

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第4期

Vol.39 No.4

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

京津冀地区钢铁行业污染物排放清单及对 PM _{2.5} 影响	段文娇, 郎建全, 程水源, 贾佳, 王晓琦 (1445)
京津冀内陆平原区 PM _{2.5} 浓度时空变化定量模拟	郝静, 孙成, 郭兴宇, 王卫, 刘方田, 党海燕 (1455)
成都市冬季相对湿度对颗粒物浓度和大气能见度的影响	刘凡, 谭钦文, 江霞, 蒋文举, 宋丹林 (1466)
华山地区 PM _{2.5} 中无机离子垂直分布特征	曹聪, 王格慧, 吴灿, 李建军, 刘浪, 李瑾, 余兴 (1473)
烟花爆竹集中燃放的大气细颗粒物 (PM _{2.5}) 成分图谱	谢瑞加, 侯红霞, 陈永山 (1484)
长三角地区中小燃煤锅炉 PM _{2.5} 成分谱特征	徐健, 黄成, 李莉, 陈勇航, 楼晟荣, 乔利平, 王鸿宇 (1493)
民用燃煤排放分级颗粒物中重金属排放因子	严沁, 孔少飞, 刘海彪, 王伟, 吴剑, 郑明明, 郑淑睿, 杨国威, 吴方琪 (1502)
冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的分布特征及影响因素	张帅, 石金辉, 姚小红, 高会旺 (1512)
青岛大气降水中微量元素的浓度及溶解度	李茜, 石金辉, 李鹏志, 姚小红, 高会旺 (1520)
辽东湾大气中多环芳烃的含量组成及气粒分配	张玉凤, 宋永刚, 田金, 赵海勃, 杨爽, 吴金浩 (1527)
典型地区大气新型卤代阻燃剂污染特征、来源分析及人体暴露	李琦路, 杨孔, 李军, 张干 (1537)
苏州工业园区室内外颗粒物中多溴联苯醚污染特征及人体暴露水平	王俊霞, 顾海东, 张占恩, 钱飞跃 (1544)
上海市大气污染对感冒疾病相对危险度的影响	杨丝絮, 马玉霞, 周建丁, 周骥 (1552)
城镇化河流溶解性有机质的荧光特性与水质相关性: 以宁波市北仑区芦江为例	曹昌丽, 梁梦琦, 何桂英, 纵亚男, 唐剑锋 (1560)
艾比湖区域景观格局与河流水质关系探讨	曹灿, 张飞, 阿依尼格·亚力坤, 朱世丹, 郭苗, 阿丽米热·塔力甫江, Kung Hsiangte (1568)
三峡澎溪河水华期间水体 CH ₄ 浓度及其通量变化特征初探	秦宇, 张渝阳, 李哲, 马健荣 (1578)
漓江段地表水体旱季硝酸盐动态变化特征及其来源	苗迎, 章程, 肖琼, 赵海娟, 李成习 (1589)
柳江流域饮用水源地重金属污染与健康风险评价	张清华, 韦永著, 曹建华, 于爽 (1598)
黄柏河流域梯级水库沉积物磷形态特征及磷释放通量分析	刘佳, 雷丹, 李琼, 王亮, 张平, 肖尚斌 (1608)
白洋淀典型持久性有机污染物污染特征与风险评估	高秋生, 焦立新, 杨柳, 田自强, 杨苏文, 安月霞, 贾海斌, 崔志丹 (1616)
典型有机氯农药在珠三角地区多介质环境中的归趋模拟	高梓闻, 徐月, 亦如瀚 (1628)
河道水旁路处理中试工艺中 PPCPs 的去除效果及机制	李力, 朱楦, 白瑶, 赵健, 曹之淇, 郭泓利, 李凌云, 左剑思 (1637)
蔡普生在氯消毒过程中的去除、转化与风险评价	樊鑫鑫, 杜尔登, 李佳琦, 赵丽丽, 王聿琳, 彭明国 (1645)
真空紫外/氯处理饮用水典型致嗅物质	孙昕, 张焱, 史路肖, 陈笑涵, 唐晓 (1654)
热活化过硫酸盐降解三氯生	蒋梦迪, 张清越, 季跃飞, 陆鸢鹤 (1661)
水体模拟颗粒物对四环素的吸附特性及基本规律	徐龙凤, 魏群山, 吕强, 唐立朋, 刘亚男, 柳建设 (1668)
海水优化 ANAMMOX 包埋固定化及其处理含海水污水的脱氮性能	单晓静, 于德爽, 李津, 陈光辉, 冯莉, 吕廷廷, 邵青 (1677)
外源甜菜碱投加增强高盐废水厌氧氨氧化脱氮性能	于德爽, 吴国栋, 李津, 周同, 王晓静 (1688)
硝化污泥富集及其强化高氨氮冲击的中试研究	盛晓琳, 崔灿灿, 王家德, 刘锐, 徐峰, 陈吕军 (1697)
分段进水对改良 A ² /O-BAF 双污泥系统反硝化除磷脱氮的影响	南彦斌, 彭永臻, 曾立云, 赵智超, 刘宏, 李慧, 陈永志 (1704)
不同温度下应用比值控制实现连续流好氧颗粒污泥短程硝化	梁东博, 卞伟, 阚睿哲, 王文啸, 赵青, 孙艺齐, 李军 (1713)
智能化曝气控制 A/O 工艺活性污泥特性演化对内源反硝化脱氮的作用机制	徐旻昶, 胡湛波, 张穗生, 李昊航 (1720)
温度对一体式厌氧流化床膜生物反应器运行效能及微生物群落结构的影响	李玥, 胡奇, 高文大 (1731)
污泥臭原位减量工艺中抗生素的去除	汪鲁, 黄伟伟, 李彦刚, 强志民 (1739)
零价铁对污泥厌氧消化过程中四环素抗性基因水平转移的作用影响	杨帆, 徐雯丽, 钱雅洁, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (1748)
环境因子对全自养脱氮颗粒污泥功能菌协同效应的影响	陈希, 钱飞跃, 王建芳, 高军军, 沈耀良, 贾珣 (1756)
后置固相反硝化滤池工艺沿程微生物特性	张千, 吉芳英, 徐璇 (1763)
复合菌株 YH01 + YH02 强化 SBR 好氧反硝化脱氮及菌群结构分析	陈海升, 曹刚, 张迪, 黄郑郑, 莫测辉 (1773)
氮磷失衡下膨胀污泥性能及膨胀菌群落结构变化	贺雪濛, 丁丽丽, 张璐璐, 顾卓江, 任洪强 (1782)
1 株铜绿假单胞菌对砷的降解特性及代谢途径	李想, 张雪英, 周俊, 宋军, 王建刚, 雍晓雨, 贾红华 (1794)
铜尾矿库坝面土壤微生物群落动态的驱动因子	李磊, 景炬辉, 刘晋仙, 柴宝峰 (1804)
垦殖对桂林会仙喀斯特湿地土壤养分与微生物活性的影响	黄科朝, 沈育伊, 徐广平, 黄玉清, 张德楠, 孙英杰, 李艳琼, 何文, 周龙武 (1813)
黄土丘陵区退耕还林还草对土壤细菌群落结构的影响	陈孟立, 曾全超, 黄懿梅, 倪银霞 (1824)
河岸带表层土壤的铁氨氧化 (Feammox) 脱氮机制的探究	丁帮琛, 李正魁, 朱鸿杰, 陈湜, 覃云斌, 杨建华, 胡优优 (1833)
藏猪扰动作用下的高寒草甸土壤退化特征及微生物群落结构变化	展鹏飞, 肖德荣, 闫鹏飞, 刘振亚, 马金成, 陈志明, 格茸, 田伟, 王行 (1840)
深圳湾典型红树植物根表铁膜及其重金属富集特征	沈小雪, 李瑞利, 柴民伟, 邱国玉 (1851)
香港周边海域野生鱼体内 DDTs 和 PCBs 的含量分布和食用风险评估	苏杨, 鲍恋君, 曾永平 (1861)
偏远高山湿地土壤中 PAHs 污染特征: 以神农架大九湖为例	胡天鹏, 邢新丽, 柯艳萍, 毛瑶, 黎荧, 郑煌, 喻月, 张家泉, 祁士华 (1872)
西南地区典型森林水库土壤和沉积物汞的迁移转化特征	孙涛, 马明, 王永敏, 安思危, 王定勇 (1880)
广西西江流域土壤镉含量特征及风险评估	宋波, 杨子杰, 张云霞, 王佛鹏, 周浪, 李黎, 钟雪梅 (1888)
长期施肥对旱地红壤及作物中砷累积的影响	张蓉, 余光辉, 李亚青 (1901)
三元土壤调理剂对田间水稻镉累积转运的影响	辜娇峰, 周航, 贾润语, 王倩倩, 李虹呈, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (1910)
稻田土壤性质与水稻镉含量的定量关系	王梦梦, 何梦媛, 苏德纯 (1918)
钙基膨润土辅助对堆肥及土壤 Cu、Zn 形态转化和白菜吸收的影响	赵军超, 王权, 任秀娜, 李荣华, Mukesh Kumar Awasthi, Altaf Hussain Lahori, 张增强 (1926)
外源碳和氮输入对降水变化下土壤呼吸的短期影响	贺云龙, 齐玉春, 彭琴, 董云社, 郭树芳, 闫钟清, 李兆林, 王丽芹 (1934)
模拟降水量减少对大豆-冬小麦轮作农田土壤呼吸的影响	王朝辉, 陈书涛, 孙鹭, 胡正华 (1943)
紫色土丘陵区农田源头沟渠一氧化氮排放的季节差异及影响因素	田琳琳, 任光前, 朱波 (1952)
季节非对称升温对喀斯特土壤 CO ₂ 释放的影响	唐国勇, 张春华, 刘方炎, 李昆, 马艳 (1962)
《环境科学》征订启事 (1472) 《环境科学》征稿简则 (1511) 信息 (1755, 1839, 1925)	

冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的分布特征及影响因素

张帅¹, 石金辉^{1,2*}, 姚小红^{1,2}, 高会旺^{1,2}

(1. 中国海洋大学环境科学与工程学院, 青岛 266100; 2. 中国海洋大学海洋环境与生态教育部重点实验室, 青岛 266100)

摘要: 于 2012-12 ~ 2013-04 在青岛采集 119 个气溶胶样品, 分析了冬、春季节气溶胶中乙二酸的浓度分布特征及影响因素。青岛大气气溶胶中乙二酸的浓度冬季为 31 ~ 370 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均为 104 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$; 春季为 11 ~ 1 926 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均为 400 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 二者存在显著的季节差异。不同天气状况影响气溶胶中乙二酸的分布, 霾天时乙二酸浓度最高, 其次是沙尘天, 雾天与晴天时的基本相当, 雨天时的浓度最低。青岛大气气溶胶中乙二酸与温度和太阳辐射之间存在显著正相关关系, 表明光化学氧化的二次生成过程对气溶胶中的乙二酸有一定影响。冬、春季气溶胶中乙二酸二次生成的机理可能不同, 冬季主要为水相氧化过程、春季为气相氧化过程。PMF 源解析结果也显示, 二次源是青岛大气气溶胶中乙二酸的主要来源, 其贡献冬季约为 45%、春季约为 70%。春季青岛气溶胶中乙二酸浓度显著高于冬季, 其主要原因可能是春季温度和太阳辐射显著高于冬季, 增强了颗粒态乙二酸的二次生成过程。

关键词: 乙二酸; 二元羧酸; 气溶胶; 青岛; PMF 源解析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)04-1512-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201707168

Distribution of Oxalate in Atmospheric Aerosols and the Related Influencing Factors in Qingdao, During Winter and Spring

ZHANG Shuai¹, SHI Jin-hui^{1,2*}, YAO Xiao-hong^{1,2}, GAO Hui-wang^{1,2}

(1. College of Environmental Science and Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 2. Key Laboratory of Marine Environmental Science and Ecology, Ministry of Education, Ocean University of China, Qingdao 266100, China)

Abstract: A total of 119 total suspended particle (TSP) samples were collected in Qingdao from December 2012 to April 2013. Concentrations of oxalate in TSP were measured to investigate the distributional characteristics of oxalate and the related influencing factors, in winter and spring. The concentrations of oxalate in Qingdao aerosols were 31-370 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ with an average of 104 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ in winter, and 11-1 926 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ with an average of 400 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ in spring, with a significant difference between the concentrations in the two seasons. Different weather conditions affected the distribution of oxalate in aerosols. The oxalate concentration in TSP was the highest in the hazy days, followed by that in the dusty days, while this concentration in foggy days was close to that in the clear days, and the lowest concentration of oxalate appeared in the rainy days. Oxalate in Qingdao aerosols exhibited a significant positive correlation with temperature and solar radiation, suggesting that the secondary production of oxalic acid via photochemical oxidation has an important contribution to the oxalate concentrations in aerosols. The mechanisms of secondary formation of oxalate in aerosols in winter and spring are possibly different, with the aqueous phase oxidation process predominating in winter and the gas-phase oxidation-driven process predominating in spring. The results of PMF source analysis also showed that the secondary formation is the main source of oxalate in Qingdao aerosol, and its contribution to oxalate production is nearly 45% in winter and 70% in spring. The concentration of oxalate in spring aerosol was significantly higher than that in winter aerosol, the main reason of which was that temperature and solar radiation in spring were significantly higher than those in winter, promoting the secondary formation of particulate oxalate.

Key words: oxalate; dicarboxylic acid; aerosol; Qingdao; PMF source analysis

低分子量的二元羧酸普遍存在于对流层的大气气溶胶中, 是气溶胶中重要的水溶性有机组分^[1,2]。研究报道, 二元羧酸及其相关组分对北太平洋大气气溶胶中水溶性有机碳的贡献为 4% ~ 52%^[3], 对太平洋中部大气气溶胶中总碳的贡献为 16%^[4]。由于大气气溶胶中的二元羧酸能够改变颗粒物的吸湿性, 从而增强它们作为云凝结核的能力, 影响全球的能量平衡, 进而可能对区域和全球气候变化产生重要影响^[5,6], 因此, 有关大气气溶胶中二元羧

酸的研究正在受到广泛关注。

乙二酸是大气气溶胶中二元羧酸的最主要组分^[7], 其可以来自一次源和二次源的贡献。一次源包括汽车尾气、化石燃料燃烧、烹饪、生物质燃烧

收稿日期: 2017-07-21; 修订日期: 2017-09-14

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFC0200504); 国家自然科学基金项目(41210008)

作者简介: 张帅(1993 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气环境化学, E-mail: 784400842@qq.com

* 通信作者, E-mail: engroup@ouc.edu.cn

和海洋源等的排放^[1]，二次源包括气相有机前体物光化学氧化生成的气态乙二酸在颗粒物上的凝结^[8]，以及有机前体物在气溶胶水相中发生的化学氧化生成乙二酸^[9,10]。气溶胶中乙二酸的去除主要通过湿沉降过程。Myriokefalitakis 等^[11]的模式研究显示，全球尺度上湿沉降可去除大气中约 62% 的乙二酸，干沉降去除的仅为 4%，其余 34% 是通过乙二酸在云中与 OH 和 NO 自由基反应去除。

青岛地处山东半岛东南部，东南濒临黄海，位于东亚陆源气溶胶向西北太平洋传输的重要通道上，其大气气溶胶的理化性质同时受到陆源和海洋的共同影响。本文利用 2012 年 12 月~2013 年 4 月在青岛采集的总悬浮颗粒物样品 (TSP)，分析其中乙二酸的浓度，讨论了冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的浓度分布特征及影响因素，以期为认识近海大气中乙二酸对区域气候变化的影响奠定基础。

1 材料与方法

1.1 样品采集

于 2012 年 12 月 1 日~2013 年 1 月 31 日 (冬季) 及 3 月 1 日~4 月 31 日 (春季)，在青岛采集 TSP 样品共计 119 个，每个样品的采集时间为 12:00 至次日的 12:00。采集地点设在中国海洋大学鱼山

校区达尔文馆楼顶 (36°06'N, 120°33'E, 海拔约为 65 m)，采样点附近无明显的工业污染源。采样仪器为 KC-1000 型大流量采样器 (青岛崂山电子有限公司)，采样流量为 1.05 m³·min⁻¹。采样膜为预先酸洗过的 Whatman41 纤维滤膜，采样结束后将滤膜对折，放入洁净的聚乙烯封口袋中，于 -20℃ 冷冻保存直至分析。

采样同期，记录中国气象局提供的 3 h 一次的 Micaps 天气资料，包括温度、相对湿度、风速、风向、能见度和天气状况等，太阳辐射数据从 <http://www.arl.noaa.gov> 下载。计算每个样品 24 h 采样周期中气象参数的平均值 (风向为矢量平均值)，太阳辐射为每样品采集期间小时辐射数据积分求得的总辐射量。每个样品采集期间的天气状况以 >70% 的采样时间出现的天气状况计，即样品采集时若 >70% 的采样时间内出现雾、霾或烟雾等天气时，即标记为此样品受到该天气影响；若采样期间有降雨，即标记为受降雨影响；沙尘样品的分类结合天气图资料 (出现扬沙和浮尘) 和观测数据 (样品中代表地壳源的 Fe 和 Al 浓度超过 10 000 ng·m⁻³) 确定；若样品采集期间两种或多种天气交替出现则记为混合样品；未受特殊天气影响的样品标记为晴天 (表 1)。

表 1 采样期间受不同天气影响的样品数

Table 1 Number of samples affected by different weathers during sampling								
季节	霾天	雾天	烟雾	沙尘	雨天	晴天	混合	总计
冬季	5	17	1	0	3	25	10	61
春季	9	2	0	2	0	30	15	58
合计	14	19	1	2	3	55	25	119

1.2 样品处理及分析

截取一定面积的样品膜，加入一定体积超纯水于冰水浴下超声萃取 40 min，将萃取液通过 0.45 μm 滤膜过滤后定容至 100 mL，滤液用来分析乙二酸和常量无机离子。同时，截取同批次的空白膜，用相同方法得到空白样品滤液进行对比分析。采用 ICS-3000 离子色谱仪 (美国戴安公司) 进行分析，阳离子 (Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺) 使用 CS12A 分析柱进行测定，淋洗液为 18 mmol·L⁻¹ 的甲基磺酸 (MSA)，流速为 1.00 mL·min⁻¹。阴离子 (F⁻、Br⁻、PO₄³⁻、Cl⁻、NO₂⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻、乙二酸) 使用 AS11-HC 分析柱进行测定，淋洗液为 KOH 溶液，梯度淋洗，流速为 1.20 mL·min⁻¹。样品分析的详细过程和质量控制见文献 [12]。

2 结果与讨论

2.1 青岛大气气溶胶中乙二酸的浓度分布特征

2012 年 12 月~2013 年 4 月采样期间，青岛大气气溶胶中乙二酸的浓度为 11.1~1 925.9 ng·m⁻³，平均浓度为 (248.3 ± 291.8) ng·m⁻³ (图 1)。冬季，气溶胶中乙二酸的浓度为 31.9~369.9 ng·m⁻³，平均为 (103.8 ± 75.9) ng·m⁻³；春季，气溶胶中乙二酸的浓度为 11.1~1 925.9 ng·m⁻³，平均为 (400.3 ± 352.7) ng·m⁻³，在统计意义上显著高于冬季 ($P < 0.05$)。Kundu 等^[13]在研究韩国济州岛大气气溶胶中乙二酸时也发现其存在春季 (537 ng·m⁻³) 高于冬季 (349 ng·m⁻³) 的季节变化趋势，并解释这可能是不同季节乙二酸的来源和光化学过

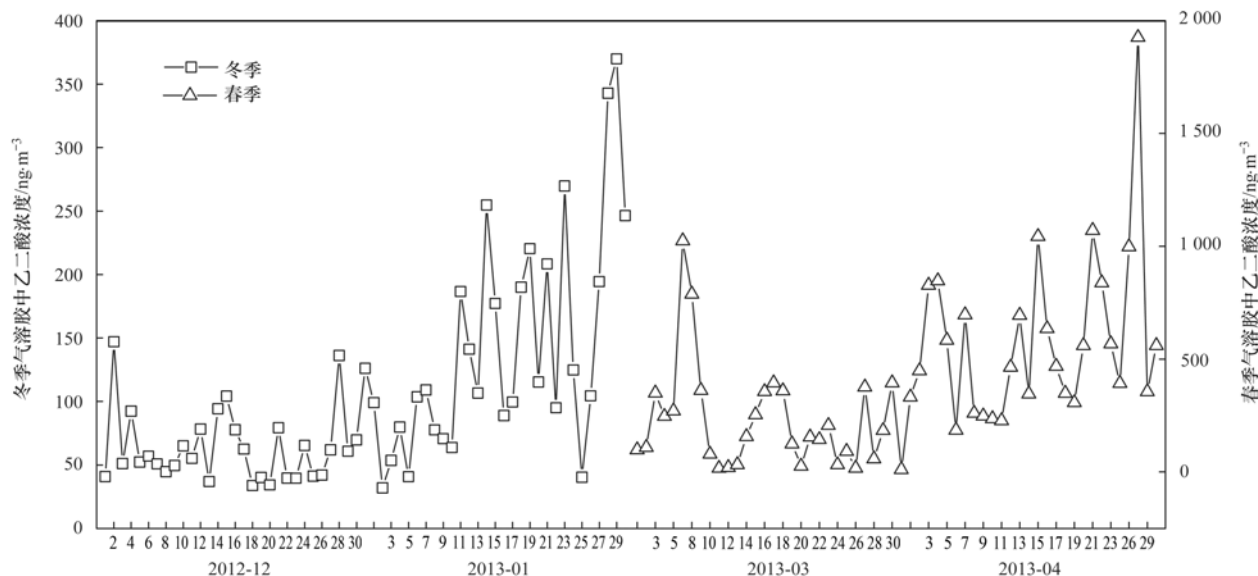


图1 冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的浓度

Fig. 1 Concentrations of oxalate in the atmospheric aerosols collected from Qingdao during winter and spring

程不同的结果. 青岛气溶胶中乙二酸的浓度明显低于印度新德里 ($1431 \pm 990 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[14] 和北京[白天 (607 ± 398) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$; 夜晚 (806 ± 604) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$]^[15] 等污染城市的观测结果, 与韩国济州岛^[13] 和东海春季 ($397 \pm 374 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[12] 的观测结果相近, 但明显高于西北太平洋 [$30^\circ \sim 45^\circ \text{N}$, (24.5 ± 14.9) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$; $10^\circ \sim 30^\circ \text{N}$, (11.0 ± 5.2) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$]^[3] 和南大洋 ($2.4 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[4] 等开阔大洋的观测结果.

观测期间, 青岛多次出现雾、霾等特殊天气过程(表1), 所以有机会比较不同天气下大气气溶胶中乙二酸的浓度分布. 平均而言, 受霾天影响的样品中乙二酸浓度最高, 为 (512.5 ± 500.8) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 受沙尘影响的样品中乙二酸浓度也较高, 为 (311.0 ± 71.3) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 雾天和晴天采集的样品中乙二酸浓度相当, 分别为 (217.4 ± 129.5) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 (169.1 ± 202.5) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 受降雨和烟雾影响的样品中乙二酸的浓度最低, 分别为 (62.1 ± 46.0) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $40.7 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ (图2). 统计分析显示, 受霾天影响的样品与晴天时的样品、受沙尘影响的样品与雨天时的样品中乙二酸浓度存在显著性差异 ($P < 0.05$), 但雾天与雨天和晴天样品中的乙二酸浓度均无显著性差异. 观测期间, 受烟雾影响的样品只有一个, 可能缺乏代表性, 所以对该样品不做讨论. 受霾天影响的样品中乙二酸浓度最高, 这可能是由于霾天大气层结稳定, 风速较低易造成污染物积聚的缘故^[16,17], 尽管雾天时大气层结也稳定, 但雾天存在着一定的湿清除作用, 所以雾天时气溶胶中乙二

酸的浓度低于霾天. 受沙尘影响的样品中乙二酸浓度较高, 这是由于沙尘天时颗粒物浓度总体水平高, 而乙二酸可随沙尘颗粒一次排放或二次吸附在碱性沙尘颗粒上^[18]. 受降雨影响的样品中乙二酸的浓度明显降低, 这是由于湿沉降的清除作用, 且雨天时太阳辐射低和生物源释放减少的缘故^[7].

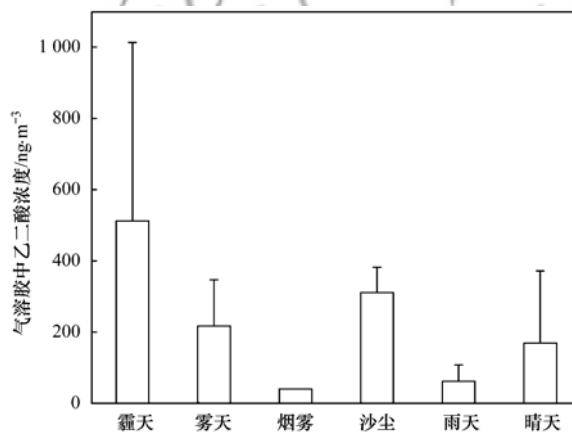


图2 不同天气条件下青岛大气气溶胶中乙二酸的浓度

Fig. 2 Concentrations of oxalate in Qingdao atmospheric aerosols under different weather conditions

2.2 影响青岛大气气溶胶中乙二酸浓度分布的因素

2.2.1 颗粒物效应

沙尘气溶胶中乙二酸的浓度明显高于雨天和晴天样品中的浓度(图2), 表明颗粒物效应可能对气溶胶中乙二酸的浓度分布有一定影响. 观测期间, 青岛大气气溶胶中乙二酸浓度春季显著高于冬季, 但比较冬、春季气溶胶中颗粒物的质量浓度发现二

者基本相当,平均浓度分别为 $(147.4 \pm 70.4) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(144.4 \pm 72.5) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 无显著性差异. 比较气溶胶中乙二酸浓度与颗粒物质量浓度的关系(图3),发现冬季乙二酸浓度随颗粒物质量浓度增加而增加,二者存在显著相关关系($P < 0.01$),但春季二者则无相关关系,表明春季气溶胶中较高的乙二酸浓度不是颗粒物的累积效应造成的.

进一步比较冬、春季大气乙二酸在单位质量颗粒物上的浓度(气溶胶中乙二酸的浓度与颗粒物质量浓度的比值),发现春季乙二酸的浓度平均为 $3448.6 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$, 显著高于冬季的 $709.6 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ ($P < 0.05$). 与冬季相比,春季乙二酸在颗粒物上有

更大的负载,这可能是由于春季有更适宜的反应条件促进了有机气态前体物反应生成乙二酸,或者春季有更强的源强提供较多的反应前体物,或者春季大气乙二酸有更强的一次源强. Laongsri 等^[8]的研究曾报道春季较强的光照水平和植物生长释放了更多的挥发性有机前体物,增强了颗粒态乙二酸的二次生成,且春季温度相比夏季低减少了乙二酸分配进入气相的比例,这可能是造成与其他季节相比春季气溶胶中乙二酸浓度最高的原因. Guo 等^[19]也报道温暖季节气溶胶中乙二酸的浓度高于寒冷季节可能是由于温暖季节大气乙二酸的二次生成过程增强的缘故.

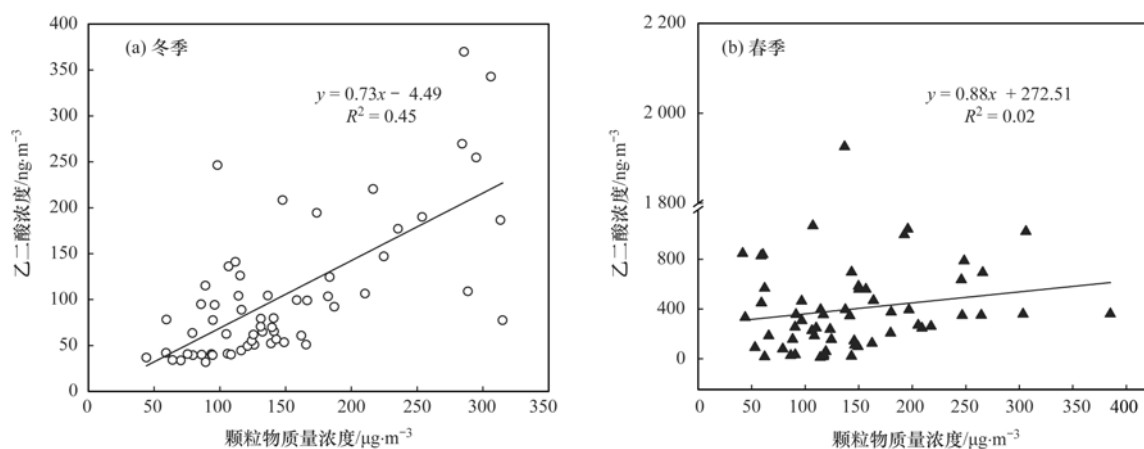


图3 冬、春季青岛气溶胶中乙二酸与颗粒物质量浓度的关系

Fig. 3 Relationship between oxalate and particle mass concentration in Qingdao aerosols during winter and spring

2.2.2 气象因素的影响

观测期间,青岛冬季温度明显低于春季,平均分别为 -0.6°C 和 7.2°C ;相对湿度冬季高于春季,平均分别为 68.1% 和 61.2% ;风速冬、春季相当,分别为 $4.2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 和 $4.3 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$,冬季主导方向为西北风,春季主导风向为东南风和西北风;太阳辐射量冬季平均为 $(10.2 \pm 2.2) \text{ MJ} \cdot \text{m}^{-2}$,明显低于春季的 $(22.1 \pm 4.4) \text{ MJ} \cdot \text{m}^{-2}$. 青岛大气气溶胶中乙二酸与气象因素的相关性分析结果显示(表2),冬、春季气溶胶中乙二酸和温度、太阳辐射量呈显著正相关关系,表明温度和太阳辐射在乙二酸二次生成的光化学氧化过程中起重要作用^[1]. 温度越高、光照水平越强越有利于乙二酸的二次生成^[7,8],因此,春季温度和太阳辐射显著高于冬季,可能是造成春季青岛气溶胶中乙二酸浓度显著高于冬季的主要原因. 冬季乙二酸与相对湿度呈显著正相关关系,但春季二者无显著相关关系,这表明冬季气溶胶中乙二酸的二次生成过程可能主要来自水相氧化过程,而春季乙二酸的二次生成则以气相氧化过程为主

导^[20]. 冬季气溶胶中乙二酸与 SO_4^{2-} 的相关关系($r = 0.9$)明显强于春季($r = 0.5$),也支持了冬季气溶胶中的乙二酸主要来自液相氧化过程^[12]. 冬、春季气溶胶中的乙二酸与能见度均呈显著负相关,这是由于能见度越低,表征大气层结越稳定,易造成污染物的积聚. 另外,春季相比于冬季出现了更多的霾天和沙尘天、更少的雨天和雾天(表1),可能也是春季青岛气溶胶中乙二酸浓度显著高于冬季的原因. 冬、春季节的主导风向不同,冬季气溶胶主要受来自西北方向气团的影响,春季同时受来自东南和西北方向气团的影响,因此,冬、春季节气溶胶中乙二酸浓度的差异还可能与其来源有一定关系.

2.2.3 气溶胶来源的影响

采用正矩阵因子分析法(positive matrix factorization, PMF)对青岛气溶胶的来源进行定量解析. PMF方法是当前一种有效的源解析方法,已经广泛应用于 $\text{PM}_{2.5}$ 、TSP、干湿沉降以及 VOCs 等数据的源解析^[21,22]. 本文采用 EPA PMF 3.0 模型进

表 2 青岛大气气溶胶中乙二酸与气象参数的皮尔逊相关系数¹⁾

Table 2 Pearson's correlation coefficient of particle oxalate and meteorological conditions in the Qingdao atmosphere

项目	温度	相对湿度	风速	能见度	辐射量
全部(<i>n</i> = 119)	0.628 **	0.100	-0.023	-0.215 *	0.558 **
冬季(<i>n</i> = 61)	0.301 *	0.579 **	-0.129	-0.694 **	0.289 *
春季(<i>n</i> = 58)	0.549 **	0.208	-0.041	-0.449 **	0.276 *

1) ** 表示 $P < 0.01$, * 表示 $P < 0.05$

行分析, 在分析中除考虑本文所测的乙二酸和 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 等 8 种常量离子外, 还将样品中 Fe、Al、V、Mn、Co、Cu、Zn、As、Sr、Cd、Ba、Pb、Ni 等 13 种微量元素的分析结果^[22] 引入模型, 以便更好地对气溶胶的化学成分谱进行定量的来源解析. 经过多次运行分析比较, 最终确定冬季和春季青岛气溶胶的来源均为受到 6 个因子的影响比较合理, 各组分模型模拟值与实测值基本一致, 除 V、Mn、Sr、As 的模拟值与实测值的相关系数为 0.8 ~ 0.9 外, 其他组分的相关系数均大于 0.9, 模型模拟结果可以反映各分组的真实信息.

PMF 解析结果显示, 冬季青岛大气气溶胶主要

受到 6 个因子的影响(图 4). 因子 1 中土壤源的代表性元素 Fe 和 Al 的载荷最大, 分别贡献了其总量的 48% 和 68%, 其他主要来自土壤源的元素, 如 Ca、Co、Mn、Ba、Sr 也有较大载荷, 贡献了其总量的 36% ~ 49%, 因此, 判断因子 1 为土壤源; 因子 2 中海洋源的代表元素^[23] Na^+ 、 Cl^- 和 Mg^{2+} 的载荷最大, 分别贡献了其总量的 52%、42% 和 32%, 而其他元素的载荷均较低, 因此因子 2 为海洋源; 因子 3 中 Cu 的载荷最大, 为其总量的 52%, Cu 常被认为是金属冶炼废气排放的标志性元素^[24], 因此因子 3 确定为冶金工业源; 因子 4 中生物质燃烧的代表性元素^[25] K^+ 的载荷最高, 贡献了其总浓度的 44%, 而代表土壤源的 Al、Fe 的载荷均较低, 因此

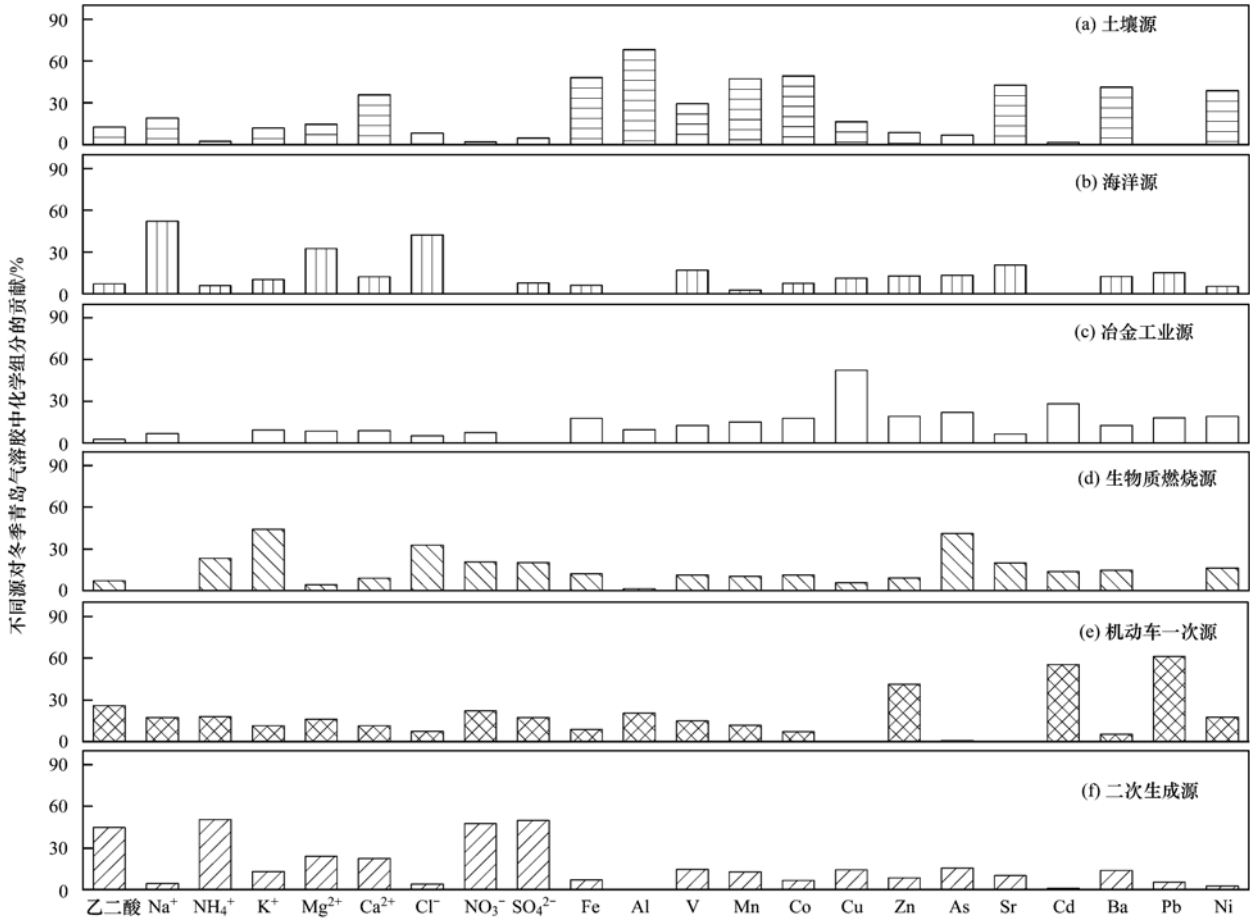


图 4 冬季青岛大气气溶胶 PMF 解析的源轮廓

Fig. 4 Source profiles of Qingdao aerosols in winter from PMF

因子 4 为生物质燃烧源; 因子 5 中 Pb、Cd 和 Zn 有较大载荷, 分别贡献了其总量的 61%、55% 和 41%, Pb 和 Cd 常被认为是机动车燃油排放的产物^[24], Zn 可来自于机动车润滑油、刹车片和轮胎的磨损^[26], 因此确定因子 5 是机动车一次源; 因子 6 中 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 有较大载荷, 分别贡献了其总量的 50%、50% 和 48%, 这些离子主要来自大

气中 NH_3 、 SO_2 、 NO_x 等通过氧化反应、气-粒转化反应及颗粒物表面非均相反应等生成的二次反应产物^[27], 因此, 确定因子 6 代表二次源. 春季青岛大气气溶胶主要也受到 6 个因子的影响(图 5), 同理可以确定这 6 个因子分别为二次生成源、机动车一次排放源、生物质燃烧源、土壤源、冶金工业源和海洋源.

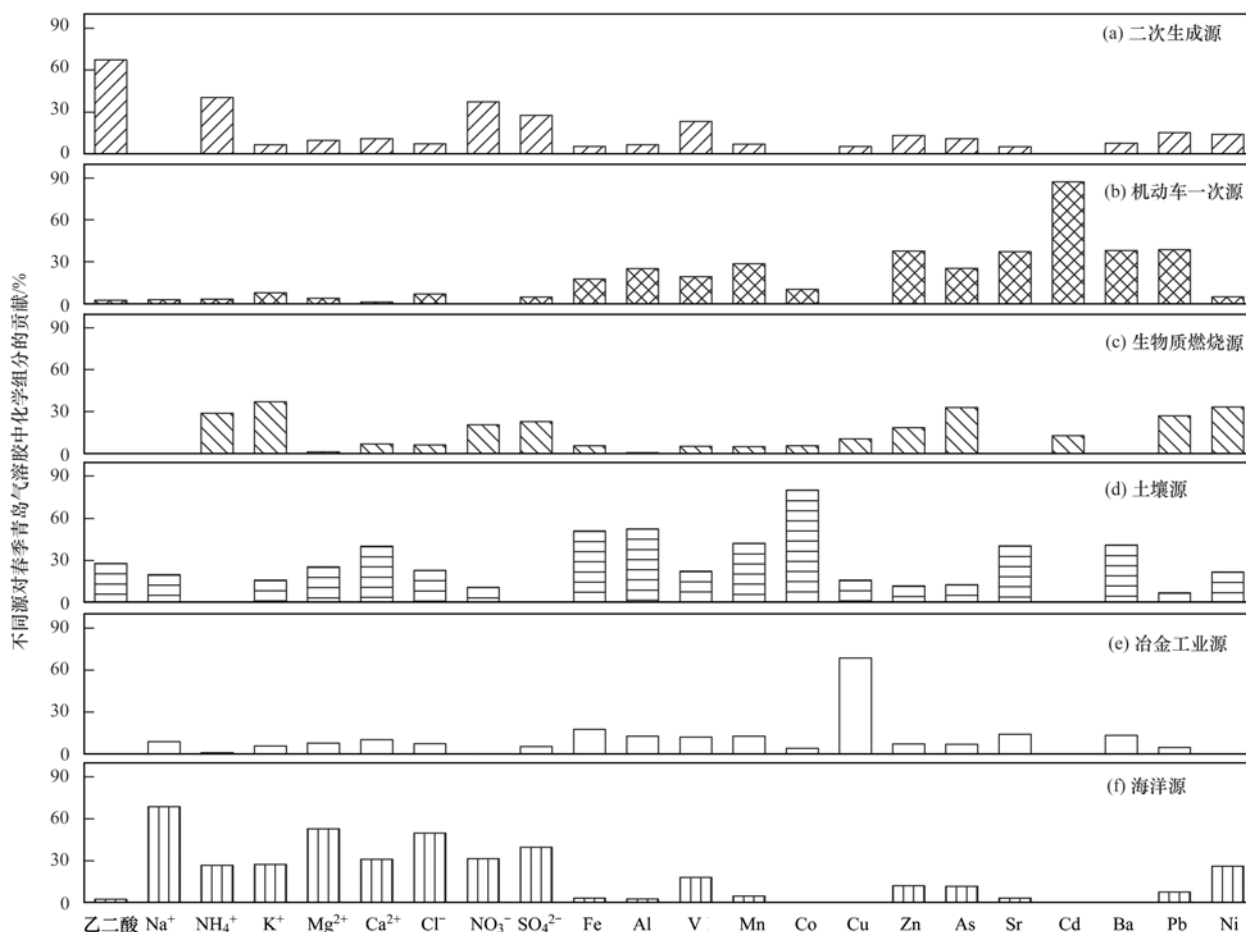


图 5 春季青岛大气气溶胶 PMF 解析的源轮廓

Fig. 5 Source profiles of Qingdao aerosols in spring from PMF

综上所述, 冬季和春季青岛大气气溶胶均受到二次生成源、机动车一次排放源、生物质燃烧源、冶金工业源、土壤源和海洋源等 6 个因子的影响. 它们对冬季气溶胶中乙二酸的贡献以二次生成源的最大, 为 44.8%, 其次是机动车一次源和土壤源, 分别贡献了 26.0% 和 12.6%, 海洋源、生物质燃烧源和冶金工业源对青岛气溶胶中乙二酸的贡献较小, 分别为 7.2%、7.0% 和 2.4% (图 6). 对春季气溶胶中乙二酸的贡献, 也以二次生成源的贡献最大, 为 67.3%, 其次是土壤源, 贡献了 27.8%, 机动车一次源和海洋源各贡献了约 2.5%, 生物质燃烧源和冶金工业源对春季气溶胶中乙二酸的贡献几

乎可以忽略不计. 由 PMF 源解析结果可知, 春季气溶胶中的乙二酸约 70% 来自二次生成, 冬季的约为 45%, 这可能是春季大气中有更多乙二酸生物源前体物的贡献^[8,28], 且春季较高的温度和太阳辐射量为其二次生成过程提供了适宜的反应条件. 春季土壤源对乙二酸的贡献较大, 有研究表明, 乙二酸与碱性沙尘气溶胶的中和反应可减少其分配进入气相的比例, 从而造成乙二酸在沙尘气溶胶上的富集^[29]. 另外, Dutton 等^[30]和 Gadd^[31]的早期研究指出, 土壤中真菌的代谢作用可将柠檬酸和乙醛酸水解为草酰乙酸, 副产物可产生乙二酸盐, 因此, 土壤扬尘是大气粗颗粒中乙二酸盐的来源. 观测期间

受沙尘影响的两个样品均采集于春季(表1),这可能是春季气溶胶中乙二酸受土壤源贡献比例更大的原因。

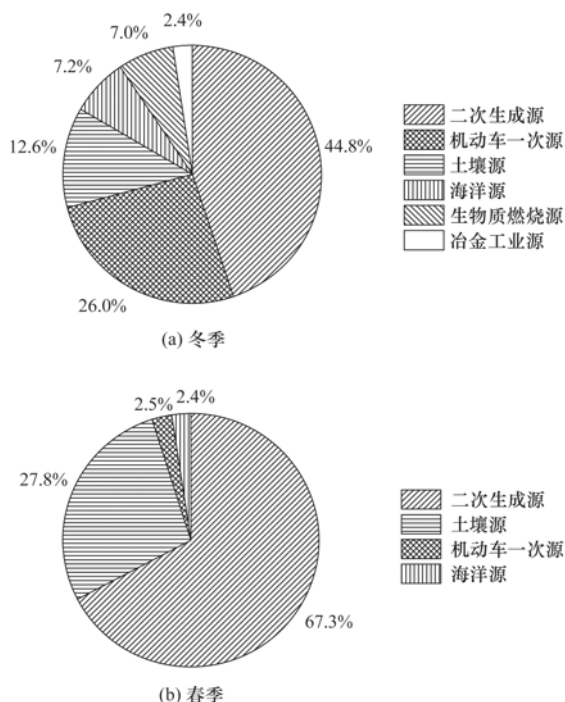


图6 不同源对冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的贡献

Fig. 6 Contributions of different sources to oxalate in Qingdao aerosols during winter and spring

3 结论

(1) 青岛大气气溶胶中乙二酸的浓度冬季为 $(103.8 \pm 75.9) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 春季为 $(400.3 \pm 352.7) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 春季显著高于冬季. 不同天气状况影响气溶胶中乙二酸的分布, 霾天时乙二酸浓度最高, 其次是沙尘天, 雾天与晴天时的基本相当, 雨天时气溶胶中乙二酸的浓度最低.

(2) 冬季气溶胶中乙二酸浓度与颗粒物浓度呈显著正相关, 表明其与颗粒物累积有一定的关系; 春季二者之间无显著相关关系, 但春季乙二酸在颗粒物上有更大负载. 春季温度和太阳辐射显著高于冬季, 可能是造成春季乙二酸浓度显著高于冬季的主要原因.

(3) 冬、春季气溶胶中乙二酸与温度和太阳辐射均有显著正相关关系, 表明光化学氧化的二次生成过程对气溶胶中乙二酸有重要贡献, 其中冬季气溶胶中乙二酸的二次生成可能主要来自水相氧化过程, 春季的则可能主要来自气相氧化过程.

(4) 二次源是青岛大气气溶胶中乙二酸的主要来源, 其贡献冬季约为45%、春季约为70%. 冬季

气溶胶中乙二酸来自机动车一次源的贡献为26%, 土壤源、海洋源、生物质燃烧源的贡献各约为10%. 春季土壤源的贡献约为30%, 其他源的贡献小于3%.

参考文献:

- [1] Kawamura K, Bikkina S. A review of dicarboxylic acids and related compounds in atmospheric aerosols: Molecular distributions, sources and transformation [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **170**: 140-160.
- [2] Kawamura K, Sakaguchi F. Molecular distributions of water soluble dicarboxylic acids in marine aerosols over the Pacific Ocean including tropics [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1999, **104**(D3): 3501-3509.
- [3] Bikkina S, Kawamura K, Miyazaki Y. Latitudinal distributions of atmospheric dicarboxylic acids, oxocarboxylic acids, and α -dicarbonyls over the western North Pacific: Sources and formation pathways [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2015, **120**(10): 5010-5035.
- [4] Wang H B, Kawamura K, Yamazaki K. Water-Soluble dicarboxylic acids, ketoacids and dicarbonyls in the atmospheric aerosols over the southern ocean and western pacific ocean [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2006, **53**(1): 43-61.
- [5] Kumar P P, Broekhuizen K, Abbatt J P D. Organic acids as cloud condensation nuclei: Laboratory studies of highly soluble and insoluble species [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2003, **3**(3): 509-520.
- [6] Peng C G, Chan M N, Chan C K. The hygroscopic properties of dicarboxylic and multifunctional acids: Measurements and UNIFAC predictions [J]. *Environmental Science & Technology*, 2001, **35**(22): 4495-4501.
- [7] Meng J J, Wang G H, Li J J, *et al.* Seasonal characteristics of oxalic acid and related SOA in the free troposphere of Mt. Hua, central China: Implications for sources and formation mechanisms [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **493**: 1088-1097.
- [8] Laongsri B, Harrison R M. Atmospheric behaviour of particulate oxalate at UK urban background and rural sites [J]. *Atmospheric environment*, 2013, **71**: 319-326.
- [9] Carlton A G, Wiedinmyer C, Kroll J H. A review of secondary organic aerosol (SOA) formation from isoprene [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(14): 4987-5005.
- [10] Ervens B, Turpin B J, Weber R J. Secondary organic aerosol formation in cloud droplets and aqueous particles (aqSOA): a review of laboratory, field and model studies [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(21): 11069-11102.
- [11] Myriokefalitakis S, Tsigaridis K, Mihalopoulos N, *et al.* In-cloud oxalate formation in the global troposphere: a 3-D modeling study [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(12): 5761-5782.
- [12] 陈诚诚, 石金辉, 周冰, 等. 东海大气气溶胶中二元羧酸的分布特征及来源 [J]. *环境科学学报*, 2013, **33**(9): 2378-2387.
- [13] Kundu S, Kawamura K, Lee M. Seasonal variations of diacids,

Chen C C, Shi J H, Zhou B, *et al.* Distributions and sources of dicarboxylic acids in atmospheric aerosols over the East China Sea [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, **33**(9): 2378-2387.

- ketoacids, and α -dicarbonyls in aerosols at Gosan, Jeju Island, South Korea: Implications for sources, formation, and degradation during long-range transport [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2010, **115** (D19): D19307.
- [14] Miyazaki Y, Aggarwal S G, Singh K, *et al.* Dicarboxylic acids and water-soluble organic carbon in aerosols in New Delhi, India, in winter: Characteristics and formation processes [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2009, **114** (D19): D19206.
- [15] He N N, Kawamura K, Okuzawa K, *et al.* Diurnal and temporal variations of water-soluble dicarboxylic acids and related compounds in aerosols from the northern vicinity of Beijing: Implication for photochemical aging during atmospheric transport [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **499**: 154-165.
- [16] Zhao M F, Xiu G X, Qiao T, *et al.* Characteristics of haze pollution episodes and analysis of a typical winter haze process in Shanghai [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2016, **16**(7): 1625-1637.
- [17] Yu G H, Zhang Y, Cho S Y, *et al.* Influence of haze pollution on water-soluble chemical species in $PM_{2.5}$ and size-resolved particles at an urban site during fall [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2017, **57**: 370-382.
- [18] Huang X F, Yu J Z, He L Y, *et al.* Water-soluble organic carbon and oxalate in aerosols at a coastal urban site in China: Size distribution characteristics, sources, and formation mechanisms [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2006, **111** (D22): D22212.
- [19] Guo T F, Li K, Zhu Y J, *et al.* Concentration and size distribution of particulate oxalate in marine and coastal atmospheres-Implication for the increased importance of oxalate in nanometer atmospheric particles [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **142**: 19-31.
- [20] Zhou Y, Huang X H, Bian Q J, *et al.* Sources and atmospheric processes impacting oxalate at a suburban coastal site in Hong Kong: Insights inferred from 1 year hourly measurements [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2015, **120** (18): 9772-9788.
- [21] Wang L, Qi J H, Shi J H, *et al.* Source apportionment of particulate pollutants in the atmosphere over the Northern Yellow Sea [J]. *Atmospheric environment*, 2013, **70**: 425-434.
- [22] 仇帅, 张爱滨, 刘明. 青岛大气总悬浮颗粒物中微量元素的含量特征及其来源解析 [J]. *环境科学学报*, 2015, **35**(6): 1667-1675.
- Qiu S, Zhang A B, Liu M. Concentrations and origins of trace elements in the atmospheric total suspended particulates in Qingdao, China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, **35** (6): 1667-1675.
- [23] Koçak M, Kubilay N, Mihalopoulos N. Ionic composition of lower tropospheric aerosols at a Northeastern Mediterranean site: implications regarding sources and long-range transport [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**(14): 2067-2077.
- [24] 杨卫芬, 银燕, 魏玉香, 等. 霾天气下南京 $PM_{2.5}$ 中金属元素污染特征及来源分析 [J]. *中国环境科学*, 2010, **30**(1): 12-17.
- Yang W F, Yin Y, Wei Y X, *et al.* Characteristics and sources of metal elements in $PM_{2.5}$ during hazy days in Nanjing [J]. *China Environmental Science*, 2010, **30**(1): 12-17.
- [25] Lim J M, Lee J H, Moon J H, *et al.* Source apportionment of PM_{10} at a small industrial area using Positive Matrix Factorization [J]. *Atmospheric Research*, 2010, **95**(1): 88-100.
- [26] 成海容, 王祖武, 冯家良, 等. 武汉市城区大气 $PM_{2.5}$ 的碳组分与源解析 [J]. *生态环境学报*, 2012, **21**(9): 1574-1579.
- Cheng H R, Wang Z W, Feng J L, *et al.* Carbonaceous species composition and source apportionment of $PM_{2.5}$ in urban atmosphere of Wuhan [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2012, **21**(9): 1574-1579.
- [27] Chan C K, Yao X H. Air pollution in mega cities in China [J]. *Atmospheric environment*, 2008, **42**(1): 1-42.
- [28] 郭天锋, 朱玉姣, 于沛然, 等. 青岛城市大气气溶胶中乙二酸的粒径分布及其潜在气候效应 [J]. *城市环境与城市生态*, 2016, **29**(4): 1-6.
- Guo T F, Zhu Y J, Yu P R, *et al.* Size distribution and potential climate effect of particulate oxalate in urban atmosphere of Qingdao City [J]. *Urban Environment & Urban Ecology*, 2016, **29**(4): 1-6.
- [29] Sullivan R C, Prather K A. Investigations of the diurnal cycle and mixing state of oxalic acid in individual particles in Asian aerosol outflow [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(23): 8062-8069.
- [30] Dutton M V, Evans C S. Oxalate production by fungi: its role in pathogenicity and ecology in the soil environment [J]. *Canadian Journal of Microbiology*, 1996, **42**(9): 881-895.
- [31] Gadd G M. Fungal production of citric and oxalic acid: importance in metal speciation, physiology and biogeochemical processes [J]. *Advances in microbial physiology*, 1999, **41**: 47-92.

CONTENTS

Air Pollutant Emission Inventory from Iron and Steel Industry in the Beijing-Tianjin-Hebei Region and Its Impact on PM _{2.5}	DUAN Wen-jiao, LANG Jian-lei, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i> (1445)
Simulation of the Spatio-temporally Resolved PM _{2.5} Aerosol Mass Concentration over the Inland Plain of the Beijing-Tianjin-Hebei Region	HAO Jing, SUN Cheng, GUO Xing-yu, <i>et al.</i> (1455)
Effect of Relative Humidity on Particulate Matter Concentration and Visibility During Winter in Chengdu	LIU Fan, TAN Qin-wen, JIANG Xia, <i>et al.</i> (1466)
Vertical Distributional Characteristics of Inorganic Ions of PM _{2.5} at Mt. Huashan, Inland China	CAO Cong, WANG Ge-hui, WU Can, <i>et al.</i> (1473)
Analysis of the Composition of Atmospheric Fine Particles (PM _{2.5}) Produced by Burning Fireworks	XIE Rui-jia, HOU Hong-xia, CHEN Yong-shan (1484)
Chemical Composition Characteristics of PM _{2.5} Emitted by Medium and Small Capacity Coal-fired Boilers in the Yangtze River Delta Region	XU Jian, HUANG Cheng, LI Li, <i>et al.</i> (1493)
Emission Factors of Heavy Metals in Size-resolved Particles Emitted from Residential Coal Combustion	YAN Qin, KONG Shao-fei, LIU Hai-biao, <i>et al.</i> (1502)
Distribution of Oxalate in Atmospheric Aerosols and the Related Influencing Factors in Qingdao, During Winter and Spring	ZHANG Shuai, SHI Jin-hui, YAO Xiao-hong, <i>et al.</i> (1512)
Concentrations and Solubility of Trace Elements in Atmospheric Precipitation in Qingdao	LI Qian, SHI Jin-hui, LI Peng-zhi, <i>et al.</i> (1520)
Occurrence and Gas-particle Partitioning of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Air of Liaodong Bay	ZHANG Yu-feng, SONG Yong-gang, TIAN Jin, <i>et al.</i> (1527)
Analysis of Sources, Pollution Characteristics, and Human Exposure to Atmospheric New Halogenated Flame Retardants in Selected Areas	LI Qi-lu, YANG Kong, LI Jun, <i>et al.</i> (1537)
Contamination Characterization and Human Exposure Levels to Polybrominated Diphenyl Ethers in Indoor and Outdoor Air in Industrial Park of Suzhou City	WANG Jun-xia, GU Hai-dong, ZHANG Zhan-en, <i>et al.</i> (1544)
Effect of Air Pollution on the Cold Disease in Shanghai	YANG Si-xu, MA Yu-xia, ZHOU Jian-ding, <i>et al.</i> (1552)
Fluorescent Dissolved Organic Matter and Its Correlation with Water Quality in a Urban River: A Case Study of the Lujiang River in Beilun, Ningbo	CAO Chang-li, LIANG Meng-qi, HE Gui-ying, <i>et al.</i> (1560)
Relationship Between Landscape Pattern and Water Quality in the Ebinur Lake Region	CAO Can, ZHANG Fei, Ayinigeer·Yalikun, <i>et al.</i> (1568)
CH ₄ Fluxes During the Algal Bloom in the Pengxi River	QIN Yu, ZHANG Yu-yang, LI Zhe, <i>et al.</i> (1578)
Dynamic Variations and Sources of Nitrate During Dry Season in the Lijiang River	MIAO Ying, ZHANG Cheng, XIAO Qiong, <i>et al.</i> (1589)
Heavy Metal Pollution of the Drinking Water Sources in the Lujiang River Basin, and Related Health Risk Assessments	ZHANG Qing-hua, WEI Yong-zhu, CAO Jian-hua, <i>et al.</i> (1598)
Characteristics of Phosphorus Fractions and Phosphate Diffusion Fluxes of Sediments in Cascade Reservoirs of the Huangbai River	LIU Jia, LEI Dan, LI Qiong, <i>et al.</i> (1608)
Occurrence and Ecological Risk Assessment of Typical Persistent Organic Pollutants in Baiyangdian Lake	GAO Qiu-sheng, JIAO Li-xin, YANG Liu, <i>et al.</i> (1616)
Simulating the Fate of Typical Organochlorine Pesticides in the Multimedia Environment of the Pearl River Delta	GAO Zi-wen, XU Yue, YI Ru-han (1628)
Mechanisms and Efficiencies of Removal of PPCPs by Pilot River Water Bypass Treatment Process	LI Li, ZHU Bing, BAI Yao, <i>et al.</i> (1637)
Chlorination of Naproxen: Removal, Transformation and Risk Assessment	FAN Xin-xin, DU Er-deng, LI Jia-qi, <i>et al.</i> (1645)
Removing Typical Odorants in Drinking Water by Vacuum Ultraviolet Combined with Chlorine	SUN Xin, ZHANG Yi, SHI Lu-xiao, <i>et al.</i> (1654)
Degradation of Triclosan by Heat Activated Persulfate Oxidation	JIANG Meng-di, ZHANG Qing-yue, JI Yue-fei, <i>et al.</i> (1661)
Adsorption of Tetracycline on Simulated Suspended Particles in Water	XU Long-feng, WEI Qun-shan, LÜ Qiang, <i>et al.</i> (1668)
Characteristics and Performance of Embedded ANAMMOX Bacteria in Treating Saline Wastewater	SHAN Xiao-jing, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (1677)
Enhanced Nitrogen Removal of ANAMMOX Treating Saline Wastewater With Betaine Addition	YU De-shuang, WU Guo-dong, LI Jin, <i>et al.</i> (1688)
Pilot-scale Experiment on Enrichment of Nitrifying Activated Sludge and Its Application in Enhancing a Wastewater Biological Treatment System Against Ammonia Shocking Loads	SHENG Xiao-lin, CUI Can-can, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (1697)
Effect of Step Feed on Denitrifying Phosphorus and Nitrate Removal in a Modification of the Two Sludge A ² /O-BAF System	NAN Yan-bin, PENG Yong-zhen, ZENG Li-yun, <i>et al.</i> (1704)
Achieving Partial Nitrification in a Continuous-flow Aerobic Granular Sludge Reactor at Different Temperatures Through Ratio Control	LIANG Dong-bo, BIAN Wei, KAN Rui-zhe, <i>et al.</i> (1713)
Mechanism of Action of Activated Sludge Properties in Nitrogen Removal by Endogenous Denitrification Through an Intelligent Aeration-controlled A/O Process	XU Min-yang, HU Zhan-bo, ZHANG Sui-sheng, <i>et al.</i> (1720)
Effect of Temperature on the Performance and Microbial Community Structure in an Integrated Anaerobic Fluidized-bed Membrane Bioreactor Treating Benzothiazole Wastewater	LI Yue, HU Qi, GAO Da-wen (1731)
Removal of Antibiotics During In-situ Sludge Ozone-reduction Process	WANG Lu, BEN Wei-wei, LI Yan-gang, <i>et al.</i> (1739)
Effect of Zero Valent Iron on the Horizontal Gene Transfer of Tetracycline Resistance Genes During Anaerobic Sludge Digestion Process	YANG Fan, XU Wen-li, QIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1748)
Effects of Environmental Factors on the Synergy of Functional Bacteria in Completely Autotrophic Granular Sludge	CHEN Xi, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (1756)
Microbiological Characteristics of a Post Solid-Phase Denitrification Biofilter Process	ZHANG Qian, JI Fang-ying, XU Xuan (1763)
Aerobic Denitrification and Microbial Community Shift in SBR Bioaugmented with Strains YH01 and YH02	CHEN Hai-sheng, CAO Gang, ZHANG Di, <i>et al.</i> (1773)
Performance, Sludge Characteristics, and the Microbial Community Dynamics of Bulking Sludge Under Different Nitrogen and Phosphorus Imbalances	HE Xue-meng, DING Li-li, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (1782)
Degradation Characteristics and Metabolic Pathway of a Pyrene-Degrading <i>Pseudomonas aeruginosa</i> Strain	LI Xiang, ZHANG Xue-ying, ZHOU Jun, <i>et al.</i> (1794)
Driving Factors of the Dynamics of Microbial Community in a Dam of Copper Mine Tailings	LI Cui, JING Ju-hui, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (1804)
Effects of Reclamation on Soil Nutrients and Microbial Activities in the Huixian Karst Wetland in Guilin	HUANG Ke-chao, SHEN Yu-yi, XU Guang-ping, <i>et al.</i> (1813)
Effects of the Farmland-to-Forest/Grassland Conversion Program on the Soil Bacterial Community in the Loess Hilly Region	CHEN Meng-li, ZENG Quan-chao, HUANG Yi-mei, <i>et al.</i> (1824)
Insight into the Mechanism of Feammox in the Surface Soils of a Riparian Zone	DING Bang-jing, LI Zheng-kui, ZHU Hong-jie, <i>et al.</i> (1833)
Soil Degradation-Associated Microbial Community Structure Changes in an Alpine Meadow Under Tibetan Pig Herding	ZHAN Peng-fei, XIAO De-rong, YAN Peng-fei, <i>et al.</i> (1840)
Characteristics of Iron Plaque and Its Heavy Metal Enrichment in Typical Mangrove Plants in Shenzhen Bay, China	SHEN Xiao-xue, LI Rui-li, CHAI Min-wei, <i>et al.</i> (1851)
Spatial Distribution of DDTs and PCBs in Wild Fish from Hong Kong Coastal Areas and Potential Human Health Risk Assessment	SU Yang, BAO Lian-jun, ZENG Eddy Y (1861)
Pollution Characteristics of PAHs in Soil from a Remote Mountain Wetland-Dajiu Lake, Shengnongjia	HU Tian-peng, XING Xin-li, KE Yan-ping, <i>et al.</i> (1872)
Migration and Transformation of Mercury in Unsubmerged Soil and Sediment at One Typical Forest Reservoir in Southwest China	SUN Tao, MA Ming, WANG Yong-min, <i>et al.</i> (1880)
Accumulation of Cd and Its Risks in the Soils of the Xijiang River Drainage Basin in Guangxi	SONG Bo, YANG Zi-jie, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (1888)
Effects of Long-term Fertilization Regimes on As Accumulation in Upland Red Earth and the Crops Growing on It	ZHANG Rong, YU Guang-hui, LI Ya-qing (1901)
Effects of a Tribasic Amendment on Cadmium and Arsenic Accumulation and Translocation in Rice in a Field Experiment	GU Jiao-feng, ZHOU Hang, JIA Run-yu, <i>et al.</i> (1910)
Quantitative Relationship Between Paddy Soil Properties and Cadmium Content in Rice Grains	WANG Meng-meng, HE Meng-yuan, SU De-chun (1918)
Effect of Ca-bentonite on Cu and Zn Forms in Compost and Soil, and Their Absorption by Chinese Cabbage	ZHAO Jun-chao, WANG Quan, REN Xiu-na, <i>et al.</i> (1926)
Effects of Short-term Exogenous Nitrogen and Carbon Input on Soil Respiration Under Changing Precipitation Pattern	HE Yun-long, QI Yu-chun, PENG Qin, <i>et al.</i> (1934)
Effects of Simulated Precipitation Reduction on Soil Respiration in a Soybean-Winter Wheat Rotation Cropland	WANG Zhao-hui, CHEN Shu-tao, SUN Lu, <i>et al.</i> (1943)
Seasonal Variation in Nitric Oxide Emission from an Agricultural Headwater Ditch in the Hilly Purple Soil Area and the Factors Influencing Emission	TIAN Lin-lin, REN Guang-qian, ZHU Bo (1952)
Effects of Seasonal Asymmetric Warming on Soil CO ₂ Release in Karst Region	TANG Guo-yong, ZHANG Chun-hua, LIU Fang-yan, <i>et al.</i> (1962)