{2.5}样品.采样周期为每6 d 1次,并尽量多采集重污染期间样品,采样时间为24 h,5个监测点位共采样379 d,取得1 476个样品.滤膜在采样前后均放在恒温(20℃ ± 1℃)恒湿(40% ± 3%)的超净实验室内平衡24 h后,采用1/100 000天平(Mettler Toledo AX105 DR)称量.

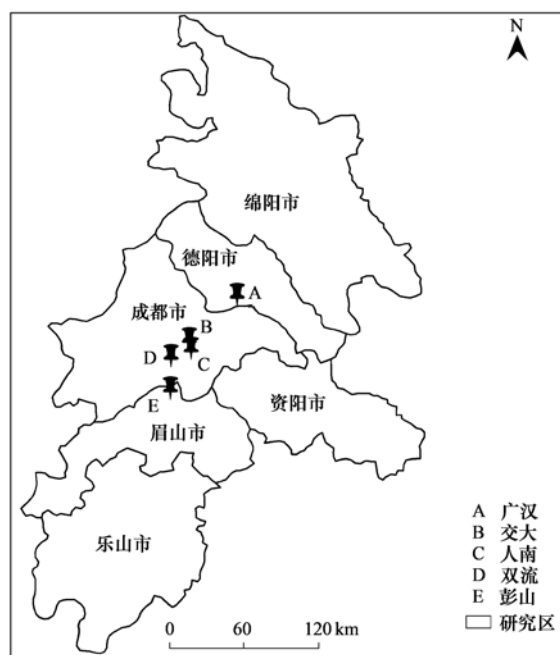


图1 成都平原采样点位分布示意

Fig. 1 Distribution of sampling sites in Chengdu Plain

1.2 离子分析

将膜样品正面朝下倒入烧杯底部,移取10 mL去离子水,超声萃取30 min.为防止超声过程中提取液温度升高和半挥发组分的挥发,提前在超声仪内放置冰块.然后用0.45 μm针孔过滤器过滤,使用Dionex ICS 2000型离子色谱仪分别测定样品中的阴离子(Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻)和阳离子(Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺).每测10个样品插入1个标准样品.样品分析过程中的质量保证与质量控制严格按照实验室监测技术规范执行.

1.3 气象数据分析

气象数据来源于网址: [http://www. weather. uwyo. edu/surface/meteorogram/](http://www.weather.uwyo.edu/surface/meteorogram/),收集了采样期间对应时间段内温度、湿度和风速的小时数据,并计算各季节的平均温度、湿度和风速.

2 结果与讨论

2.1 无机水溶性离子质量浓度水平

2.1.1 季节变化特征

观测期间,成都平原 $\rho(\text{PM}_{2.5-10})$ 和 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 分别为30.03 μg·m⁻³(5.62 ~ 126.28 μg·m⁻³)和79.30 μg·m⁻³(14.57 ~ 262.32), $\rho(\text{PM}_{2.5-10})$ 的季节变化为冬季(43.83 μg·m⁻³) > 春季(36.09 μg·m⁻³) > 秋季(26.50 μg·m⁻³) > 夏季(20.09

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 为冬季 ($122.61\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) > 秋季 ($68.42\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) > 春季 ($67.52\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) > 夏季 ($43.62\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). $\rho(\text{PM}_{2.5})/\rho(\text{PM}_{10})$ 冬季 ($0.74\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 最高, 秋 ($0.72\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、夏季 ($0.68\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 次之, 春季 ($0.65\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 最低, 原因是春季的风沙扬尘贡献了较多的粗颗粒物. $\text{PM}_{2.5-10}$ 和 $\text{PM}_{2.5}$ 中无机水溶性离子总量分别为 $11.35\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

($1.52\sim53.99\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 和 $36.93\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ($3.51\sim121.23\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), 分别占各自颗粒物的 37.8% 和 46.6%, 说明水溶性离子更易富集在 $\text{PM}_{2.5}$ 中. $\text{PM}_{2.5-10}$ 和 $\text{PM}_{2.5}$ 中 8 种水溶性离子质量浓度由高到低为 $\text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^- > \text{NH}_4^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{Cl}^- > \text{K}^+ > \text{Na}^+ > \text{Mg}^{2+}$ 和 $\text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^- > \text{NH}_4^+ > \text{Cl}^- > \text{K}^+ > \text{Na}^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+}$, 其季节变化见图 2、3.

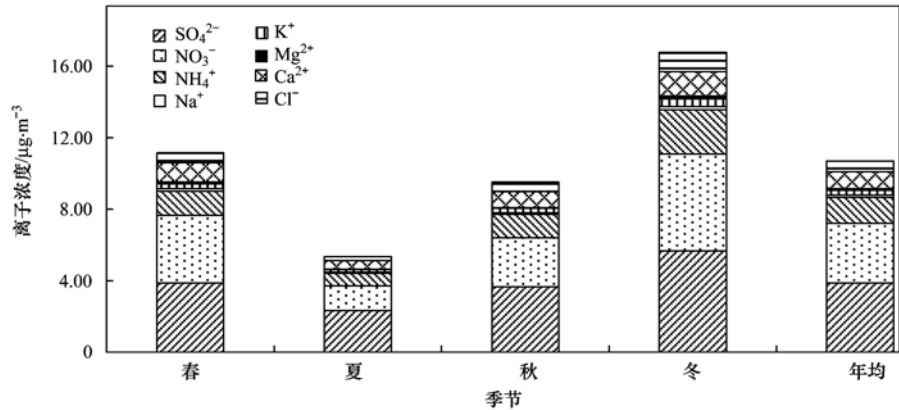


图 2 观测期间 $\text{PM}_{2.5-10}$ 中无机水溶性离子质量浓度的季节变化

Fig. 2 Seasonal variation of inorganic water-soluble ions in $\text{PM}_{2.5-10}$ during the observation period

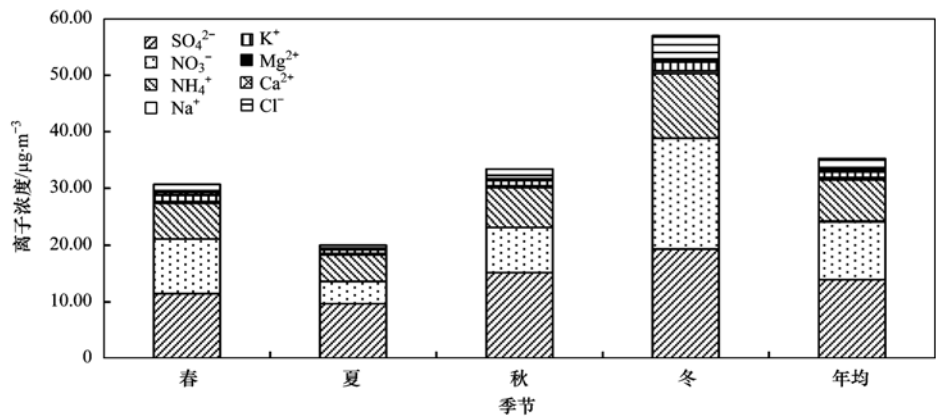


图 3 观测期间 $\text{PM}_{2.5}$ 中无机水溶性离子质量浓度的季节变化

Fig. 3 Seasonal variation of inorganic water-soluble ions in $\text{PM}_{2.5}$ during the observation period

水溶性离子及 SNA 的质量浓度冬季最高, 夏季最低. 夏季受西南季风的影响, 降雨较多, 有利于污染物的湿清除, 且风速较大, 污染物不易累积; 而冬季风速较小 ($1.1\ \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), 逆温出现频率高, 大气层结较稳定, 使得冬季质量浓度较高. 水溶性离子质量浓度占 $\rho(\text{PM}_{2.5-10})$ 和 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 的比例在秋冬季最高, 平均值分别为 39.4% 和 47.7%; 春季次之, 分别为 32.0% 和 45.6%; 夏季最低, 仅为 28.7% 和 45.5%. 其中, $\text{PM}_{2.5-10}$ 和 $\text{PM}_{2.5}$ 中 $\rho(\text{SNA})$ 约占各自水溶性离子质量浓度的 81.1%、89.9%. $\rho(\text{SO}_4^{2-})/\rho(\text{PM}_{2.5})$ 夏秋季较高 (均为 22.1%), 冬春季 (分别

为 15.7% 和 17.0%) 较低, 而 $\rho(\text{NO}_3^-)/\rho(\text{PM}_{2.5})$ 冬季 (16.0%) 最高, 夏季 (9.0%) 最低, $\rho(\text{NH}_4^+)/\rho(\text{PM}_{2.5})$ 各季节变化幅度较小 (10% 左右). $\text{PM}_{2.5-10}$ 中各水溶性离子占比的季节变化也有相似的规律. 这主要是由于夏秋季气温高 (25.4°C 、 19.1°C)、相对湿度大 (76.5%、75.8%), 有利于 SO_2 向 SO_4^{2-} 转化, 但高温不利于 NH_4NO_3 的稳定存在; 冬季低温 (8.4°C) 虽在一定程度上抑制了气态前体物的大气氧化过程, 但却有利于 NH_4NO_3 的稳定存在. 其余离子中, $\rho(\text{Cl}^-)$ 及 $\rho(\text{Cl}^-)/\rho(\text{PM}_{2.5})$ 季节变化较大, 表现为冬季最高, 夏季最低, 与冬季

煤炭消耗量增加有关.

2.1.2 无机水溶性离子质量浓度空间变化特征

各点位水溶性离子质量浓度见表1. 成都城区和彭山监测点的 $PM_{2.5-10}$ 和 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子质量浓度基本均高于广汉. $PM_{2.5-10}$ 中水溶性离子总量人南最高, $PM_{2.5}$ 中交大最高. ρ (水溶性离子)/

$\rho(PM_{2.5})$ 空间变化不明显, 为 44.8% ~ 48.2%, 反映了 $PM_{2.5}$ 的区域性复合污染特征. ρ (水溶性离子)/ $\rho(PM_{2.5-10})$ 的变化范围为 30.8% ~ 48.1%, 其中彭山最高, 双流最低. 彭山 $\rho(SNA)/\rho(PM_{2.5-10})$ (39.4%) 显著高于其他点位 (平均值为 28.8%), 说明了成都平原下风向郊区颗粒物老化严重.

表1 观测期间 $PM_{2.5-10}$ 和 $PM_{2.5}$ 中无机水溶性离子浓度空间变化/ $\mu g \cdot m^{-3}$

离子组分	$PM_{2.5-10}$					$PM_{2.5}$				
	广汉	交大	人南	双流	彭山	广汉	交大	人南	双流	彭山
SO_4^{2-}	2.72 ± 2.97	4.70 ± 3.70	5.07 ± 3.99	4.02 ± 3.10	3.70 ± 4.05	12.99 ± 9.42	17.95 ± 9.59	19.67 ± 8.43	17.56 ± 7.99	17.66 ± 9.46
NO_3^-	1.89 ± 2.05	4.17 ± 3.63	4.78 ± 4.37	3.60 ± 3.45	3.51 ± 3.82	8.80 ± 9.22	15.39 ± 10.22	15.17 ± 9.73	13.84 ± 8.82	14.45 ± 11.11
NH_4^+	0.98 ± 1.10	2.25 ± 2.36	2.24 ± 2.19	1.09 ± 0.91	1.53 ± 2.14	6.55 ± 4.65	10.41 ± 5.47	9.91 ± 4.21	7.55 ± 3.70	8.72 ± 4.94
Na^+	0.07 ± 0.06	0.19 ± 0.14	0.15 ± 0.10	0.16 ± 0.10	0.13 ± 0.10	0.27 ± 0.16	0.60 ± 0.27	0.45 ± 0.16	0.57 ± 0.20	0.45 ± 0.16
K^+	0.17 ± 0.20	0.40 ± 0.38	0.29 ± 0.26	0.29 ± 0.32	0.28 ± 0.37	1.02 ± 0.95	1.51 ± 0.82	1.14 ± 0.59	1.48 ± 0.76	1.44 ± 0.91
Mg^{2+}	0.08 ± 0.14	0.08 ± 0.07	0.14 ± 0.21	0.05 ± 0.06	0.10 ± 0.17	0.13 ± 0.17	0.11 ± 0.20	0.17 ± 0.10	0.08 ± 0.04	0.12 ± 0.10
Ca^{2+}	0.54 ± 0.46	1.45 ± 0.92	0.92 ± 0.60	1.30 ± 0.83	0.77 ± 0.56	0.24 ± 0.14	0.41 ± 0.19	0.35 ± 0.25	0.35 ± 0.25	0.33 ± 0.27
Cl^-	0.36 ± 0.40	0.98 ± 1.08	0.67 ± 0.64	0.71 ± 0.61	0.66 ± 0.55	1.50 ± 1.61	3.63 ± 2.59	2.27 ± 1.71	2.94 ± 2.06	2.69 ± 1.83
总和	6.82 ± 5.92	13.77 ± 10.59	14.25 ± 11.05	11.22 ± 8.25	10.69 ± 7.83	31.42 ± 21.22	41.17 ± 26.74	37.65 ± 22.65	35.29 ± 21.37	39.51 ± 26.11

2.1.3 同国内其他研究结果的比较

与国内其他研究结果相比 (表2) 表明, 成都平原 $PM_{2.5}$ 及水溶性离子的质量浓度远低于成都市区. $\rho(SO_4^{2-})$ 低于除上海和南京外的其他城市; $\rho(NO_3^-)$ 高于重庆、广州、武汉、上海、南京, 低于北方城市; $\rho(NH_4^+)$ 低于北京、保定和石家庄, 高于

上海、南京, 与国内其他城市相当; $\rho(Mg^{2+})$ 和 $\rho(Ca^{2+})$ 低于国内其他城市, $\rho(Cl^-)$ 处于国内城市中的较低水平, $\rho(K^+)$ 低于保定和石家庄, 与国内其他城市相当. 总体来说, 成都平原 $PM_{2.5}$ 及其中水溶性离子的污染程度低于北方城市, 与大部分南方城市相当.

表2 不同城市大气 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子质量浓度/ $\mu g \cdot m^{-3}$

Table 2 Concentrations of water-soluble ions in atmospheric $PM_{2.5}$ in different cities/ $\mu g \cdot m^{-3}$											
地区	时间	$PM_{2.5}$	SO_4^{2-}	NO_3^-	NH_4^+	Cl^-	Na^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	数据来源
成都平原	2013 年 8 月 ~ 2014 年 7 月	79.30	13.88	10.29	7.34	1.92	0.34	1.07	0.06	0.33	本研究
成都	2009 ~ 2010 年	165.1	32.8	19.7	10.4	5.0	—	3.4	—	—	[17]
北京	2012 ~ 2013 年	89.8	19.4	20.3	13.5	3.61	1.19	1.05	0.05	0.78	[8]
重庆	2010 ~ 2011 年	104	24.8	7.90	8.75	0.71	1.44	1.77	0.21	3.00	[19]
天津	2008 年	144.6	24.1	16.6	8.7	6.7	3.4	0.9	1.0	1.8	[20]
广州	2007 年	79.2	21.6	9.5	7.3	—	—	—	—	—	[21]
武汉	2012 年 9 月 ~ 2012 年 11 月	99.74	15.05	8.72	6.07	0.74	0.29	0.94	0.14	2.03	[22]
上海	2003 ~ 2005 年	94.6	10.39	6.32	3.78	3.00	0.57	0.63	0.28	1.25	[23]
保定	2010 ~ 2011 年	—	23.18	21.99	11.44	8.63	1.47	2.01	0.58	2.43	[24]
南京市区	2010 年 5 月	54.8	11.4	9.1	4.5	1.9	0.4	1.2	0.2	0.7	[9]
石家庄	2009 ~ 2010 年	—	35.1	29.8	9.2	8.6	0.7	3.4	0.3	2.7	[25]

2.2 无机水溶性离子在 $PM_{2.5-10}$ 和 $PM_{2.5}$ 中的分布特征

不同的水溶性离子通常具有不同的粒径分布规律, 成都平原大气颗粒物中水溶性离子的分布见表3. $\rho(SNA)$ 在 $PM_{2.5}$ 中的占比明显高于 $PM_{2.5-10}$, 这主要是由于气态污染物 (如 SO_2 、 NO_x 、 NH_3 等) 的二次转化生成的硫酸盐和硝酸盐等是大气细粒子的重要组成部分. 有研究表明^[26], 硫酸盐的粒径分布变化较小, 主要集中在 0.2 ~ 0.8 μm 范围内; 在污

染较重的城市, 硝酸盐主要以硝酸铵的形式存在于细粒子中, 在 0.65 μm 和 6.25 μm 的粒径出现明显的双峰; 氨在大气中主要与硫酸结合, 其粒径分布与硫酸盐相似. 粗粒子中 SO_4^{2-} 主要来源于工业源和燃煤飞灰中包含的 $CaSO_4$ 等^[27]; 粗粒子中 NO_3^- 可能是大气化学反应产物 HNO_3 与扬尘中 Ca^{2+} 等结合所致^[28]; NH_4^+ 可能是气态 SO_2 与 NH_3 在工业源和燃煤飞灰表面进行的非均相反应所致^[28].

$\rho(\text{Cl}^-)$ 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中的占比高于 $\text{PM}_{2.5\sim 10}$, 可能是工业源排放的 HCl 与 NH_3 经液相反应而形成液滴模态的 Cl^- [26]。 $\rho(\text{K}^+)$ 在 $\text{PM}_{2.5}$ 中的占比明显高于 $\text{PM}_{2.5\sim 10}$, 推测是生物质燃烧产物 K_2CO_3 同酸性气体一起参与液相反应形成了液滴模态 K^+ [26]。 $\rho(\text{Na}^+)$ 在 $\text{PM}_{2.5\sim 10}$ 中的占比略高于 $\text{PM}_{2.5}$ 。 Mg^{2+} 和 Ca^{2+} 主要存在于 $\text{PM}_{2.5\sim 10}$ 中, 来源包括土壤尘、道路及建筑扬尘等。 该研究结果与北京 [26] 类似。

表 3 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{PM}_{2.5\sim 10}$ 中水溶性离子所占比例¹⁾

Table 3 Proportions of water-soluble ions in $\text{PM}_{2.5}$ and $\text{PM}_{2.5\sim 10}$			
组分	A/%	B/%	A/B
SO_4^{2-}	18.2	13.3	1.4
NO_3^-	13.8	11.8	1.2
NH_4^+	9.7	5.3	1.8
Cl^-	2.7	2.2	1.2
K^+	1.4	0.9	1.6
Na^+	0.4	0.5	0.8
Ca^{2+}	0.4	3.3	0.1
Mg^{2+}	0.1	0.3	0.3

1) A、B 分别为 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{PM}_{2.5\sim 10}$ 中水溶性离子质量浓度的各自占比

2.3 离子平衡及 SNA 的形成机制

离子平衡计算 [29]:

$$A = [\text{Cl}^-] + [\text{NO}_3^-] + 2[\text{SO}_4^{2-}] \tag{1}$$

$$C = [\text{Na}^+] + [\text{NH}_4^+] + [\text{K}^+] + 2[\text{Mg}^{2+}] + 2[\text{Ca}^{2+}] \tag{2}$$

式中, A 为 $\text{PM}_{2.5}$ 中阴离子当量; C 为阳离子当量; A、C 及各离子的单位均为 $\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ 。

采样期间, 成都平原 $\text{PM}_{2.5}$ 中阴阳离子当量比值见表 4。 A/C 为冬季 > 秋季 > 春季 > 夏季。 秋冬季 $\rho(\text{SO}_4^{2-})$ 和 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 较高, NH_4^+ 等阳离子中和不足, 并且可能存在 H^+ 的影响, 因此秋冬季颗粒物呈弱酸性。 春季颗粒物基本呈中性, 而夏季颗粒物中阳离子当量高于阴离子, 可能原因是未测 F^- 。 杨懂艳 [8] 等的研究表明, $\rho(\text{F}^-)$ 大于 $\rho(\text{Mg}^{2+})$, 小于 $\rho(\text{Ca}^{2+})$, 且 CO_3^{2-} 和 HCO_3^- 等也有一定影响, NO_3^- 的挥发亦是一个重要原因。

各季节 $[\text{NH}_4^+]/C$ 均在 0.80 以上 (见表 4), 表明 NH_4^+ 是 $\text{PM}_{2.5}$ 中起主要中和作用的碱性离子。 $\rho(\text{NO}_3^-)/\rho(\text{SO}_4^{2-})$ 反映了移动源 (机动车) 和固定源 (燃煤) 对颗粒物的相对贡献, 若该比值较低 (< 1), 说明固定源为主; 若该比值 > 1 , 说明移动源为主 [30]。 成都平原 $\rho(\text{NO}_3^-)/\rho(\text{SO}_4^{2-})$ 冬季最高, 夏季最低, 年均值为 0.74, 稍高于李友平等 [18] 对 2009~2010 年成都城区的研究结果 (0.61), 高于长沙

(0.31) [31]、广州 (0.27) [32] 和香港 (0.16) [33], 与北京 (0.72) [34] 相当。 揭示固定源依然是 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要来源, 但冬季移动源对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献较突出。

表 4 $\text{PM}_{2.5}$ 中阴、阳离子的当量比以及二次离子的比值分析

Table 4 Equivalent ratio of anions and cations and the ratio of secondary ions in $\text{PM}_{2.5}$					
项目	春季	夏季	秋季	冬季	年均值
A/C	1.00	0.89	1.05	1.09	1.01
$[\text{NH}_4^+]/C$	0.82	0.84	0.87	0.88	0.85
$\rho(\text{NO}_3^-)/\rho(\text{SO}_4^{2-})$	0.84	0.41	0.53	1.01	0.74

SOR 和 NOR 分别定义为 $c(\text{SO}_4^{2-})/[c(\text{SO}_4^{2-}) + c(\text{SO}_2)]$ 和 $c(\text{NO}_3^-)/[c(\text{NO}_3^-) + c(\text{NO}_2)]$ (c 的单位为 $\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$), 其大小通常用来表示二次污染物的形成、转化过程 [35]。 SOR 和 NOR 的值越高, 大气中 SO_2 和 NO_x 生成的二次离子越多 [36]。 成都平原 SOR 和 NOR 的季节变化如图 4 所示。 SOR 和 NOR 年均值分别为 0.31 和 0.13, SOR 高于重庆 (0.26) [19]、天津 (0.20) [20], 低于成都城区 (0.33) [23] 和南京冬季 (0.57) [30], NOR 高于重庆 (0.12) [10], 低于天津 (0.15) [11]、成都城区 (0.19) [18] 和南京冬季 (0.18) [11]。 早期研究指出 [37], 当 SOR 大于 0.10 时, 大气中存在 SO_2 的光化学氧化, 说明本研究中硫酸盐和硝酸盐很大程度上是经过二次转化而来, 并且 SO_2 较 NO_2 更易发生二次转化。 SOR 夏季最高 (0.33), 春季 (0.25) 最低, 表明夏季的高温高湿 (25.4℃、76.5%) 利于发生化学反应; NOR 冬季最高 (0.19), 夏季 (0.07) 最低, 原因是硝酸盐在低温的环境下更易稳定存在。 SOR 与 NOR 变化趋势相反, 即二者为竞争型, 与海西城市群 [38] 相似。 究其原因, 是实际大气中 NH_4^+ 浓度是一定的, SO_4^{2-} 和 NO_3^- 竞争性地与 NH_4^+ 结合, 从而形成竞争型 SOR 和 NOR。

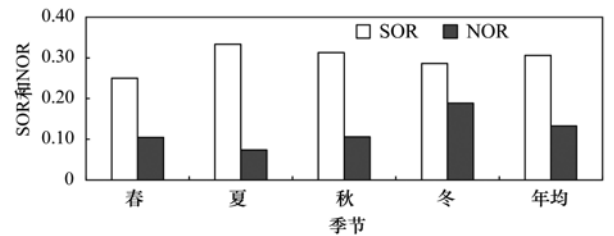


图 4 SOR 和 NOR 的季节变化

Fig. 4 Seasonal variation of SOR and NOR

2.4 $\text{PM}_{2.5}$ 中水溶性离子的相关性分析

如图 5 所示, $\text{PM}_{2.5}$ 中阴阳离子当量的相关性好 ($R^2 = 0.94$), 且多数样品中阴离子当量稍过剩。 各

水溶性离子之间的相关性能反映其来源的相似程度和离子的存在形式,其相关系数见表 5. SNA 各离子质量浓度间的相关性较好,而一次离子间(除 SNA 以外的其他离子)及一次离子与 SNA 的相关性较差,说明不同类别离子的来源和迁移转化过程存在差异. $\rho(\text{NH}_4^+)$ 与 $\rho(\text{SO}_4^{2-})$ 和 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 的相关性好,故硫酸铵和硝酸铵是 SNA 的主要存在形式. 多余的 NO_3^- 也可与 Na^+ 、 K^+ 结合. $\rho(\text{Cl}^-)$ 与 $\rho(\text{Na}^+)$ 、 $\rho(\text{K}^+)$ 、 $\rho(\text{SO}_4^{2-})$ 、 $\rho(\text{NO}_3^-)$ 的相关性较好,此外, Cl^- 还可与 NH_4^+ 结合,说明成都平原大气中 Cl^- 主要来源于生物质燃烧、燃煤及垃圾焚烧等. 根据相关系数判定, $\text{PM}_{2.5}$ 中的水溶性离子主要

存在形式包括 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4NO_3 、 KNO_3 、 NaCl 、 KCl 、 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 、 CaCl_2 、 MgCl_2 等.

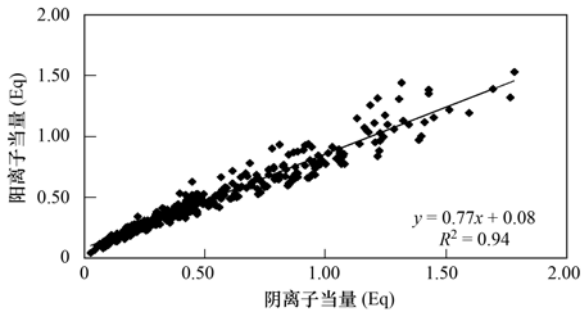


图 5 阴阳离子当量的相关性分析
Fig. 5 Correlation of anions and cations equivalent

表 5 $\text{PM}_{2.5}$ 及水溶性离子质量浓度的皮尔逊相关系数¹⁾

	$\rho(\text{PM}_{2.5})$	$\rho(\text{Na}^+)$	$\rho(\text{K}^+)$	$\rho(\text{Mg}^{2+})$	$\rho(\text{Ca}^{2+})$	$\rho(\text{Cl}^-)$	$\rho(\text{SO}_4^{2-})$	$\rho(\text{NO}_3^-)$	$\rho(\text{NH}_4^+)$
$\rho(\text{PM}_{2.5})$	1.000								
$\rho(\text{Na}^+)$	0.788 **	1.000							
$\rho(\text{K}^+)$	0.719 **	0.687 **	1.000						
$\rho(\text{Mg}^{2+})$	0.250 **	0.194 **	0.182 **	1.000					
$\rho(\text{Ca}^{2+})$	0.453 **	0.585 **	0.400 **	0.113 *	1.000				
$\rho(\text{Cl}^-)$	0.820 **	0.806 **	0.609 **	0.215 **	0.375 **	1.000			
$\rho(\text{SO}_4^{2-})$	0.827 **	0.578 **	0.574 **	0.144 **	0.308 **	0.531 **	1.000		
$\rho(\text{NO}_3^-)$	0.906 **	0.731 **	0.571 **	0.243 **	0.381 **	0.786 **	0.749 **	1.000	
$\rho(\text{NH}_4^+)$	0.926 **	0.711 **	0.585 **	0.281 **	0.327 **	0.758 **	0.882 **	0.921 **	1.000

1) * * 表示在 0.01 水平上显著相关(双侧); * 表示在 0.05 水平上显著相关; $n = 364$

2.5 不同空气质量级别下离子组分特征

根据《环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)》(HJ 633-2012)^[39],按 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 将环境空气质量分为优($< 35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、良($35 \sim 75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、轻度污染($75 \sim 115 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、中度污染($115 \sim 150 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)和重度污染($150 \sim 250 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)5个级别,比较水溶性离子的变化趋势,如图 6. 随着 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 增加,各离子的质量浓度均上升. 其中 SNA 浓度增长最为明显,尤其是 NO_3^- ,当发生重度污染时, $\rho(\text{NO}_3^-)$ 与 $\rho(\text{SO}_4^{2-})$ 相当,而 $\rho(\text{Cl}^-)$ 和 $\rho(\text{K}^+)$ 增长缓慢,故 SNA 是造成 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 增加的主导因素.

比较不同空气质量级别下,各离子对 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献百分比(见图 7),可发现 $\rho(\text{NO}_3^-)/\rho(\text{PM}_{2.5})$ 大幅增加,从 9.5% 到 17.9%,增长率为 90%. $\rho(\text{Cl}^-)/\rho(\text{PM}_{2.5})$ 由 2.0% 增加到 2.8%,增长率为 39%. 此结果与重污染主要发生在低温的冬季相符,冬季硝酸盐稳定性较好;且该季节火电燃煤增加, Cl^- 在不利的气象条件下逐渐累积. $\rho(\text{SO}_4^{2-})/\rho(\text{PM}_{2.5})$ 和 $\rho(\text{NH}_4^+)/\rho(\text{PM}_{2.5})$ 略有下降, $\rho(\text{K}^+)/\rho(\text{PM}_{2.5})$ 变化不大.

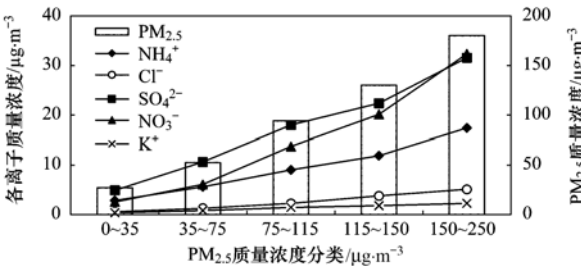


图 6 不同空气质量级别 $\text{PM}_{2.5}$ 中各离子浓度变化
Fig. 6 Variation of ions concentration in $\text{PM}_{2.5}$ at different air quality level

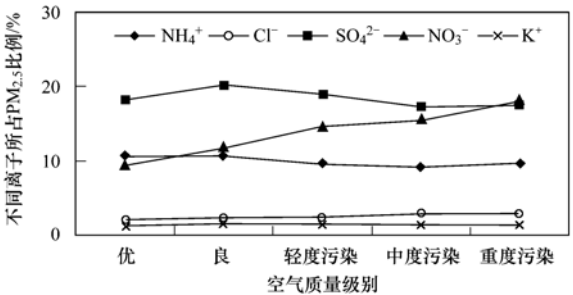


图 7 不同空气质量级别各离子所占 $\text{PM}_{2.5}$ 比例

Fig. 7 Proportions of the ions in $\text{PM}_{2.5}$ at different air quality level

3 结论

(1) 观测期间, 成都平原 $PM_{2.5 \sim 10}$ 和 $PM_{2.5}$ 中无机水溶性离子总量分别为 $11.35 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $36.93 \mu g \cdot m^{-3}$, 占颗粒物质量浓度的 37.8% 和 46.6%, 其中 $\rho(SNA)$ 约占各自水溶性离子的 81.1%、89.9%, 二次污染严重。水溶性离子质量浓度冬季最高, 春秋相当, 夏季最低。 $\rho(SO_4^{2-})/\rho(PM_{2.5})$ 夏秋季较高, 冬春季较低, 而 $\rho(NO_3^-)/\rho(PM_{2.5})$ 冬季最高, 夏季最低, $\rho(NH_4^+)/\rho(PM_{2.5})$ 各季变幅均较小。 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子总量占比空间变化不明显, 反映了 $PM_{2.5}$ 的区域性复合污染特征。

(2) SNA 、 Cl^- 、 K^+ 大多分布在 $PM_{2.5}$ 中, 主要来源于气态污染物的二次转化、燃煤及生物质燃烧。 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 主要分布在 $PM_{2.5 \sim 10}$ 中, 来源包括土壤尘、道路及建筑扬尘等。

(3) 成都平原 SOR 和 NOR 年均值分别为 0.31 和 0.13, SO_2 较 NO_2 更易发生二次转化。 SOR 夏季最高, NOR 冬季最高, SOR 和 NOR 为竞争型关系。 $\rho(NO_3^-)/\rho(SO_4^{2-})$ 揭示固定源依然是 $PM_{2.5}$ 的主要来源。

(4) SNA 是造成 $\rho(PM_{2.5})$ 增加的主导因素。随着污染程度的加重, $\rho(NO_3^-)/\rho(PM_{2.5})$ 增长率达 90%。

参考文献:

- [1] 张彩艳, 吴建会, 张普, 等. 成都市冬季大气颗粒物组成特征及来源变化趋势[J]. 环境科学研究, 2014, **27**(7): 782-789.
- [2] Laden F, Neas L M, Dockery D W, *et al.* Association of fine particulate matter from different sources with daily mortality in six U. S. cities[J]. Environmental Health Perspectives, 2000, **108**(10): 941-947.
- [3] Watson J G. Visibility: science and regulation[J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2002, **52**(6): 628-713.
- [4] Ramanathan V, Crutzen P J, Lelieveld J, *et al.* Indian ocean experiment: an integrated analysis of the climate forcing and effects of the great Indo-Asian haze[J]. Journal of Geophysical Research, 2001, **106**(D22): 28371-28398.
- [5] 曹军骥. $PM_{2.5}$ 与环境[M]. 北京: 科学出版社, 2014. 81.
- [6] 赵亚南, 王跃思, 温天雪, 等. 长白山 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子季节变化特征研究[J]. 环境科学, 2014, **35**(1): 9-14.
- [7] 徐宏辉, 王跃思, 温天雪, 等. 北京大气气溶胶中水溶性离子的粒径分布和垂直分布[J]. 环境科学, 2007, **28**(1): 14-19.
- [8] 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.
- [9] 薛国强, 朱彬, 王红磊. 南京市大气颗粒物中水溶性离子的粒径分布和来源解析[J]. 环境科学, 2014, **35**(5): 1633-1643.
- [10] 邹嘉南, 安俊琳, 王红磊, 等. 亚青会期间南京污染气体与气溶胶中水溶性离子的分布特征[J]. 环境科学, 2014, **35**(11): 4044-4051.
- [11] 周瑶瑶, 马嫣, 郑军, 等. 南京北郊冬季霾天 $PM_{2.5}$ 水溶性离子的污染特征与消光作用研究[J]. 环境科学, 2015, **36**(6): 1926-1934.
- [12] 陶俊, 张仁健, 董林, 等. 夏季广州城区细颗粒物 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{1.0}$ 中水溶性无机离子特征[J]. 环境科学, 2010, **31**(7): 1417-1424.
- [13] Tan J H, Duan J C, He K B, *et al.* Chemical characteristics of $PM_{2.5}$ during a typical haze episode in Guangzhou[J]. Journal of Environmental Sciences, 2009, **21**(6): 774-781.
- [14] 苏彬彬, 张智胜, 陶俊, 等. 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[J]. 环境科学, 2015, **36**(4): 1195-1201.
- [15] 赵亚南, 王跃思, 温天雪, 等. 鼎湖山 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子浓度特征分析[J]. 环境科学, 2013, **34**(4): 1232-1235.
- [16] 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.
- [17] 张智胜, 陶俊, 谢绍东, 等. 成都城区 $PM_{2.5}$ 季节污染特征及来源解析[J]. 环境科学学报, 2013, **33**(11): 2947-2952.
- [18] 李友平, 周洪, 张智胜, 等. 成都市城区 $PM_{2.5}$ 中二次水溶性无机离子污染特征[J]. 环境科学, 2014, **35**(12): 4439-4445.
- [19] 张丹, 翟崇治, 周志恩, 等. 重庆市主城区不同粒径颗粒物水溶性无机组分特征[J]. 环境科学研究, 2012, **25**(10): 1099-1106.
- [20] Gu J X, Bai Z P, Li W F, *et al.* Chemical composition of $PM_{2.5}$ during winter in Tianjin, China[J]. Particulate, 2011, **9**(3): 215-221.
- [21] 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]. Particulate, 2009, **7**(1): 68-75.
- [22] 张帆, 成海容, 王祖武, 等. 武汉秋季灰霾和非灰霾天气细颗粒物 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子的特征[J]. 中国粉体技术, 2013, **19**(5): 31-33.
- [23] 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.
- [24] 王丽, 温天雪, 苗红研, 等. 保定大气颗粒物中水溶性无机离子质量浓度及粒径分布[J]. 环境科学研究, 2013, **26**(5): 516-521.
- [25] 赵普生, 张小玲, 孟伟, 等. 京津冀区域气溶胶中无机水溶性离子污染特征分析[J]. 环境科学, 2011, **32**(6): 1546-1549.
- [26] 贺克斌, 杨复沫, 段凤魁, 等. 大气颗粒物与区域复合污染[M]. 北京: 科学出版社, 2011. 300-303.
- [27] 齐立强, 原永涛, 纪元勋. 燃煤飞灰化学成分随粒度分布规

- 律的试验研究[J]. 煤炭转化, 2003, **26**(2): 87-90.
- [28] 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.
- [29] Hazi Y, Heikkinen M S A, Cohen B S. Size distribution of acidic sulfate ions in fine ambient particulate matter and assessment of source region effect [J]. Atmospheric Environment, 2003, **37**(38): 5403-5413.
- [30] Yao X H, Chan C K, Fang M, *et al.* The water-soluble ionic composition of PM_{2.5} in Shanghai and Beijing, China [J]. Atmospheric Environment, 2002, **36**(26): 4223-4234.
- [31] 李彩霞, 李彩亭, 曾光明, 等. 长沙市夏季 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 中水溶性离子的污染特征[J]. 中国环境科学, 2007, **27**(5): 599-603.
- [32] Hagler G S W, Bergin M H, Salmon L G, *et al.* Source areas and chemical composition of fine particulate matter in the Pearl River Delta region of China [J]. Atmospheric Environment, 2006, **40**(20): 3802-3815.
- [33] Louie P K K, Watson J G, Chow J C, *et al.* Seasonal characteristics and regional transport of PM_{2.5} in Hong Kong[J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(9): 1695-1710.
- [34] Wang Y, Zhuang G S, Tang A H, *et al.* The ion chemistry and the source of PM_{2.5} aerosol in Beijing [J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(21): 3771-3784.
- [35] Lai S C, Zou S C, Cao J J, *et al.* Characterizing ionic species in PM_{2.5} and PM₁₀ in four Pearl River Delta cities, South China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2007, **19**(8): 939-947.
- [36] Kang C M, Lee H S, Kang B W, *et al.* Chemical characteristics of acidic gas pollutants and PM_{2.5} species during hazy episodes in Seoul, South Korea [J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(28): 4749-4760.
- [37] Ohta S, Okita T. A chemical characterization of atmospheric aerosol in Sapporo [J]. Atmospheric Environment. Part A. General Topics, 1990, **24**(4): 815-822.
- [38] 陈晓秋, 陈进生, 吴水平, 等. 海峡西岸城市群大气复合污染成因与调控机制[M]. 北京: 科学出版社, 2014. 64-65.
- [39] HJ 633-2012, 环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)[S].

CONTENTS

Spatiotemporal Distribution and Source Attribution of SOA in China	CHEN Zhuo, LIU Jun-feng, TAO Wei, <i>et al.</i> (2815)
Emission Inventory of Heavy Metals in Fine Particles Emitted from Residential Coal Burning in China	LIU Hai-biao, KONG Shao-fei, WANG Wei, <i>et al.</i> (2823)
Diurnal Variation of PM _{2.5} Mass Concentration in Beijing and Influence of Meteorological Factors Based on Long Term Date	MIAO Lei, LIAO Xiao-nong, WANG Ying-chun (2836)
Characteristics of Ozone Background Concentration in Beijing from 2004 to 2015	CHENG Nian-liang, LI Yun-ting, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i> (2847)
Online Sources about Atmospheric Fine Particles During the 70th Anniversary of Victory Parade in Shijiazhuang	ZHOU Jing-bo, LI Zhi-guo, LU Na, <i>et al.</i> (2855)
Pollution Characteristics of Inorganic Water-soluble Ions in Atmospheric Particulate Matter in Chengdu Plain	JIANG Yan, HE Guang-yan, LUO Bin, <i>et al.</i> (2863)
Observation Analysis on the Characteristics of Meteorological Elements and Pollutants During a Continuous Fog and Haze Episode in Spring in Jiaying City	SHEN Li-juan, WANG Hong-lei, LI Li, <i>et al.</i> (2871)
Characteristics and Source Apportionment of Metals in the Dustfall of Quanzhou City	ZHANG Zong-wei, HU Gong-ren, YU Rui-lian, <i>et al.</i> (2881)
Level and the Courses of Heavy Metals and Its Risk Assessment in Indoor Dust of City: Take Guiyang as a Case	LI Xiao-yan, WANG Lang, ZHANG Shu-ting (2889)
Chemical Characteristics and Source of Acid Precipitation in Guilin	GUO Ya-si, YU Shi, LI Yong-shan, <i>et al.</i> (2897)
Assessment of Gaseous Nitrogen (NH ₃ and N ₂ O) Mitigation After the Application of a Range of New Nitrogen Fertilizers in Summer Maize Cultivation	FAN Hui, JIANG Shan-shan, WEI Ying, <i>et al.</i> (2906)
Soil CO ₂ , CH ₄ and N ₂ O Fluxes from Alpine Meadows on the Plateau of Southern Qinghai Province During Snow Cover Period and Growing Seasons	WU Jian-guo, ZHOU Qiao-fu (2914)
Partial Pressure of Carbon Dioxide and Methane from Autumn to Winter in Xiangxi Bay of the Three Gorges Reservoir	ZHANG Jun-wei, LEI Dan, XIAO Shang-bin, <i>et al.</i> (2924)
Potential Impacts of Climate Change on Phosphorus and DO in Yuqiao Reservoir	ZHANG Chen, LIU Han-an, GAO Xue-ping, <i>et al.</i> (2932)
Land Use Structure Change and Its Control Effect of Nitrogen Output in a Small Watershed of Three Gorges Reservoir Area: A Case Study of Lanlingxi Watershed	WU Dong, HUANG Zhi-lin, XIAO Wen-fa, <i>et al.</i> (2940)
Response of Inflow Water Quality to Land Use Pattern in Northern Watershed of Lake Erhai	XIANG Song, PANG Yan, CHU Zhao-sheng, <i>et al.</i> (2947)
Effect of Nutrient Cycles in Tributaries on the Transport of Nutrient in the Three Gorge Reservoirs: A Case Study of Caotang River	WANG Xiao-tong, LUO Guang-fu, CAO Man, <i>et al.</i> (2957)
Transient Storage Characteristics of Artificial Pool Geomorphic Structure in an Agricultural Headwater Stream	LI Ru-zhong, HUANG Qing-fei, QIAN Jing, <i>et al.</i> (2964)
Distribution Characteristics of Solute Nitrogen in the Water-Sediment of Farmland Drainage Ditch	LI Qiang-kun, HU Ya-wei, SONG Chang-ji, <i>et al.</i> (2973)
Characteristics and Influencing Factors of Soil Microbial Biomass Carbon and Nitrogen in Drawdown Area in the Three Gorges Reservoir	CHAI Xue-si, LEI Li-guo, JIANG Chang-sheng, <i>et al.</i> (2979)
Response Behaviors of Heavy Metals at Tidal Currents Interface and Salinity Interface in the Estuary Area	LIU Jing, ZHENG Bing-hui, LIU Lu-san, <i>et al.</i> (2989)
Simulation of Multimedia Transfer and Fate of Perfluorooctane Sulfonate (PFOS) in Shenzhen Region	CUI Xiao-yu, ZHANG Hong, LUO Ji, <i>et al.</i> (3001)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Surface Sediments of Zhelin Bay in Guangdong Province, China	WEI Ya-ning, PAN Jia-chuan, SONG Yu-mei, <i>et al.</i> (3007)
Spatial Distribution Characteristics and Source Analysis of Dissolved Organic Matter in Beiyun River	CHEN Yong-juan, HU Wei-xuan, PANG Shu-jiang, <i>et al.</i> (3017)
Distribution and Environmental Significances of Radionuclides in the Sediment of the Changyi Coastal Wetland	WANG Qi-dong, SONG Jin-ning, LI Xue-gang, <i>et al.</i> (3026)
Fecal Contamination in Laolongdong Underground River as Measured by the Sterol Biomarkers	LIAO Yu, SUN Yu-chuan, WANG Zun-bo, <i>et al.</i> (3034)
Distribution Characteristics and Pollution Status of Phthalate Esters in the Groundwater of Hutuo River Pluvial Fan	CHANG Sheng, ZHAO Xing-ru, LIU Yan, <i>et al.</i> (3041)
Impacts of Land Use on the Source of Dissolved Fatty Acids in Epikarst Spring During Rainy Season	ZHANG Mei, SUN Yu-chuan, XIE Zheng-lan, <i>et al.</i> (3049)
Mechanisms of Phosphorus Removal by Modified Zeolites Substrates Coated with Zn-LDHs in Laboratory-scale Vertical-flow Constructed Wetlands	ZHANG Xiang-ling, HUANG Hua-ling, GUO Lu, <i>et al.</i> (3058)
Synergistic Enhancement on Oxidation of Phenol by Fenton Processes by Adding Ce ³⁺ and Cu ²⁺ Ions	ZHANG Jian-qiao, CHI Hui-zhong, SONG Yang, <i>et al.</i> (3067)
Removal of Humic Acid from Water Using Pt/biochar Electrode Reactor	DING Wen-chuan, XIANG Xing-guang, ZENG Xiao-lan, <i>et al.</i> (3073)
Generation of Graphene-titanium Dioxide Nanotubes Catalytic Board and Its Photocatalysis Capability to Degrade Pentachlorophenol	XU Qi, ZHOU Ze-yu, WANG Hong-tao (3079)
Photocatalytic Degradation Kinetics and Mechanism of Monoazo Dye Acid Yellow 17 by UV/TiO ₂ in Aqueous Solution	YANG Hai, WEI Hong-qin, HU Le-tian, <i>et al.</i> (3086)
Feasibility of Sulfur-based Autotrophic Denitrification of Photovoltaic Wastewater Containing High Fluorine	MA Hang, ZHU Qiang, ZHU Liang, <i>et al.</i> (3094)
Operation Performance of a Bioaugmented Membrane-aerated Biofilm Reactor Treating Atrazine Wastewater	LIU Chun, YU Chang-fu, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (3101)
Nitrogen Removal of Municipal Wastewater by ANAMMOX Coupled Shortcut Nitrification in Anaerobic Baffled Reactor	WU Peng, ZHANG Shi-ying, SONG Yin-ling, <i>et al.</i> (3108)
Simultaneous Ferric Reduction with Ammonia Oxidation Phenomena in Activated Sludge in Anaerobic Environment	LI Xiang, LIN Xing, YANG Peng-bing, <i>et al.</i> (3114)
Rapid Start-up of One-stage Autotrophic Nitrogen Removal Process in EGSB Reactor for Wastewater with Low Concentration of Ammonia	GU Shu-jun, FANG Fang, LI Kai, <i>et al.</i> (3120)
Phosphorus Removal Performance in EBPR System under Extra-low Dissolved Oxygen Condition	MA Juan, SONG Lu, YU Xiao-jun, <i>et al.</i> (3128)
Influence of Activated Sludge Surface Properties on Flocculating Settling and Effluent Suspend Solid	HE Zhi-jiang, ZHAO Yuan, ZHANG Yuan-kai, <i>et al.</i> (3135)
Spatial Characteristics and Environmental Risk of Heavy Metals in Typical Gold Mining Area of Shandong Province	WANG Fei, WU Quan-yuan, LÜ Jian-shu, <i>et al.</i> (3144)
Spatial Variation of Soil Heavy Metals in an E-waste Dismantling Area and Their Distribution Characteristics	ZHAO Ke-li, FU Wei-jun, YE Zheng-qian, <i>et al.</i> (3151)
Selenate Adsorption and Desorption in 18 Kinds of Chinese Soil with Their Physicochemical Properties	FENG Pu-yang, LI Zhe, ZHE Yu-yun, <i>et al.</i> (3160)
Adsorption Characteristics of Arsenite on Goethite by Flow Stirring Method	LI Xin, YANG Jun, RAO Wei, <i>et al.</i> (3169)
Preparation of Poly-hydroxy-aluminum Pillared Diatomite and Characteristics of Cu ²⁺ , Zn ²⁺ Adsorption on the Pillar in Aqueous Solutions	ZHU Jian, LEI Ming-jing, WANG Ping, <i>et al.</i> (3177)
Preparation and NH ₄ ⁺ -N Removal Performance of a Novel Filter Substrate Made from Sludges	WANG Wen-dong, LIU Hui, ZHANG Yin-ting, <i>et al.</i> (3186)
Preparation of Nanocomposite Hydrogel and Its Adsorption of Heavy Metal Ions	ZHU Qian, LI Zheng-kui, ZHANG Yi-pin, <i>et al.</i> (3192)
Prediction of PAHs Bioavailability in Spiked Soil by Composite Extraction with Hydroxypropyl-β-cyclodextrin and Rhamnolipid	ZHANG Ya-nan, YANG Xing-lun, BIAN Yong-rong, <i>et al.</i> (3201)
Biological Effects of ZnO Nanoparticles as Influenced by Arbuscular Mycorrhizal Inoculation and Phosphorus Fertilization	JING Xin-xin, SU Zhi-zhong, XING Hong-en, <i>et al.</i> (3208)
Difference of Species Sensitivities for Aquatic Life Criteria in China and the USA	WANG Xiao-nan, YAN Zhen-guang, YU Ruo-zhen, <i>et al.</i> (3216)
Effects of Low-level Nutrition and Trace Antibiotics on the Fitness Cost of Plasmids Bearing Antibiotic Resistance	LIN Wen-fang, CHEN Sheng, WAN Kun, <i>et al.</i> (3224)
Effect of Different Nitrogen Rates on the Nitrification Potential and Abundance of Ammonia-oxidizer in Intercropping Maize Soils	LÜ Yu, ZHOU Long, LONG Guang-qiang, <i>et al.</i> (3229)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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
赵进才 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)

2016年8月15日 第37卷 第8期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 8 Aug. 15, 2016

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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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	中国国际图书贸易集团有限公司 (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