

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第4期

Vol.38 No.4

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

西宁近郊大气氮干湿沉降研究	许稳, 金鑫, 罗少辉, 冯兆忠, 张霖, 潘月鹏, 刘学军 (1279)
兰州春夏季 PM ₁₀ 碳组分昼夜变化特征与来源分析	马丽, 余晔, 王博, 赵素平, 李刚 (1289)
海南三亚大气颗粒物中水溶性无机离子浓度及其粒径分布特征	王璐, 刘子锐, 温天雪, 苗红妍, 王跃思 (1298)
2015年北京城区大气 PM _{2.5} 中 NH ₄ ⁺ 、NO ₃ ⁻ 、SO ₄ ²⁻ 及前体气体的污染特征	丁萌萌, 周健楠, 刘保献, 王焱, 张博韬, 石爱军, 杨懂艳, 常森 (1307)
北京市某垃圾焚烧厂周边大气二噁英污染特征及暴露风险	齐丽, 任玥, 刘爱民, 黄业茹, 赵震, 王江, 李泓 (1317)
北京和保定地区大气细颗粒物中可培养细菌的种群特征	胡亚东, 马安周, 吕鹏翼, 张杨, 庄国强 (1327)
基于实时交通数据的南京市主次干道机动车排放特征分析	李笑语, 吴琳, 邹超, 张意, 毛洪钧, 荆博宇 (1340)
过渡金属掺杂对铜锡烧绿石催化碳烟燃烧性能的影响	李曦峰, 孙宇琦, 王仲鹏, 牟宗刚, 崔兆杰 (1348)
南水北调中线北京段水质状况分析	徐华山, 赵磊, 孙昊苏, 任玉芬, 丁涛, 常帅, 王海东, 李森, 果钊 (1357)
三峡前置库汉丰湖试运行年水文水质变化特征	杨兵, 何丙辉, 王德宝 (1366)
基于偏最小二乘模型的河流水质对土地利用的响应	李琳琳, 张依章, 唐常源, 郑磊, 孟伟, 卢少勇, 敦宇 (1376)
抚仙湖夏季热分层时期水温及水质分布特征	王琳杰, 余辉, 牛勇, 牛远, 张有林, 刘倩, 吉正元 (1384)
千岛湖溶解氧与浮游植物垂向分层特征及其影响因素	俞焰, 刘德富, 杨正健, 张佳磊, 徐雅倩, 刘晋高, 严广寒 (1393)
高通量测序技术研究辽河真核浮游藻类的群落结构特征	王靖淇, 王书平, 张远, 林佳宁, 高欣, 臧小苗, 赵茜 (1403)
三门湾近海有机污染对浮游细菌群落的影响	戴文芳, 郭永豪, 郁维娜, 熊金波 (1414)
沉积物-水界面氮的源解析和硝化反硝化	金赞芳, 龚嘉临, 施伊丽, 金漫彤, 李非里 (1423)
广州南沙红树林湿地水体和沉积物中有机氯农药的残留特征	丁洋, 黄焕芳, 李绘, 罗杰, 郑煌, 孙焰, 杨丹, 张原, 祁士华 (1431)
太湖西岸河网沉积物中重金属污染特征及风险评价	边博, 周燕, 张琴 (1442)
锁磷剂对杭州西湖底泥磷释放的控制效果	朱广伟, 李静, 朱梦圆, 龚志军, 许海, 杨桂军, 张运林, 秦伯强 (1451)
超滤处理东江水不可逆膜污染物的识别和活性炭对其吸附去除	杨海燕, 王灿, 鄢忠森, 李冬平, 赵焱, 瞿芳术, 梁恒, 徐叶琴, 李圭白 (1460)
UV/SPS 降解水中三氯生的效能及动力学	李青松, 李学艳, 姚宁波, 骆靖宇, 李国新, 陈国元, 高乃云 (1467)
真空紫外-亚硫酸盐法降解 PFOS 影响因素	韩慧丽, 王宏杰, 董文艺 (1477)
g-C ₃ N ₄ 协同光催化还原 Cr(VI) 及氧化磺基水杨酸	李莉莉, 陈翠柏, 兰华春, 刘菲, 安晓强 (1483)
锆改性硅藻土吸附水中磷的研究	范艺, 王哲, 赵连勤, 吴德意 (1490)
3 种常规消毒方法对磺胺类抗性基因削减效果的比较	郑吉, 周振超, 陈芳, 陈涛, 魏媛媛, 韩玥, 陈红 (1497)
典型生活污水处理工艺对雌激素效应的去除	张秋亚, 马晓妍, 王晓昌, 游猛 (1506)
SRT 对酵母-SBR 处理油脂废水稳定性的影响	吕文洲, 张树林, 乔宇祥, 刘英 (1513)
分散染料 neocron black (NB) 的生物降解特性	杨波, 丁凤友, 徐辉, 李方, 田晴, 马春燕 (1520)
多聚磷酸盐激酶基因在污水生物除磷中的功能	南亚萍, 周国标, 袁林江 (1529)
生物膜短程硝化系统的恢复及其转化为 CANON 工艺的过程	付昆明, 周厚田, 苏雪莹, 王会芳 (1536)
厌氧氨氧化反应器脱氮性能及细菌群落多样性分析	曹雁, 王桐屿, 秦玉洁, 韩彬, 任君怡 (1544)
内环境调节层对厌氧生物反应器填埋场中氮转化的影响	何正坤, 宋博宇, 朱南文, 董军 (1551)
矿化垃圾中 Fe(III) 还原耦合 CH ₄ 厌氧去除特性	王立立, 何婷, 龙焰, 刘常宝 (1558)
应用铅同位素示踪研究泉州某林地垂直剖面土壤中重金属污染及来源解析	孙境蔚, 于瑞莲, 胡恭任, 苏光明, 王晓明 (1566)
畜禽粪便有机肥中重金属在土壤剖面中积累迁移特征及生物有效性差异	何梦媛, 董同喜, 茹淑华, 苏德纯 (1576)
山东省农田土壤多环芳烃的污染特征及源解析	葛蔚, 程琪琪, 柴超, 曾路生, 吴娟, 陈清华, 朱祥伟, 马东 (1587)
江汉平原典型土壤环境中有机磷农药的分布特征及影响因素	王建伟, 张彩香, 潘真真, 廖小平, 刘媛, 吕曲, 汤蜜 (1597)
基于生物有效性的农田土壤磷素组分特征及其影响因素分析	蔡观, 胡亚军, 王婷婷, 袁红朝, 王久荣, 李巧云, 葛体达, 吴金水 (1606)
秸秆还田对外源氮在土壤中转化及其微生物响应的影响	陈珊, 丁咸庆, 祝贞科, 王娟, 彭佩钦, 葛体达, 吴金水 (1613)
生物炭输入对城郊农业区农田地表反照率及土壤呼吸的影响	张阳阳, 胡学玉, 邹娟, 张迪, 陈威, 王向前, 陈窈君, 刘扬 (1622)
淹水水稻土消耗 N ₂ O 能力及机制	王玲, 邢肖毅, 秦红灵, 刘毅, 魏文学 (1633)
不同污水处理工艺非二氧化碳温室气体的释放	李惠娟, 彭党聪, 刘文博, 姚倩, 卓杨 (1640)
施用不同污泥堆肥品对土壤温室气体排放的影响	杨雨滢, 易建婷, 张成, 陈宏, 木志坚 (1647)
不同镉水平下纳米沸石对土壤 pH、CEC 及 Cd 形态的影响	迟苏琳, 徐卫红, 熊仕娟, 王卫中, 秦余丽, 赵婉伊, 张春来, 李彦华, 李桃, 张进忠, 熊治庭, 王正银, 谢德体 (1654)
不同作物对外源硒动态吸收、转运的差异及其机制	彭琴, 李哲, 梁东丽, 王梦柯, 郭璐 (1667)
褪黑素对水稻幼芽镍胁迫的缓解作用	刘仕翔, 黄益宗, 罗泽娇, 黄永春, 蒋航 (1675)
不同形态磺胺类药物在根-土界面的空间分布及毒性评价	金彩霞, 司晓薇, 王万峰, 王春峰, 王子英, 张琴文, 王婉 (1683)
三峡库区消落带沉积物对鱼体富集率的影响	孙松, 李楚娴, 张成, 王永敏, 王定勇 (1689)
重庆市居民头发重金属富集特征及相关性分析	何明靖, 李琦, 王登祥, 赵佳渊, 杨婷 (1697)
16S rRNA 高通量测序研究集雨窖水中微生物群落结构及多样性	杨浩, 张国珍, 杨晓妮, 武福平, 赵炜, 张洪伟, 张翔 (1704)
石墨烯掺杂聚苯胺阳极提高微生物燃料电池性能	黄力华, 李秀芬, 任月萍, 王新华 (1717)
美国污染场地清理的风险评估简介及政策制定	容跃 (1726)
《环境科学》征稿简则 (1505) 《环境科学》征订启事 (1682) 信息 (1339, 1459, 1612)	

海南三亚大气颗粒物中水溶性无机离子浓度及其粒径分布特征

王璐^{1,2}, 刘子锐^{1*}, 温天雪¹, 苗红妍¹, 王跃思¹

(1. 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029; 2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 为研究我国旅游城市海南省三亚市大气颗粒物浓度水平及其化学成分, 于2012年6月~2014年5月, 使用惯性撞击式分级采样器采集大气颗粒物样品, 并利用离子色谱法分析了其中的水溶性无机离子浓度及粒径分布。结果表明, $PM_{2.1}$ 和 $PM_{2.1-9}$ 中总水溶性无机离子浓度平均值分别为 $(8.91 \pm 7.27) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(11.34 \pm 9.37) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。 $PM_{2.1}$ 中 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 占总水溶性无机离子的质量分数比较高, 二者总和达到 72.2%; $PM_{2.1-9}$ 中 Cl^- 、 Ca^{2+} 和 Na^+ 占比较高, 三者总和为 67.6%。 $PM_{2.1}$ 中总水溶性无机离子浓度在冬季最高, 春秋季节次之, 夏季浓度最低, 分别为 (14.58 ± 8.88) 、 (9.33 ± 7.72) 、 (8.72 ± 4.42) 和 $(3.82 \pm 1.59) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; $PM_{2.1-9}$ 中总水溶性无机离子浓度夏季最高 $(17.14 \pm 16.00) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 冬季次之 $(10.59 \pm 3.80) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 春季和秋季变化差异不大, 分别为 $(9.41 \pm 3.63) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(8.21 \pm 3.24) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 呈细粒径段为主的双模态分布, 春季、夏季和秋季细粒径段峰值出现在 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 粒径段, 而冬季则出现在 $0.65 \sim 1.1 \mu\text{m}$ 粒径段, 细粒径段峰值出现由凝结模态向液滴模态转移的现象; NO_3^- 、 Na^+ 、 Cl^- 、 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 呈粗粒径单峰分布, 峰值出现在 $4.7 \sim 9 \mu\text{m}$ 粒径段; K^+ 为双模态分布, 细、粗粒径段峰值分别出现在 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 和 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 。 三亚作为我国少数 $PM_{2.5}$ 年均值达标城市, 水溶性无机离子来源主要为二次源、海盐和土壤尘及降尘。

关键词: 水溶性无机离子; 季节变化; 粒径分布; 三亚

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)04-1298-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201608081

Characteristics of the Size Distribution of Water Soluble Inorganic Ions in Sanya, Hainan

WANG Lu^{1,2}, LIU Zi-rui^{1*}, WEN Tian-xue¹, MIAO Hong-yan¹, WANG Yue-si¹

(1. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry (LAPC), Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Size-resolved filter samples were collected in Sanya every other week from June 2012 to May 2014. The mass concentrations of water-soluble inorganic ions, including anions (Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-}) and cations (Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+}) were measured by ion chromatography. The results showed that the total concentrations of measured water-soluble inorganic ions were (8.91 ± 7.27) and $(11.34 \pm 9.37) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ in $PM_{2.1}$ and $PM_{2.1-9}$, respectively. In $PM_{2.1}$, SO_4^{2-} and NH_4^+ comprised 72.2% of all water-soluble inorganic ions, while in $PM_{2.1-9}$, Cl^- , Ca^{2+} and Na^+ comprised 67.6% of all water-soluble inorganic ions. In $PM_{2.1}$, the total concentrations of water-soluble inorganic ions had highest concentrations in winter and lowest concentrations in summer. In $PM_{2.1-9}$, the total concentrations of water-soluble inorganic ions presented the highest concentrations in summer. SO_4^{2-} and NH_4^+ showed bimodal size distributions and the peaks in the fine mode shifted from $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ in spring, summer and autumn to $0.65 \sim 1.1 \mu\text{m}$ in winter. NO_3^- , Na^+ , Cl^- , Ca^{2+} and Mg^{2+} were unimodal with the peaks in the coarse mode of $4.7 \sim 9.0 \mu\text{m}$. K^+ showed bimodal size distribution with the fine mode at $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ and the coarse mode at $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$. PCA analysis showed that water-soluble inorganic ions were mainly affected by the secondary formation, sea salt and soil particles or falling dust.

Key words: water-soluble inorganic ions; seasonal variation; size distribution; Sanya

大气颗粒物对气候、环境及人体健康等都存在着重要影响^[1~4]。水溶性无机离子作为主要的大气颗粒物成分, 占颗粒物质量浓度的 30% 或更多^[5], 其浓度和化学组分直接影响大气辐射平衡、能见度、降水酸度和云雾的形成, 从而影响区域气候和环境^[1,3,5]。与此同时, 水溶性无机离子的气候环境

效应也与其粒径分布有着紧密联系, 对其粒径分布

收稿日期: 2016-08-12; 修订日期: 2016-11-14

基金项目: 中国科学院战略性先导科技专项 (XDA05100100, XDB050200000); 国家自然科学基金项目 (41203053, 41230642, 41375128)

作者简介: 王璐 (1988~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为大气化学与大气环境, E-mail: wanglu@dq.cern.ac.cn

* 通信作者, E-mail: lzh@dq.cern.ac.cn

特征的研究将有助于了解气溶胶的物理和化学特征,并进一步了解其在大气中的来源和转化过程。

近年来对水溶性无机离子的研究主要集中在京津冀^[6,7]、长三角^[8~10]和珠三角^[11,12]等大中型城市,并且研究内容多关注 PM_{10} (空气动力学等效直径小于或等于 $10\ \mu m$ 的颗粒物)和 $PM_{2.5}$ (空气动力学等效直径小于或等于 $2.5\ \mu m$ 的颗粒物),而对清洁地区的大气颗粒物尤其是分粒径段颗粒物的研究相对较少^[13~16]。海南岛位于南海北部,与广东省和广西壮族自治区毗邻。海南岛地处热带,属于热带季风气候,并具有明显的海洋性特点。目前,海南岛是我国环境空气质量最好的地区之一^[17]。以往在海南岛地区开展的大气颗粒物研究相对较少,已开展的少量研究发现降水对三亚地区 $1.1\sim 2.1\ \mu m$ 粒径段的气溶胶粒子有显著的清除作用^[18],但采样时间跨度较大、采集样品量少,缺乏长时间序列和不同季节的连续观测。本研究于 2012 年 6 月~2014 年 5 月对三亚地区不同粒径段的大气颗粒物开展了连续两年的采样,并对其中的水溶性离子浓度水平进行测定,进而探讨该地区大气颗粒物中水溶性无机离子的浓度水平、季节变化和粒径分布特征,结果将有助于了解三亚地区大气颗粒物的来源及化学组成特征,以为今后的研究提供数据基础。

1 材料与方法

1.1 采样地点与时间

本采样点设置在中国科学院海南热带海洋生物研究所,位于三亚市河东区鹿回头风景区 ($109.47^\circ E, 18.22^\circ N$),采样点三面临近南海,周围主要是自然风景区,无明显工业污染源,属于 CARE-China 南海海岛背景站点之一^[19]。采样点设置在实验楼楼顶,距地面约 $12\ m$,使用安德森 9 级撞击式分级采样器 (Andersen Series 20-800, USA) 采集三亚大气颗粒物样品,流速为 $28.3\ L\cdot min^{-1}$,粒子 50% 切割等效空气动力学粒径 (EDA) 为 0.43 、 0.65 、 1.1 、 2.1 、 3.3 、 4.7 、 5.8 和 $9.0\ \mu m$ 。采集时间每逢双周周一上午 09:00 至周三上午 09:00,用石英膜 (Munktell 公司,型号 T293,直径 $81\ mm$) 采样 1 次,连续采集 48 h,共采集有效样品 52 组。

1.2 样品分析方法

取采集样品滤膜的 $1/4$ 置于 $30\ mL$ 容量的 PET 瓶中,加入 $25\ mL$ 去离子水 ($18.2\ M\Omega\cdot cm$),恒温超声振荡 $30\ min$,经 $0.22\ \mu m$ 滤膜 (天津富集科技有限公司) 过滤后,用阴、阳离子色谱 (Dionex ICS-90,

USA) 同步测定其中阳离子 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 和阴离子 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 浓度。阳离子检测采用 Ionpac CS12A $4\times 250\ mm$ 分离柱、CSRS 300-4 mm 抑制器,淋洗液为 $22\ mmol\cdot L^{-1}$ 的甲烷磺酸 (MSA);阴离子检测用 Ionpac AS14A $4\times 250\ mm$ 分离柱,ASRS 300-4 mm 抑制器,淋洗液为 $3.5\ mmol\cdot L^{-1}$ 的 Na_2CO_3 和 $1.0\ mmol\cdot L^{-1}$ 的 $NaHCO_3$ 混合溶液。进样量为 $100\ \mu L$ 时, Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 和 Cl^- 最低检测限均小于 $0.01\ \mu g\cdot m^{-3}$; Ca^{2+} 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 最低检测限均小于 $0.03\ \mu g\cdot m^{-3}$ 。实验期间各离子系统空白均低于 $0.01\ \mu g\cdot m^{-3}$,实验数据均已扣除系统空白。

1.3 气象要素的观测

观测时段的主要气象参数 (温度、湿度、降水、风速和风向等) 采用芬兰 Vaisala 公司生产的 Milos520 自动气象站进行同步观测。观测期间采样点不同季节的气象要素统计结果见表 1。夏季的平均温度和累积降水量明显高于其它 3 个季节,分别达到 $26.5^\circ C$ 和 $1\ 104.3\ mm$;其次为秋季和春季,冬季的平均温度最低。不同季节间相对湿度的变化幅度较小,4 个季节的平均相对湿度均高于 75% ;4 个季节的风速较大,平均风速均接近 $3.0\ m\cdot s^{-1}$,并且静风天 ($\leq 1\ m\cdot s^{-1}$) 出现的频率较低。总体而言,地处热带的三亚站点具有明显的海洋性特点。

表 1 观测期间不同季节平均气象要素统计

Table 1 Average value of meteorological factors for each season during the observation period

季节	平均温度 / $^\circ C$	相对湿度 /%	降水 / mm	风速 / $m\cdot s^{-1}$
春	18.7	75.2	159.9	2.9
夏	26.5	77.6	1 104.3	2.8
秋	22.3	78.9	597.2	3.1
冬	12.0	77.4	230.7	3.3

2 结果与讨论

2.1 水溶性无机离子浓度水平

表 2 统计了采样期间三亚大气气溶胶中主要水溶性无机离子的平均浓度。三亚大气 $PM_{2.1}$ 中总水溶性无机离子平均浓度为 $(8.91\pm 7.27)\ \mu g\cdot m^{-3}$, SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 是最主要的水溶性无机离子,平均浓度分别为 $(4.59\pm 4.55)\ \mu g\cdot m^{-3}$ 和 $(1.84\pm 2.10)\ \mu g\cdot m^{-3}$ 。 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 占总水溶性无机离子的质量分数分别为 51.5% 和 20.7% ,共计 72.2% 。 $PM_{2.1\sim 9}$ 中总水溶性无机离子平均浓度为 $(11.34\pm 9.37)\ \mu g\cdot m^{-3}$,其中 Cl^- 、 Ca^{2+} 和 Na^+ 质量浓度较高,分别

为 (3.44 ± 5.71) 、 (2.14 ± 1.83) 和 (2.09 ± 2.59) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,占总水溶性无机离子的质量分数分别为30.3%、18.9%和18.4%,共计67.6%。上述结果表明,三亚 $\text{PM}_{2.1}$ 和 $\text{PM}_{2.1\sim 9}$ 中水溶性无机离子构成明显不同,且总质量浓度主要集中在粗粒子中,这与以往本底站的研究中总水溶性无机离子质量浓度主要集中在细粒子中不同^[14-16]。 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 质量浓度主要集中在 $\text{PM}_{2.1}$ 中,主要受 SO_2 和 NH_3 气体的二次转化形成,而 NO_3^- 质量浓度主要集中在 $\text{PM}_{2.1\sim 9}$ 中,与以往内陆城市地区的研究不同^[6,14],这可能与三亚地处沿海,大气颗粒物易发生氯取代而导致硝酸盐向粗粒径段转移有关,与沿海城市如香港^[20]的研究结果一致;同时,由水溶性离子的摩尔

微当量比值可知, $\leq 1.1\ \mu\text{m}$ 粒子中 $[\text{NH}_4^+]/[\text{SO}_4^{2-}]$ 的比值大于1,说明 NH_4^+ 能完全中和 SO_4^{2-} 以 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 的形式存在; $1.1\sim 2.1\ \mu\text{m}$ 粒径段粒子中 $[\text{NH}_4^+]/[\text{SO}_4^{2-}]$ 的比值为0.7,说明主要以 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 和 NH_4HSO_4 的形式存在;而 $>2.1\ \mu\text{m}$ 的粗粒子中 $[\text{NH}_4^+]/[\text{SO}_4^{2-}]$ 的比值小于0.5,说明 NH_4^+ 不能完全中和 SO_4^{2-} 。此外,各粒径段 $[\text{NH}_4^+]/[\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-]$ 均小于1,说明大气中 NH_3 浓度较低,不足以完全中和 NO_x 发生均相反应生成的 HNO_3 , NO_3^- 可能与质量浓度较高的 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 和 Na^+ 结合,以 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 、 $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$ 和 NaNO_3 的形式存在^[21]。此外, Na^+ 和 Cl^- 质量浓度在 $\text{PM}_{2.1\sim 9}$ 中更高主要与三亚地处沿海,易受海盐气溶胶的影响有关。

表2 三亚 $\text{PM}_{2.1}$ 和 $\text{PM}_{2.1\sim 9}$ 中水溶性无机离子浓度/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

Table 2 Annual average concentration of water-soluble inorganic ions in $\text{PM}_{2.1}$ and $\text{PM}_{2.1\sim 9}$ of Sanya/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$								
项目	SO_4^{2-}	NO_3^-	NH_4^+	K^+	Na^+	Cl^-	Ca^{2+}	Mg^{2+}
$\text{PM}_{2.1}$	4.59 ± 4.55	0.64 ± 0.41	1.84 ± 2.10	0.25 ± 0.27	0.33 ± 0.20	0.32 ± 0.38	0.82 ± 0.98	0.12 ± 0.16
$\text{PM}_{2.1\sim 9}$	1.31 ± 0.86	1.51 ± 0.84	0.16 ± 0.22	0.15 ± 0.16	2.09 ± 2.59	3.44 ± 5.71	2.14 ± 1.83	0.54 ± 0.51

由于Andersen采样器没有 $2.5\ \mu\text{m}$ 的切割粒径,Tian等^[22]的研究显示 $\text{PM}_{2.1}$ 和 $\text{PM}_{2.5}$ 之间有很好的可比性,因此将本研究 $\text{PM}_{2.1}$ 中水溶性无机离子与已往开展的 $\text{PM}_{2.5}$ 研究结果相比较。如表3所示,三亚大气 $\text{PM}_{2.1}$ 中主要水溶性无机离子 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 质量浓度均低于城市站点(北京^[7]、南京^[10]、

广州^[11]和佛山^[23])和区域本底站鼎湖山^[15],其中 SO_4^{2-} 质量浓度略高于区域本底站南岭^[24],而 NO_3^- 和 NH_4^+ 质量浓度与南岭差异不大。 NO_3^- 主要来自机动车尾气和工业燃煤烟气等排放的 NO_x 二次转化;而 SO_4^{2-} 除主要来自化石燃料的燃烧产生的 SO_2 的二次转化外,还可能受到区域输送的影响。

表3 不同采样点大气细粒子中主要水溶性无机离子浓度/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

Table 3 Annual average concentration of water-soluble inorganic ions in $\text{PM}_{2.5}$ at different sampling sites/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$										
采样地点	类型	采样时间	SO_4^{2-}	NO_3^-	NH_4^+	K^+	Na^+	Cl^-	Ca^{2+}	Mg^{2+}
北京 ^[7]	城市	2009-04~2010-02	19.07	20.47	6.37	1.68	0.53	2.92	1.55	0.18
南京 ^[10]	城市	2011~2013	28.31	18.85	21.02	1.9	0.46	3.74	0.66	0.11
广州 ^[11]	城市	2012-03~2013-02	12.20	2.00	5.20	0.70	0.50	0.20		
佛山 ^[23]	城市	2008~2014	23.20	18.90	17.70					
南岭 ^[24]	区域本底站	2013	2.68	0.88	1.09					
鼎湖山 ^[15]	区域本底站	2007-01~2008-12	19.10	6.10	6.80	1.40	0.70	1.30	0.60	0.20
三亚(本研究)	区域本底站	2012-06~2014-05	4.59	0.64	1.84	0.25	0.33	0.32	0.82	0.12

由图1可以看出,三亚水溶性无机离子在不同粒径段质量浓度和构成比例不同,其中 $\leq 1.1\ \mu\text{m}$ 粒径段以 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 为主,共占总水溶性无机离子质量浓度的76.48%~87.49%; $>2.1\ \mu\text{m}$ 粒径段 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 占比显著降低,说明受人为源影响的气溶胶粒子主要集中在细粒子中^[2]。 SO_4^{2-} 质量浓度主要集中在 $\leq 2.1\ \mu\text{m}$ 粒径段,且在 $\leq 1.1\ \mu\text{m}$ 各粒径段 SO_4^{2-} 占比随粒径增加呈升高趋势,而 $>1.1\ \mu\text{m}$ 各粒径段 SO_4^{2-} 占比随粒径增加呈降低趋势, $>2.1\ \mu\text{m}$ 各粒径段 SO_4^{2-} 占比显著降低,

仅为7.87%~16.65%。与 SO_4^{2-} 相似, NH_4^+ 质量浓度和占比主要集中在 $\leq 2.1\ \mu\text{m}$ 粒径段。而与 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 不同, NO_3^- 质量浓度和占比主要集中在 $2.1\sim 5.8\ \mu\text{m}$ 粒径段。 K^+ 占总水溶性无机离子质量浓度的比例随粒径增大而降低, $\leq 0.43\ \mu\text{m}$ 粒径段 K^+ 占比最高达5.04%,表征了生物质燃烧对亚微米气溶胶粒子的贡献^[25]。 Ca^{2+} 在各粒径段均有分布,且在粗粒径段占比高于细粒径段。 $>1.1\ \mu\text{m}$ 粒径段 Cl^- 和 Na^+ 质量浓度和占比均随粒径增大而升高,主要是受海盐气溶胶的影响。

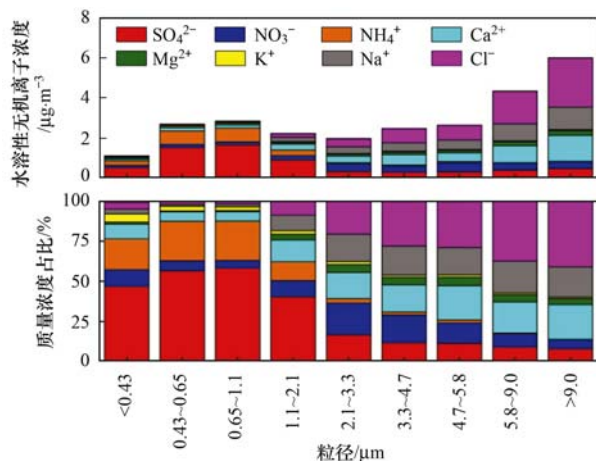


图1 水溶性无机离子在各粒径段质量浓度和百分比分布情况

Fig. 1 Concentrations and relative proportion of water-soluble inorganic ions in different size fractions

2.2 水溶性无机离子的季节特征

海南岛属热带季风海洋性气候,受季风环流交替的影响,在气候学上依据降水量多寡将全年划分为雨季(5~10月)和旱季(11月~次年4月)^[26]. 由于其它气候要素如太阳辐射和大气环流等在不同季节差异明显,为更好地描述全年的变化特征,本文将四季划分为春季(3~4月),夏季(5~8月),秋季(9~10月)和冬季(11月~次年2月)^[27,28]. 夏季和冬季时间延长,春夏季节是过渡期比较短暂,属于典型的热带季风气候^[29,30].

图2显示了三亚大气气溶胶中主要水溶性无机

离子和总离子浓度的季节变化特征. 从中可以看出,三亚大气颗粒物 $PM_{2.1}$ 中水溶性无机离子总浓度冬季最高,为 $(14.58 \pm 8.88) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,其次是春季和秋季,分别为 $(9.33 \pm 7.72) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(8.72 \pm 4.42) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,夏季浓度最低,为 $(3.82 \pm 1.59) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. $PM_{2.1\sim 9}$ 中水溶性无机离子总浓度与 $PM_{2.1}$ 的季节变化趋势不同,夏季最高 $(17.14 \pm 16.00) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,冬季次之 $(10.59 \pm 3.80) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,春季和秋季水溶性无机离子总浓度季节变化差异不大,分别为 $(9.41 \pm 3.63) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(8.21 \pm 3.24) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 三亚地区的水溶性离子的季节变化特征,与北京^[7]、天津^[7]、兴隆^[14]、唐山^[31]和太原^[32]的细粒子中水溶性离子夏季浓度最高,长三角地区粗、细粒子中水溶性离子浓度夏季浓度最低的观测结果不同^[9].

如图2所示, $PM_{2.1}$ 中 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 K^+ 和 Na^+ 季节变化特征一致,冬季最高,春秋季节次之,夏季浓度最低. 三亚冬季气候温和(平均温度 12.03°C ,平均相对湿度 77.40%),游客多选择冬季在三亚旅游,人口增多,机动车尾气和餐饮等人为活动加大了三亚市本地污染物排放;另一方面在冬季海南岛低层多为东北风场控制^[28](图3),海南岛东北方向有经济高度发展的珠江三角洲地区,在东北风的作用下,有利于大气污染物向海南岛方向的输送,从而使得三亚细颗粒物中总的水溶性无机离子

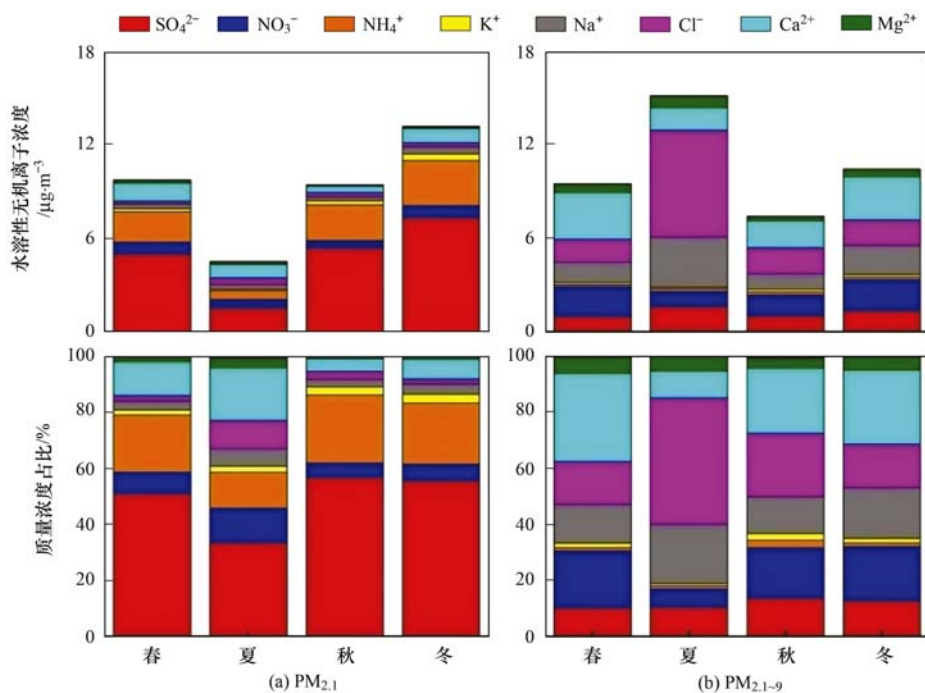


图2 $PM_{2.1}$ 和 $PM_{2.1\sim 9}$ 中水溶性无机离子季节分布和百分比分布情况

Fig. 2 Seasonal variation of water-soluble inorganic ions and relative proportion in $PM_{2.1}$ and $PM_{2.1\sim 9}$

浓度冬季最高. 夏季是海南岛最主要的降水季节 (降水量1 104.30 mm, 平均温度 26.46℃, 平均相对湿度 77.61%), 充沛的降水有利于大气颗粒物通过湿清除沉降到地面. 此外, 夏季海南岛低层大气多为偏南风控制^[28], 观测期间, 夏季的盛行风也为偏南风(图 3). 在南边清洁海洋气团的输送下, 三亚夏季细粒子中水溶性无机离子浓度达到最低, 与此

同时, 海洋气团的输入也带来大量海盐气溶胶, 造成夏季粗粒子中水溶性离子总浓度的高值. 由图 2 可以看出, 夏季 $PM_{2.1-9}$ 中 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 和 SO_4^{2-} 浓度最高, 且夏季 Na^+ 和 Cl^- 占比显著高于其它季节, 说明主要受海盐气溶胶的影响. 与此同时, 夏季 $PM_{2.1-9}$ 中 Ca^{2+} 质量浓度和构成百分比均低于其它季节, 主要受夏季充沛降水的湿清除作用的影响.

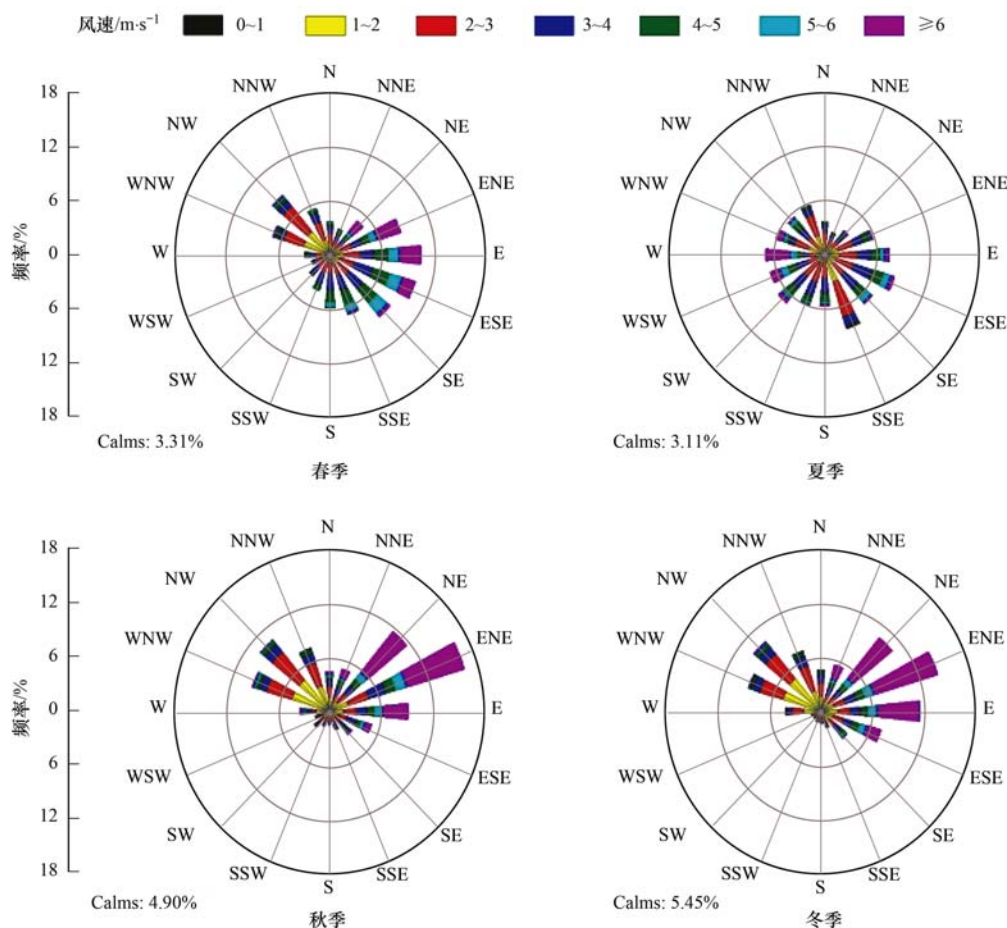


图 3 不同季节风向玫瑰图

Fig. 3 Wind rose plots, color-coded by wind speed for each season

2.3 水溶性无机离子粒径分布

三亚不同季节大气颗粒物中主要水溶性无机离子的粒径分布特征如图 4 所示. 其中 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 呈细粒径段为主的双模态分布, 细粒径段峰值出现在 $0.43 \sim 1.1 \mu m$, 粗粒径段峰值出现在 $4.7 \sim 5.8 \mu m$; NO_3^- 、 Na^+ 、 Cl^- 、 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 均呈粗模态单峰分布, 峰值出现在 $4.7 \sim 9 \mu m$; K^+ 为双模态分布, 细粒径段峰值出现在 $0.43 \sim 0.65 \mu m$, 而粗粒径段峰值出现在 $4.7 \sim 5.8 \mu m$.

夏季 SO_4^{2-} 呈双模态分布, 并且其在粗粒径段的峰值高于细粒径段, 这与京津冀和长三角地区 SO_4^{2-} 主要出现细粒径段峰值的研究结果不同^[6,9].

夏季 SO_4^{2-} 呈现粗模态为主的现象, 一方面与夏季主要受海洋气团影响, 来自区域输送的硫酸盐气溶胶减少有关; 另一方面, 也可能与夏季粗粒径段海洋气溶胶大幅增加, 易与气态 H_2SO_4 发生非均相反应从而增加 SO_4^{2-} 在粗粒径段的富集有关^[33,34]. 此外, 以往的研究也指出粗粒子中的 SO_4^{2-} 可直接来源于海盐气溶胶^[35]. 与夏季不同, 春季、秋季和冬季 SO_4^{2-} 均呈现以细粒径段为主的双模态分布, 并且春季和秋季 SO_4^{2-} 在细粒径段峰值均出现在 $0.43 \sim 0.65 \mu m$ 粒径段, 而冬季则出现在 $0.65 \sim 1.1 \mu m$ 粒径段. 三亚冬季大陆气团的长距离输送, 老化气团的加入使得粒径变大; 冬季不利的气象条件和静

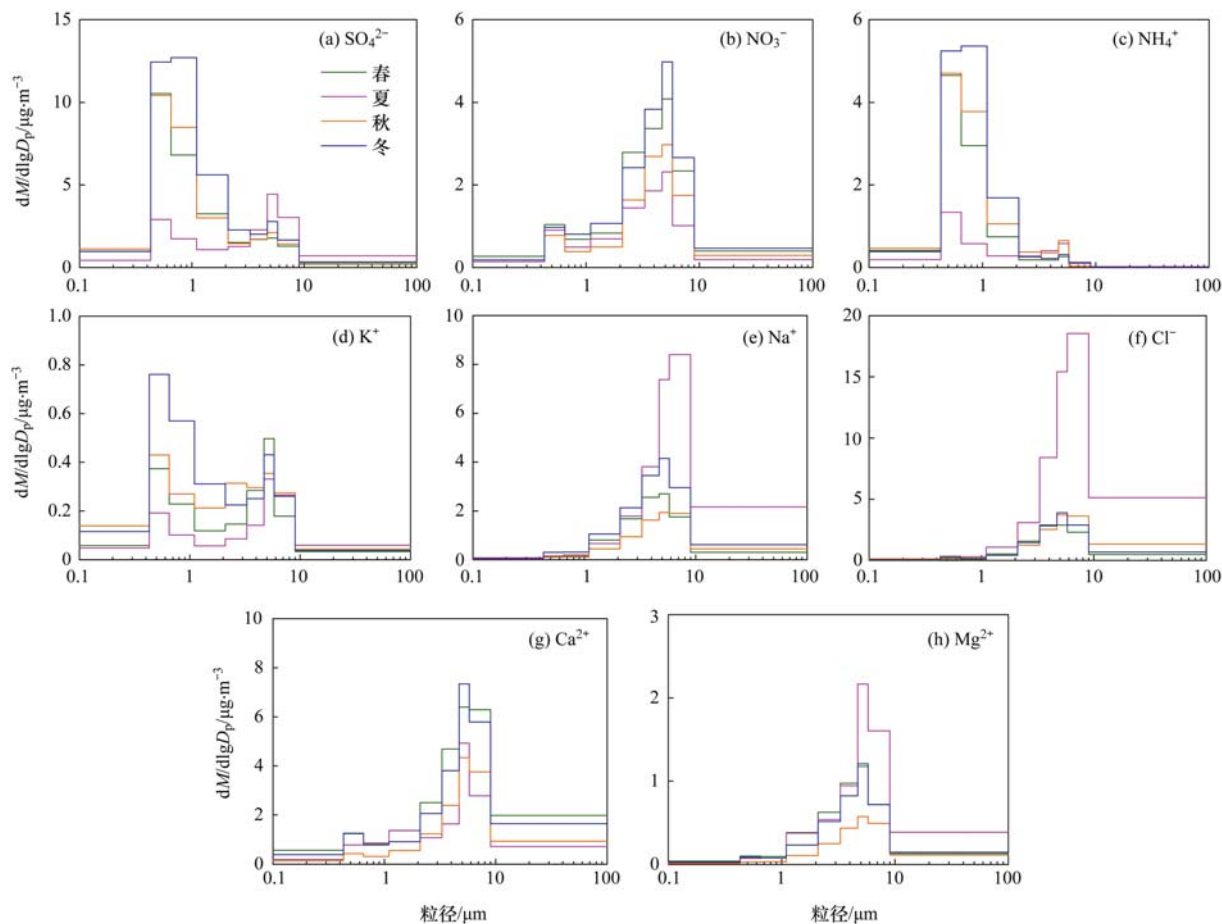


图4 不同季节水溶性无机离子粒径分布特征

Fig. 4 Seasonal variation of mass size distribution of water-soluble inorganic ions

稳的天气使得污染物不易扩散,在此条件下非均相反应加强,通过非均相反应生成的 SO_4^{2-} 进一步吸湿增长或者与非降水的云滴、雾滴结合^[21],从而使得其由凝结模态向液滴模态转移,导致细粒径峰值的增长. 上述现象与以往在北京^[37]、保定^[38]、唐山^[31]和太原^[32]的观测结果一致.

4 个季节 NO_3^- 均呈现粗粒径为主的单峰分布,峰值出现在 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 粒径段. 如前文所述,各粒径段 $[\text{NH}_4^+]/[\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-]$ 的比值均小于 1,说明 NH_4^+ 不足以中和 HNO_3 ,同时细粒径段的 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 浓度低,使得 HNO_3 易与粗粒子中的阳离子如 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 结合,导致 NO_3^- 主要出现在粗模态^[21,36]. 4 个季节 NH_4^+ 均呈现细粒径段为主的单峰分布,峰值出现在 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$. 从图4 可以看出,春季、秋季和冬季 NH_4^+ 在细粒径段的峰值远远高于夏季,与 SO_4^{2-} 的季节变化特征一致. Na^+ 和 Cl^- 粒径分布特征基本一致,4 个季节均呈粗模态单峰分布,峰值在 $5.8 \sim 9 \mu\text{m}$,且二者显著相关 ($R^2 = 0.93, P < 0.01$),说明 Na^+ 和 Cl^- 来源相同,主要是

受海盐气溶胶的影响. 值得注意的是,夏季 Na^+ 和 Cl^- 在粗模态的峰值远远高于其它季节,进一步说明了三亚地区夏季主要受海洋性气团的影响. Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 全年均呈粗粒径段为主的单峰分布,峰值出现在 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$,并且峰值在季节间的差异较小,表明 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 来源比较固定,主要来自于自然源如土壤尘和道路尘等. 此外,夏季 Mg^{2+} 在粗粒径段的峰值略高于其它季节,也可能与海洋气溶胶的影响有关. 细颗粒物中 K^+ 能指示生物质燃烧源^[25],冬季 K^+ 在细粒径段 ($0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$) 的峰值明显高于其它季节,这可能与三亚冬季人为活动加剧,来自局地或区域输送的生物质气溶胶加强有关.

2.4 主成分分析

本研究利用主成分分析(PCA)的方法分析三亚地区粗、细颗粒物中水溶性离子的主要来源. 选择颗粒物中的 8 种主要水溶性离子,以它们的质量浓度作为因子分析变量代入模型进行计算. 因子分析模块解析得到主成分(PCA)分析法提取的因子共同

度表、相关矩阵表、总方差解释表(相关系数矩阵 R 、特征值及相应特征向量)、因子初始载荷矩阵表和经极大方差旋转后所得的因子负载矩阵. 本文列出经方差极大旋转后的因子荷载表(表4), 荷载值大于0.5 标记为黑体字. 由表4 可知, $PM_{2.1}$ 中主要受3 个因子的影响, 因子1 的荷载值较大的变量为 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 和 K^+ , 方差贡献率高达36.92%, 代表了二次源的影响; 因子2 的方差贡献率为24.18%, 其中荷载值较大的变量为 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} , 说明因子2 受土壤尘和降尘的影响; 因子3 的方差贡献率为18.83%, 其中荷载值较大的变量为 Na^+ 、 Cl^- 和 NO_3^- , 代表了海盐的影响, 该因子中的硝酸盐可能与气态硝酸和海盐气溶胶的氯取代有

关^[20]. 以上3 个因子总的方差贡献率为79.9%, 基本解释了 $PM_{2.1}$ 中总水溶性无机离子的主要来源. $PM_{2.1-9}$ 主要受2 个因子的影响: 因子1 的荷载值较大的变量为 Na^+ 、 Cl^- 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ , 方差贡献率达52.62%, 代表了海盐的影响; 因子2 荷载值较大的变量为 Ca^{2+} 、 NO_3^- 和 K^+ , 方差贡献率为22.46%, 代表了土壤尘或降尘的影响, 硝酸盐气体前底物与 Ca^{2+} 发生非均相反应^[39]; 以上2 个因子总的方差贡献率为75.1%, 基本解释了 $PM_{2.1-9}$ 中总水溶性无机离子的主要来源. 综上, 三亚细粒子中水溶性无机离子主要受二次源和土壤尘及降尘的影响; 而粗粒子中水溶性无机离子则主要受海盐和土壤尘及降尘的影响.

表4 主成分分析因子载荷¹⁾

Table 4 Rotated component matrix for water-soluble inorganic ions in $PM_{2.1}$ and $PM_{2.1-9}$

项目	$PM_{2.1}$			$PM_{2.1-9}$	
	因子1	因子2	因子3	因子1	因子2
SO_4^{2-}	0.97	0.05	-0.06	0.89	0.17
NO_3^-	0.55	0.01	0.57	-0.10	0.83
NH_4^+	0.95	0.01	-0.07	0.79	0.03
K^+	0.82	0.07	0.27	0.37	0.56
Na^+	0.27	0.37	0.60	0.95	-0.01
Cl^-	-0.16	0.02	0.85	0.96	-0.19
Ca^{2+}	0.14	0.96	0.02	-0.02	0.85
Mg^{2+}	-0.09	0.93	0.17	0.90	0.16
特征值	2.95	1.93	1.51	4.27	1.80
方差贡献率/%	36.92	24.18	18.83	52.62	22.46
累积方差贡献率/%	36.92	61.10	79.93	52.62	75.08

1) 加粗数字表示因子载荷大于0.5

3 结论

(1) 不同粒径段水溶性无机离子的组成不同, $PM_{2.1}$ 中以 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 为主, $PM_{2.1-9}$ 中以 Cl^- 、 Ca^{2+} 和 Na^+ 为主. $\leq 1.1 \mu m$ 粒径段中 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 以 $(NH_4)_2SO_4$ 的形式存在; $1.1 \sim 2.1 \mu m$ 中以 $(NH_4)_2SO_4$ 和 NH_4HSO_4 的形式存在; 各粒径段 NH_4^+ 均不能完全中和 NO_3^- , 可能以 $NaNO_3$ 、 $Mg(NO_3)_2$ 和 $Ca(NO_3)_2$ 的形式存在.

(2) 水溶性无机离子季节变化特征明显, $PM_{2.1}$ 中 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 K^+ 和 Na^+ 冬季最高, 春秋季节次之, 夏季浓度最低, 冬季从大陆输送高浓度污染物导致浓度高值, 夏季来自海洋的清洁气团和充沛的降水有清除作用导致浓度较低. $PM_{2.1-9}$ 中 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 和 SO_4^{2-} 夏季浓度最高, 主要受夏季海盐气溶胶的影响.

(3) 春、秋和冬季 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 呈细模态为主

的双峰分布, 并且冬季细粒径段峰值出现由凝结模态向液滴模态转移的现象; 而夏季 SO_4^{2-} 粗模态峰值更明显. NO_3^- 、 Na^+ 和 Cl^- 呈粗模态单峰分布, 受海洋气溶胶影响, 夏季 Na^+ 和 Cl^- 粗模态的峰值显著高于其他季节.

(4) 三亚作为我国少数 $PM_{2.5}$ 年均值达标城市, 水溶性无机离子的主要来源分别为二次源、海盐和土壤尘及降尘.

参考文献:

- [1] Xin J Y, Gong C S, Wang S G, et al. Aerosol direct radiative forcing in desert and semi-desert regions of northwestern China [J]. Atmospheric Research, 2016, **171**: 56-65.
- [2] Tian S L, Pan Y P, Wang Y S. Size-resolved source apportionment of particulate matter in urban Beijing during haze and non-haze episodes [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, **16**(1): 1-19.
- [3] Fu X X, Wang X M, Hu Q H, et al. Changes in visibility with $PM_{2.5}$ composition and relative humidity at a background site in the Pearl River Delta region [J]. Journal of Environmental Sciences, 2016, **40**: 10-19.

- [4] Qiao L P, Cai J, Wang H L, *et al.* PM_{2.5} constituents and hospital emergency-room visits in Shanghai, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48** (17): 10406-10414.
- [5] Sun Z Q, Mu Y J, Liu Y J, *et al.* A comparison study on airborne particles during haze days and non-haze days in Beijing [J]. *Science of the Total Environment*, 2013, **456-457**: 1-8.
- [6] Li X R, Wang L L, Ji D S, *et al.* Characterization of the size-segregated water-soluble inorganic ions in the Jing-Jin-Ji urban agglomeration: spatial/temporal variability, size distribution and sources [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **77**: 250-259.
- [7] Zhao P S, Dong F, He D, *et al.* Characteristics of concentrations and chemical compositions for PM_{2.5} in the region of Beijing, Tianjin, and Hebei, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(9): 4631-4644.
- [8] Shen G F, Xue M, Yuan S Y, *et al.* Chemical compositions and reconstructed light extinction coefficients of particulate matter in a mega-city in the western Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **83**: 14-20.
- [9] 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.
- [10] Wang H L, An J L, Cheng M T, *et al.* One year online measurements of water-soluble ions at the industrially polluted town of Nanjing, China: sources, seasonal and diurnal variations [J]. *Chemosphere*, 2016, **148**: 526-536.
- [11] Lai S C, Zhao Y, Ding A J, *et al.* Characterization of PM_{2.5} and the major chemical components during a 1-year campaign in rural Guangzhou, Southern China [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **167**: 208-215.
- [12] Wang X M, Chen W H, Chen D H, *et al.* Long-term trends of fine particulate matter and chemical composition in the Pearl River Delta Economic Zone (PRDEZ), China [J]. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, 2016, **10**(1): 53-62.
- [13] 徐宏辉, 刘洁, 王跃思, 等. 临安本底站大气气溶胶水溶性离子浓度变化特征 [J]. *环境化学*, 2012, **31**(6): 796-802.
- Xu H H, Liu J, Wang Y S, *et al.* Variation pattern of water-soluble ions in atmospheric aerosol at Linan regional background station [J]. *Environmental Chemistry*, 2012, **31**(6): 796-802.
- [14] 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.
- Li X R, Song A L, Wang Y F, *et al.* Analysis on water-soluble inorganic ions in the atmospheric aerosol of Xinglong [J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(1): 15-20.
- [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.
- Zhao Y N, Wang Y S, Wen T X, *et al.* Characterization of water-soluble ions in PM_{2.5} at Dinghu Mount [J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(4): 1232-1235.
- [16] 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.
- Liu Z R, Wang Y S, Liu Q, *et al.* Pollution characteristics and source of the atmospheric fine particles and secondary inorganic compounds at mount Dinghu in autumn season [J]. *Environmental Science*, 2011, **32**(11): 3160-3166.
- [17] 符传博, 唐家翔, 丹利, 等. 2014 年海口市大气污染物演变特征及典型污染个例分析 [J]. *环境科学学报*, 2016, **36** (6): 2160-2169.
- Fu C B, Tang J X, Dan L, *et al.* Evolution of ambient air quality and case study of an air pollution event in 2014 over Haikou, China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2016, **36**(6): 2160-2169.
- [18] 廖碧婷, 吴兑, 陈静, 等. 华南地区大气气溶胶中 EC 和水溶性离子粒径分布特征 [J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(5): 1297-1309.
- Liao B T, Wu D, Chen J, *et al.* Size-resolved mass concentrations of elemental carbon and inorganic water-soluble ions in South China [J]. *China Environmental Science*, 2015, **35**(5): 1297-1309.
- [19] Xin J Y, Wang Y S, Pan Y P, *et al.* The campaign on atmospheric aerosol research network of China: CARE-China [J]. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 2015, **96** (7): 1137-1155.
- [20] Bian Q, Huang X H H, Yu J Z. One-year observations of size distribution characteristics of major aerosol constituents at a coastal receptor site in Hong Kong-Part I: inorganic ions and oxalate [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14** (17): 9013-9027.
- [21] 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.
- [22] Tian S L, Pan Y P, Liu Z R, *et al.* Size-resolved aerosol chemical analysis of extreme haze pollution events during early 2013 in urban Beijing, China [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2014, **279**: 452-460.
- [23] Tan J H, Duan J C, Ma Y L, *et al.* Long-term trends of chemical characteristics and sources of fine particle in Foshan City, Pearl River Delta: 2008-2014 [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **565**: 519-528.
- [24] 罗运阔, 陈尊裕, 张轶男, 等. 中国南部四背景地区春季大气碳质气溶胶特征与来源 [J]. *中国环境科学*, 2010, **30** (11): 1543-1549.
- Luo Y K, Chen Z Y, Zhang Y N, *et al.* Characteristics and sources of carbonaceous aerosols in spring at four background sites in South China [J]. *China Environmental Science*, 2010, **30** (11): 1543-1549.
- [25] Andreae M O. Soot carbon and excess fine potassium: long-range transport of combustion-derived aerosols [J]. *Science*, 1983, **220**(4602): 1148-1151.
- [26] 高素华, 黄增明, 张统钦, 等. 海南岛气候 [M]. 北京: 气象出版社, 1988. 189.
- Gao S H, Huang Z M, Zhang T Q, *et al.* Hainan climate [M]. Beijing: China Meteorological Press, 1988. 189.
- [27] 张振州, 蔡旭晖, 康凌, 等. 海南岛地区大气输送和扩散特征的数值模拟 [J]. *环境科学学报*, 2014, **34**(2): 281-289.
- Zhang Z Z, Cai X H, Kang L, *et al.* Numerical simulation of atmospheric transport and diffusion over Hainan Island [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2014, **34**(2): 281-289.
- [28] 张振州, 蔡旭晖, 宋宇, 等. 海南岛地区海陆风的统计分析和数值模拟研究 [J]. *热带气象学报*, 2014, **30** (2): 270-280.

- Zhang Z Z, Cai X H, Song Y, *et al.* Statistical characteristics and numerical simulation of sea land breezes in Hainan island [J]. *Journal of Tropical Meteorology*, 2014, **30**(2): 270-280.
- [29] 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.
- [30] Cheng Y, Ho K F, Lee S C, *et al.* Seasonal and diurnal variations of $PM_{1.0}$, $PM_{2.5}$ and PM_{10} in the roadside environment of Hong Kong [J]. *China Particuology*, 2006, **4**(6): 312-315.
- [31] 苗红妍, 温天雪, 王丽, 等. 唐山大气颗粒物中水溶性无机盐的观测研究[J]. *环境科学*, 2013, **34**(4): 1225-1231.
Miao H Y, Wen T X, Wang L, *et al.* Water-soluble inorganic salts in ambient aerosol particles in Tangshan[J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(4): 1225-1231.
- [32] 王璐, 温天雪, 苗红妍, 等. 太原大气颗粒物中水溶性无机离子质量浓度及粒径分布特征[J]. *环境科学*, 2016, **37**(9): 3249-3257.
Wang L, Wen T X, Miao H Y, *et al.* Concentrations and size distributions of water-soluble inorganic ions in aerosol particles in Taiyuan, Shanxi [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(9): 3249-3257.
- [33] Kong S F, Wen B, Chen K, *et al.* Ion chemistry for atmospheric size-segregated aerosol and depositions at an offshore site of Yangtze River Delta region, China[J]. *Atmospheric Research*, 2014, **147-148**: 205-226.
- [34] Zhuang H, Chan C K, Fang M, *et al.* Formation of nitrate and on-sea-salt sulfate on coarse particles [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(26): 4223-4233.
- [35] Liu Y M, Zhang S T, Fan Q, *et al.* Accessing the impact of sea-salt emissions on aerosol chemical formation and deposition over Pearl River Delta, China[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2015, **15**(6S): 2232-2245.
- [36] Allen H M, Draper D C, Ayres B R, *et al.* Influence of crustal dust and sea spray supermicron particle concentrations and acidity on inorganic NO_3^- aerosol during the 2013 Southern Oxidant and Aerosol Study[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(18): 10669-10685.
- [37] 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.
Xu H H, Wang Y S, Wen T X, *et al.* Size distributions and vertical distributions of water soluble ions of atmospheric aerosol in Beijing[J]. *Environmental Science*, 2007, **28**(1): 14-19.
- [38] 王丽, 温天雪, 苗红妍, 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.
Wang L, Wen T X, Miao H Y, *et al.* Concentrations and size distributions of water soluble inorganic ion in aerosol particles in Baoding, Hebei [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2013, **26**(5): 516-521.
- [39] 张秋晨, 朱彬, 龚佃利. 南京地区大气气溶胶及水溶性无机离子特征分析[J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(2): 311-316.
Zhang Q C, Zhu B, Gong D L. Characterization of water-soluble ion species of aerosol in Nanjing, China [J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(2): 311-316.

CONTENTS

Dry and Bulk Nitrogen Deposition in Suburbs of Xining City	XU Wen, JIN Xin, LUO Shao-hui, <i>et al.</i> (1279)
Day-Night Variation and Source Apportionment of Carbonaceous Aerosols in PM ₁₀ During Spring and Summer of Lanzhou	MA Li, YU Ye, WANG Bo, <i>et al.</i> (1289)
Characteristics of the Size Distribution of Water Soluble Inorganic Ions in Sanya, Hainan	WANG Lu, LIU Zi-rui, WEN Tian-xue, <i>et al.</i> (1298)
Pollution Characteristics of NH ₄ ⁺ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ in PM _{2.5} and Their Precursor Gases During 2015 in an Urban Area of Beijing	DING Meng-meng, ZHOU Jian-nan, LIU Bao-xian, <i>et al.</i> (1307)
Pollution Characteristics of PCDD/Fs in Ambient Air and Exposure Risk Assessment Around a Municipal Solid Waste Incinerator in Beijing	QI Li, REN Yue, LIU Ai-min, <i>et al.</i> (1317)
Community Characteristics of Cultivable Bacteria in Fine Particles (PM _{2.5}) of Beijing and Baoding	HU Ya-dong, MA An-zhou, LÜ Peng-yi, <i>et al.</i> (1327)
Emission Characteristics of Vehicle Exhaust in Artery and Collector Roads in Nanjing Based on Real-time Traffic Data	LI Xiao-yu, WU Lin, ZOU Chao, <i>et al.</i> (1340)
Catalytic Combustion of Soot Particulates over Rare Earth Pyrochlore Oxides Doped with Transition Metals	LI Xi-feng, SUN Yu-qi, WANG Zhong-peng, <i>et al.</i> (1348)
Water Quality Analysis of Beijing Segment of South-to-North Water Diversion Middle Route Project	XU Hua-shan, ZHAO Lei, SUN Hao-su, <i>et al.</i> (1357)
Hanfeng Pre-reservoir Commissioning Time Variation Feature of the Hydrology and Water Quality in Three Gorges Reservoir	YANG Bing, HE Bing-hui, WANG De-bao (1366)
Modeling of Water Quality Response to Land-use Patterns in Taizi River Basin Based on Partial Least Squares	LI Lin-lin, ZHANG Yi-zhang, TANG Chang-yuan, <i>et al.</i> (1376)
Distribution Characteristics of Water Temperature and Water Quality of Fuxian Lake During Thermal Stratification Period in Summer	WANG Lin-jie, YU Hui, NIU Yong, <i>et al.</i> (1384)
Vertical Stratification Characteristics of Dissolved Oxygen and Phytoplankton in Thousand-Island Lake and Their Influencing Factors	YU Yan, LIU De-fu, YANG Zheng-jian, <i>et al.</i> (1393)
Community Structure Characteristics of Eukaryotic Planktonic Algae in Liaoh River Through High-throughput Sequencing	WANG Jing-qi, WANG Shu-ping, ZHANG Yuan, <i>et al.</i> (1403)
Effects of Coastal Organic Pollution on Bacterioplankton Community in Sanmen Bay	DAI Wen-fang, GUO Yong-hao, YU Wei-na, <i>et al.</i> (1414)
Nitrate Source Identification and Nitrification-denitrification at the Sediment-water Interface	JIN Zan-fang, GONG Jia-lin, SHI Yi-li, <i>et al.</i> (1423)
Residues of Organochlorine Pesticides (OCPs) in Water and Sediments from Nansha Mangrove Wetland	DING Yang, HUANG Huan-fang, LI Hui, <i>et al.</i> (1431)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals from River Network Sediment in Western Area of Taihu Lake	BIAN Bo, ZHOU Yan, ZHANG Qin (1442)
Efficacy of Phoslock® on the Reduction of Sediment Phosphorus Release in West Lake, Hangzhou, China	ZHU Guang-wei, LI Jing, ZHU Meng-yuan, <i>et al.</i> (1451)
Identification and PAC Adsorption of Fouling Responsible for Irreversible Fouling During Ultrafiltration of Dongjiang River Water	YANG Hai-yan, WANG Can, YAN Zhong-sen, <i>et al.</i> (1460)
Efficiency and Kinetics of Triclosan Degradation in Aqueous Solution by UV/Sodium Persulfate	LI Qing-song, LI Xue-yan, YAO Ning-bo, <i>et al.</i> (1467)
Influencing Factors on the Degradation of PFOS Through VUV-SO ₂ ⁻	HAN Hui-li, WANG Hong-jie, DONG Wen-yi (1477)
Simultaneous Photocatalytic Reduction of Cr(VI) and Oxidation of SSA by Carbon Nitride	LI Li-li, CHEN Cui-hai, LAN Hua-chun, <i>et al.</i> (1483)
Modification of Diatomite by Zirconium and Its Performance in Phosphate Removal from Water	FAN Yi, WANG Zhe, ZHAO Lian-qin, <i>et al.</i> (1490)
Reducing Effect of Three Disinfection Technologies for Sulfonamides Resistance Genes	ZHENG Ji, ZHOU Zhen-chao, CHEN Fang, <i>et al.</i> (1497)
Removal of Estrogenic Effect by Typical Domestic Wastewater Treatment Processes	ZHANG Qiu-ya, MA Xiao-yan, WANG Xiao-chang, <i>et al.</i> (1506)
Effect of SRT on Stability of Yeast-SBR in Treating Oil-containing Wastewater	LÜ Wen-zhou, ZHANG Shu-lin, QIAO Yu-xiang, <i>et al.</i> (1513)
Degradation of the Disperse Dye Neocron Black(NB) by Biological Treatment	YANG Bo, DING Feng-you, XU Hui, <i>et al.</i> (1520)
Function of Polyphosphate Kinase Gene in Biological Phosphate Removal During the Wastewater Treatment Process	NAN Ya-ping, ZHOU Guo-biao, YUAN Lin-jiang (1529)
Short-cut Nitrification Recovery and Its Transformation into CANON Process in a Biofilm Reactor	FU Kun-ming, ZHOU Hou-tian, SU Xue-ying, <i>et al.</i> (1536)
Nitrogen Removal Characteristics and Diversity of Microbial Community in ANAMMOX Reactor	CAO Yan, WANG Tong-yu, QIN Yu-jie, <i>et al.</i> (1544)
Effect of Environment Adjustment Layers on Nitrogen Transformation in Anaerobic Bioreactor Landfills	HE Zheng-kun, SONG Bo-yu, ZHU Nan-wen, <i>et al.</i> (1551)
Characteristics of Anaerobic Methane Removal Coupled to Fe(III) Reduction in Aged Refuse	WANG Li-li, HE Ting, LONG Yan, <i>et al.</i> (1558)
Assessment of Heavy Metal Pollution and Tracing Sources by Pb & Sr Isotope in the Soil Profile of Woodland in Quanzhou	SUN Jing-wei, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (1566)
Accumulation and Migration Characteristics in Soil Profiles and Bioavailability of Heavy Metals from Livestock Manure	HE Meng-yuan, DONG Tong-xi, RU Shu-hua, <i>et al.</i> (1576)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Agricultural Soils from Shandong	GE Wei, CHENG Qi-qi, CHAI Chao, <i>et al.</i> (1587)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Organophosphorus Pesticides in Typical Soil Environment of Jiangnan Plain	WANG Jian-wei, ZHANG Cai-xiang, PAN Zhen-zhen, <i>et al.</i> (1597)
Characteristics and Influencing Factors of Biologically-based Phosphorus Fractions in the Farmland Soil	CAI Guan, HU Ya-jun, WANG Ting-ting, <i>et al.</i> (1606)
Effect of Straw Application on the Dynamics of Exogenous Nitrogen and Microbial Activity in Paddy Soil	CHEN Shan, DING Xian-qing, ZHU Zhen-ke, <i>et al.</i> (1613)
Effects of Biochar on Surface Albedo and Soil Respiration in Suburban Agricultural Soil	ZHANG Yang-yang, HU Xue-yu, ZOU Juan, <i>et al.</i> (1622)
N ₂ O Consumption Ability of Submerged Paddy Soil and the Regulatory Mechanism	WANG Ling, XING Xiao-yi, QIN Hong-ling, <i>et al.</i> (1633)
Non-CO ₂ Greenhouse Gas Release from Different Biological Wastewater Treatment Processes	LI Hui-juan, PENG Dang-cong, LIU Wen-bo, <i>et al.</i> (1640)
Effect of Application of Sewage Sludge Composts on Greenhouse Gas Emissions in Soil	YANG Yu-han, YI Jian-ting, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (1647)
Effect of Nano Zeolites on pH, CEC in Soil and Cd Fractions in Plant and Soil at Different Cadmium Levels	CHI Sun-lin, XU Wei-hong, XIONG Shi-juan, <i>et al.</i> (1654)
Dynamic Differences of Uptake and Translocation of Exogenous Selenium by Different Crops and Its Mechanism	PENG Qin, LI Zhe, LIANG Dong-li, <i>et al.</i> (1667)
Alleviation Effects of Exogenous Melatonin on Ni Toxicity in Rice Seedlings	LIU Shi-xiang, HUANG Yi-zong, LUO Ze-jiao, <i>et al.</i> (1675)
Forms Distribution and Ecotoxicity of Three Forms of Sulfonamides in Root-Soil Interface of Maize	JIN Cai-xia, SI Xiao-wei, WANG Wan-feng, <i>et al.</i> (1683)
Effect of Sediments on Bioaccumulation of Mercury in Fish Body in the Water-Level-Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir Area	SUN Song, LI Chu-xian, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (1689)
Bioaccumulation and Correlation of Heavy Metals in Human Hairs From Urban and Rural Areas of Chongqing	HE Ming-jing, LI Qi, WANG Deng-xiang, <i>et al.</i> (1697)
Microbial Community Structure and Diversity in Cellar Water by 16S rRNA High-throughput Sequencing	YANG Hao, ZHANG Guo-zhen, YANG Xiao-ni, <i>et al.</i> (1704)
Performance Improvement of Microbial Fuel Cell with Polyaniline Doped Graphene Anode	HUANG Li-hua, LI Xiu-fen, REN Yue-ping, <i>et al.</i> (1717)
Brief Introduction of Pollution Sites Remediation and Risk Assessment and Its Policy Making in United States	RONG Yue (1726)