

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第12期

Vol.39 No.12

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(卷终)

中国燃煤电厂大气污染物排放的健康影响特征	秦雨, 张强, 李鑫, 赵红艳, 同丹, 郑逸璇, 耿冠楠, 贺克斌 (5289)
基于 LUR 模型的中国 PM _{2.5} 时空变化分析	刘炳杰, 彭晓敏, 李继红 (5296)
长三角淳安地区二次颗粒物污染形成机制	黄丹丹, 周敏, 余传冠, 朱书慧, 王裕成, 乔利平, 楼晟荣, 陶士康, 杨强, 李莉 (5308)
春季沙尘过程北京市不同粒径大气气溶胶污染特征及来源分析	杨阳, 李杏茹, 陈曦, 刘水桥, 刘雨思, 徐静, 王莉莉, 陶明辉, 王格慧 (5315)
成都双流夏秋季环境空气中 VOCs 污染特征	邓媛元, 李晶, 李亚琦, 吴蓉蓉, 谢绍东 (5323)
佛山市典型铝型材行业表面涂装 VOCs 排放组成	李霞, 苏伟健, 黎碧霞, 龙森, 黎丽莉, 张洲, 于跃刚, 王云鹏, 王新明 (5334)
四川省人为源大气污染物排放清单及特征	周子航, 邓也, 谭钦文, 吴柯颖, 杨欣悦, 周小玲 (5344)
炼焦工序颗粒物排放特征	王彦辉, 赵亮, 孙文强, 叶竹, 蔡九菊 (5359)
小流域大气氮干湿沉降特征	王焕晓, 庞树江, 王晓燕, 樊彦波 (5365)
流域氮素主要输出途径及变化特征	李文超, 雷秋良, 翟丽梅, 刘宏斌, 胡万里, 刘申, 任天志 (5375)
生物炭配施缓控释肥对稻田田面水氮素动态变化及径流流失的影响	斯林林, 周静杰, 吴良欢, 胡兆平 (5383)
长江上游农业源溪流雨季中 N ₂ O 间接排放特征	田琳琳, 王正, 朱波 (5391)
不同氮污染特征河流 N ₂ O 浓度、释放通量与排放系数	王森, 李亚峰, 雷坤, 杨丽标 (5400)
多种同位素手段的硝酸盐污染源解析: 以会仙湿地为例	彭聪, 潘晓东, 焦友军, 任坤, 曾洁 (5410)
典型岩溶槽谷区土壤水 δD 和 δ ¹⁸ O 时空分布特征: 以重庆市中梁山岩溶槽谷为例	吴韦, 蒋勇军, 贾亚男, 彭学义, 段世辉, 刘九缠, 王正雄 (5418)
沁河冲洪积扇地下水水化学特征及成因分析	刘江涛, 蔡五田, 曹月婷, 蔡月梅, 边超, 吕永高, 陈远铭 (5428)
2017 年最大降水对再生水受水河道径流组成的影响	廖安然, 宋献方, 张应华, 杨丽虎, 卜红梅, 马英, 韩冬梅, 秦文婧, 杨胜天 (5440)
周村水库主库区水体热分层形成过程中沉积物间隙水 DOM 的光谱演变特征	周石磊, 张艺冉, 黄廷林, 李再兴, 罗晓 (5451)
三峡库区沉积物中镍污染特征评价	张伟杰, 殷淑华, 徐东昱, 高丽, 高博 (5464)
四面山大洪湖底泥/水界面汞的迁移转化规律	郭攀, 孙涛, 杨光, 马明 (5473)
大兴安岭南麓河湿地类型对土壤中甲基汞分布的影响	周心功, 刘玉荣, 李晶, 周志峰 (5480)
模拟三峡库区消落带土壤有机磷酸酯类水释放特征	杨婷, 何明靖, 杨志豪, 魏世强 (5487)
典型旅游城市河流水体及污水厂出水中全氟烷基酸类化合物的空间分布及其前体物的转化	王世亮, 孙建树, 杨月伟, 张敏 (5494)
4 种不同工况生物滤池净化效能与微生物特性分析	江肖良, 李孟, 张少辉, 张世羊 (5503)
微量元素锰对威氏海链藻生长及叶绿素荧光的影响	王木兰, 姜玥璐 (5514)
广东省水库拟柱胞藻 (<i>Cylindropermopsis raciborskii</i>) 的分布特征及影响因素分析	雷敏婷, 彭亮, 韩博平, 雷腊梅 (5523)
磁性壳聚糖接枝聚丙烯酰胺去除水体中腐殖酸	尤雯, 刘海成, 曹家玮, 沈耀良, 陈卫 (5532)
臭氧-生物活性炭对微污染原水中典型持久性有机物的去除效果	兰亚琼, 刘锐, 马正杰, 陈吕军 (5541)
水解酸化/AO 组合工艺处理印染废水色度去除与脱氮性能	顾梦琪, 尹启东, 刘爱科, 吴光学 (5550)
“异养-硫自养”组合工艺去除高浓度高氯酸盐特性	刘颖男, 陶华强, 宋圆圆, 张春青, 逯彩彩, 韩懿, 李海波, 郭建博 (5558)
静压快速启动亚硝酸盐依赖型甲烷厌氧氧化反应	王一因, 胡振, 茹东云, 姜丽萍, 刘华清 (5565)
多级 AO 耦合流离生化工艺流量分配比优化及脱氮机制	王帆, 李军, 边德军, 聂泽兵, 张莉, 孙艺齐 (5572)
主流条件下两级式 PN-ANAMMOX 工艺的高效能脱氮过程	刘文如, 杨殿海, 沈耀良, 王建芳, 吴鹏, 钱飞跃, 陈重军 (5580)
不同基质浓度对 ANAMMOX 菌短期储存的影响	高雪健, 张杰, 李冬, 曹正美, 郭跃洲, 李帅 (5587)
主流厌氧氨氧化工艺的优化及其微生物的群落变迁	付昆明, 李慧, 姜姗, 仇付国, 曹秀芹 (5596)
厌氧氨氧化污泥恢复过程中的颗粒特性	陈方敏, 顾澄伟, 胡羽婷, 黄勇, 李祥, 陆明羽, 方文辉, 金润 (5605)
低温反硝化菌——施氏假单胞菌 N3 的筛选及脱氮性能	路俊玲, 陈慧萍, 肖琳 (5612)
复垦工业场地土壤和周边河道沉积物重金属污染及潜在生态风险	吴健, 王敏, 张辉鹏, 黄宇驰, 徐志豪, 李青青, 陈昊, 黄沈发 (5620)
不同土地利用类型土壤重金属生态风险与人体健康风险	李春芳, 曹见飞, 吕建树, 姚磊, 吴泉源 (5628)
某大型神渣场土壤 As 污染特征及生态风险评价	刘庚, 石瑛, 田海金, 李豪, 张蕾, 牛俊杰, 郭观林, 张朝 (5639)
亚热带典型岩溶水库细菌丰度和细菌生产力及其与环境因子的关系	辛胜林, 梁月明, 彭文杰, 宋昂, 靳振江, 朱美娜, 李强 (5647)
岩溶区典型灌丛植物根系丛枝菌根真菌群落结构解析	梁月明, 苏以荣, 何寻阳, 陈香碧 (5657)
模拟氮沉降对干旱半干旱温带草原土壤细菌群落结构的影响	李宗明, 沈菊培, 张丽梅, 刘国平, 白文明, 贺纪正 (5665)
添加磷素对低磷稻田根际土壤固碳自养微生物数量的影响	柏菁, 李奕霏, 刘守龙, 祝贞科, 李科林, 彭佩钦, 吴小红, 葛体达, 吴金水 (5672)
长期不同施肥对稻田土壤有机碳矿化及激发效应的影响	马欣, 魏亮, 唐美玲, 徐福利, 祝贞科, 葛体达, 吴金水 (5680)
黄土丘陵区撂荒恢复过程中植物群落组成与土壤养分及酶活性变化的关系	乔文静, 戴银月, 张伟, 付淑月, 杨改河, 韩新辉, 陈正兴, 高德新, 冯永忠 (5687)
生活垃圾不同填埋阶段的富里酸对五氯苯酚的降解	刘思佳, 何小松, 张慧, 祖国峰, 席北斗, 李丹, 党秋玲 (5699)
CO ₂ 倍增条件下不同生育期水稻碳氮磷含量及其计量比特征	唐美玲, 肖谋良, 袁红朝, 王光军, 刘守龙, 祝贞科, 葛体达, 吴金水 (5708)
基于层次分析法的医疗废物处置技术评价	许晓芳, 谭全银, 刘丽丽, 李金惠 (5717)
中国农田畜禽粪尿氮负荷量及其还田潜力	刘晓永, 王秀斌, 李书田 (5723)
《环境科学》第 39 卷(2018 年)总目录	(5740)
《环境科学》征订启事(5343) 《环境科学》征稿简则(5439) 信息(5595, 5619, 5638)	

春季沙尘过程北京市不同粒径大气气溶胶污染特征及来源分析

杨阳¹, 李杏茹^{1,2}, 陈曦¹, 刘水桥³, 刘雨思¹, 徐静³, 王莉莉⁴, 陶明辉⁵, 王格慧^{2*}

(1. 首都师范大学化学系分析测试中心, 北京 100048; 2. 华东师范大学地理科学学院, 地理信息科学教育部重点实验室, 上海 200241; 3. 首都师范大学资源环境与旅游学院, 北京 100048; 4. 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; 5. 中国地质大学(武汉)地球科学学院, 武汉 430074)

摘要: 为了解沙尘气溶胶在大气中的物理、化学特性演变, 于 2017 年 5 月北京沙尘暴发期间, 对北京大气中不同粒径颗粒物的质量浓度进行了连续观测, 并用离子色谱仪和水溶性有机碳分析仪对其中的主要水溶性化学组分进行了检测。结果表明, 沙尘期间 TSP 及其中的水溶性有机碳 (WSOC)、元素碳 (EC)、有机碳 (OC) 和水溶性无机离子的平均质量浓度分别为 (2237.59 ± 681.49) 、 (29.90 ± 18.05) 、 (1.46 ± 3.05) 、 (67.35 ± 29.07) 和 $(136.75 \pm 46.38) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 除 EC 变化不大外, 其他成分沙尘期浓度远高于非沙尘期, 其中 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、WSOC 的浓度分别为沙尘前的 11.55、3.00、14.88、14.89、9.40、4.60、2.40、3.91、1.83 倍, 浓度增长最为明显的是地壳元素离子, 变化最小的为 NH_4^+ 和 NO_3^- ; 粒径分析表明, 地壳元素离子在整个采样期间均在粗粒径段 ($4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$) 表现出最大浓度; 沙尘期间 SO_4^{2-} 及 NO_3^- 均以粗模态为主, 沙尘结束后 SO_4^{2-} 在 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 粒径段出现峰值, 而 NO_3^- 依然是在 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 粒径段出现峰值, 表明大部分 NO_3^- 主要以非均相反应存在于粗粒径段中。沙尘期 SO_4^{2-} 与地壳元素离子表现显著的正相关关系, 与 NH_4^+ 没有表现出相关性, 表明沙尘期 SO_4^{2-} 主要来自于沙尘携带的一次来源, 非沙尘期 SO_4^{2-} 与地壳元素没有明显的相关性, 而与 NH_4^+ 之间相关系数 $r=0.70$, 表明其为非均相二次转化形成。 NO_3^- 与地壳元素离子和 NH_4^+ 的相关性分析表明其在沙尘期既有一次来源, 也有二次转化, 而在非沙尘期主要来源于二次转化过程。

关键词: 沙尘天气; 水溶性有机碳 (WSOC); 水溶性无机离子; 后向轨迹 (HYSPLIT); 气象条件

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)12-5315-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201804237

Analysis of Different Particle Sizes, Pollution Characteristics, and Sources of Atmospheric Aerosols During the Spring Dust Period in Beijing

YANG Yang¹, LI Xing-ru^{1,2}, CHEN Xi¹, LIU Shui-qiao³, LIU Yu-si¹, XU Jing³, WANG Li-li⁴, TAO Ming-hui⁵, WANG Ge-hui^{2*}

(1. Analysis and Testing Center, Department of Chemistry, Capital Normal University, Beijing 100048, China; 2. Key Laboratory of Geographic Information Science, Ministry of Education, School of Geographic Sciences, East China Normal University, Shanghai 200241, China; 3. College of Resource, Environment and Tourism, Capital Normal University, Beijing 100048, China; 4. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 5. School of Earth Sciences, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China)

Abstract: To understand the evolution of the physical and chemical properties of dust aerosols in the atmosphere, the concentrations and chemical compositions of differently sized particles were continuously observed and analyzed using an ion chromatograph and carbonaceous analyzer during the outbreak of dust in May 2017 in Beijing. The concentrations of total suspended particulate (TSP), water-soluble organic carbon (WSOC), elemental carbon (EC), OC, and water-soluble inorganic ions were (2237.59 ± 681.49) , (29.90 ± 18.05) , (1.46 ± 3.05) , (67.35 ± 29.07) , and $(136.75 \pm 46.38) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ during the dust period, respectively, and significantly exceeded that of the non-dust period, except for EC. The Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , and WSOC concentrations during the dust storm period were 11.55, 3.00, 14.88, 14.89, 9.40, 4.60, 2.40, 3.91, and 1.83 times higher than that during the non-dust period. The growth of crustal ions, such as Ca^{2+} and K^+ , was notably the largest and NH_4^+ and NO_3^- were minimal. The size distribution indicates that crustal ions primarily occur in the coarse mode during the whole sampling campaign. The SO_4^{2-} and NO_3^- ions are slightly bimodal during the dust storm, with a dominant peak in the coarse mode at $4.7\text{--}5.8 \mu\text{m}$ and a very minor peak in the fine mode with a size range of $0.43\text{--}0.65 \mu\text{m}$. During the non-dust period, SO_4^{2-} is the dominant

收稿日期: 2018-04-28; 修订日期: 2018-06-05

基金项目: 国家科技支撑计划项目(2017YFC0210000)

作者简介: 杨阳(1994~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气化学, E-mail: yy15010061956@sina.com

* 通信作者, E-mail: wanggh@ieecas.cn

mode in the fine mode, while NO_3^- changes little compared with that during the dust period, which indicates that heterogeneous reaction with crustal ions is the main formation mechanism of NO_3^- in the coarse mode. A significant positive correlation was observed between SO_4^{2-} and the sum of crustal ions during the dust period, indicating that the source of SO_4^{2-} during the dust period is remote transmission of the dust storm. During the non-dust period, the positive correlation of SO_4^{2-} with NH_4^+ indicates that secondary formation is the main source of SO_4^{2-} . Based on correlation analysis of NO_3^- with crustal ions and NH_4^+ , both remote transmission and secondary formation are the sources of NO_3^- during the dust storm and heterogeneous reactions are predominant during the non-dust period.

Key words: dust weather; water-soluble organic carbon (WSOC); water-soluble ions; backward trajectory model (HYSPLIT); meteorological condition

沙尘天气是指风将地面尘沙卷入空中使空气混浊的自然灾害现象,可分为浮尘、扬沙、沙尘暴、强沙尘暴四类,对生态环境^[1]、空气质量^[2]及人体健康^[3]有一定危害.我国北方春季是沙尘的多发时期,这不仅是由于冷锋型和蒙古气旋型两类沙尘过程的影响^[4],还与当地气候要素(如风速、风蚀指数)有一定关系^[5].

近些年,科研工作者们通过不同方法对沙尘污染事件已开展许多分析工作.樊璠等^[6]利用激光雷达观测了2012年北京春季一次强沙尘过程;杨欣等^[7]利用大气物理综合观测资料对2013年北京春季一次沙尘气溶胶污染过程进行了研究;李贵玲等^[8]对2011年春季沙尘天气影响下的上海大气颗粒物及其化学组分进行了分析;王伟等^[9]于2000年4月北京沙尘暴时期进行了采集分析,发现沙尘期间总悬浮颗粒物(total suspended particulate, TSP)、 PM_{10} 的质量浓度、离子浓度、元素浓度均远高于非沙尘时期;李珊珊等^[10]对2015年春季北京市的一次沙尘过程进行了分析;张秋晨等^[11]研究了3类不同污染过程下的气溶胶水溶性无机离子特征,发现沙尘会带来大量粗离子;马雁军等^[12]对2011年春季辽宁的一次沙尘过程进行了研究,讨论了沙尘过程对不同粒径颗粒物及空气质量的影响;沙尘天气对兰州市 PM_{10} 中水溶性离子的影响在王芳等^[13]的研究中进行了分析;Lee等^[14]分别对比了韩国仁川、蔚山两地在沙尘前、中、后这3个阶

段 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 及元素质量浓度的差异,发现黄沙高峰时期,在阳光微弱的条件下,超高浓度的 PM_{10} 会严重降低环境中臭氧的浓度;Adams等^[15]在流管实验中发现,沙尘会影响 SO_2 在其表面的吸附,进而影响硫酸盐粒子的形成.

北京作为沙尘的多发地带,受外来因素与本地气候的双重作用,以扬沙天气为主^[16],空气质量也被沙尘天气所影响^[17,18].2017年5月4日,一次沙尘过程席卷北京.伴随强烈大风,沙尘于5月4日早晨到达,持续近30 h,于5月5日中午离开.本研究在沙尘暴发期间对不同粒径大气颗粒物进行了采集,测定了其中的水溶性成分(包括水溶性无机离子及水溶性有机碳)、EC和OC,对不同粒径段的污染物分布变化进行了分析,同时结合气象条件、利用HYSPLIT轨迹模型对此次污染过程及其来源进行了分析,以期了解沙尘气溶胶在大气中的物理、化学特性演变提供参考依据.

1 材料与方法

1.1 沙尘概况

2017年5月3日中午,我国甘肃、宁夏及内蒙古地区出现沙尘天气,随后5月4日早上04:00左右北京地区由于受到西北强冷空气影响,出现大风沙尘天气.从卫星遥感图像上(图1)可以发现,5月4日09:30沙尘范围已经覆盖北京、天津及河北和山西大部分地区,从北京城区的监测数据来看,

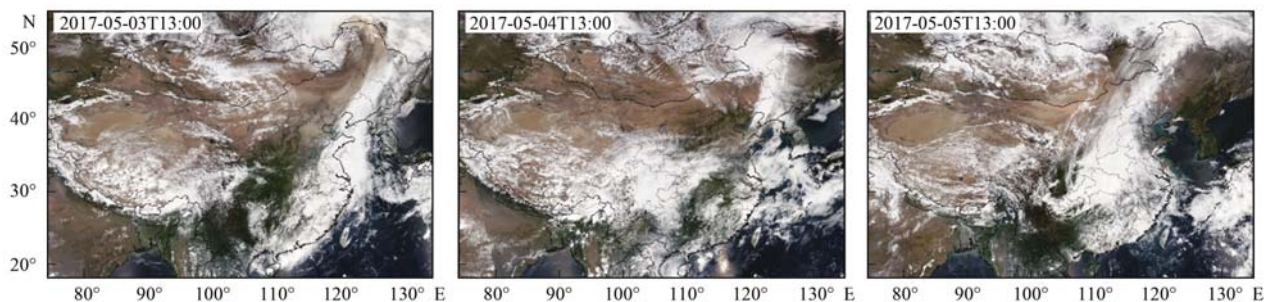


图1 2017年5月3~5日气象卫星监测沙尘途经北京简况示意

Fig. 1 Dust storm over Beijing monitored by a meteorological satellite on May 3-5, 2017

北京小时风速最高达到 $18 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, 能见度最低至 1.7 km , 地面 $\rho(\text{PM}_{10})$ 小时最大值超过 $1\,000.00 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 小时最大值超过 $500.00 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 全市各测点实时 AQI 均达到六级严重污染. 5 月 5 日中午前后风速逐渐降低, 沙尘逐渐往北京南部迁移.

1.2 样品采集

(1) 采样时间 2017 年 5 月 2 日 09:00 至 5 月 9 日 20:00, 共计采集 14 组 126 张有效安德森样品膜. 其中沙尘前样品 2 组(5 月 2 日至 5 月 3 日, 每组 24 h), 沙尘期样品 8 组(5 月 4 日 08:00 至 5 月 5 日 11:00, 除 5 月 4 日 20:00 至 5 月 5 日 09:00 的采集时间为 4 h 外, 其余为 3 h), 沙尘后样品 4 组(5 月 6 日至 5 月 9 日, 每组 24 h, 最后一组采集 12 h). 2017 年 5 月 4 日 10:00 至 5 月 9 日 20:00, 共计采集 28 组 84 张有效天虹样品膜. 其中沙尘期 19 组(5 月 4 日 10:00 至 5 月 5 日 11:00, 除 5 月 4 日 19:00 至 5 月 5 日 09:00 的采集时间为 2 h 外, 其余为 1 h), 沙尘后样品 9 组(除第一组采集 6 h 外, 其余为 12 h).

(2) 采样地点 首都师范大学本部学术报告厅的楼顶(116.32°E , 39.94°N), 距离地面约 10 m . 采样点位于西三环主路旁, 周围有居民区和学校, 是典型的城市环境.

(3) 仪器 Andersen 分级采样器, 流量 $28.3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, 动力学切割粒径为 9.0 、 5.8 、 4.7 、 3.3 、 2.1 、 1.1 、 0.65 和 $0.43 \mu\text{m}$; 天虹采样器, 流量 $100.0 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, 动力学切割粒径为 2.5 、 $10 \mu\text{m}$. 采样使用石英膜, 采样前将石英膜置于马弗炉中 450°C 灼烧 3 h, 采样前后分别于恒温恒湿箱 (T : 25°C , RH : 50%) 中平衡 24 h, 称重.

1.3 分析方法

切取 $1/4$ 样品膜放入塑料瓶中, 加入 45 mL 去离子水(电阻率: $18.2 \text{ M}\Omega\cdot\text{cm}$), 超声提取 30 min (50 Hz). 用 $0.45 \mu\text{m}$ 滤膜过滤后, 利用离子色谱仪 ICS-1100 (美国戴安公司) 分别测定阳离子 (Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+}) 和阴离子 (F^- 、 Cl^- 、 NO_2^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-}). 同时对空白滤膜的本底值进行测定. 另取部分提取液用 $0.45 \mu\text{m}$ 滤膜过滤后, 利用总有机碳分析仪 TOC-L CPH/CPN (岛津, ASI-L, OCT-L, TNM-L) 分析样品中的水溶性有机碳. 该方法的主要原理是: 水样分别被注入低温反应管(150°C)和高温燃烧管(900°C), 水样经反应管酸化后无机碳酸盐分解为 CO_2 , 而经高温燃烧管

催化氧化后, 水样中的有机物和无机碳酸盐均转化成 CO_2 , 将所生成的 CO_2 依次导入非分散红外检测器, 从而测得水样中的无机碳(IC)和总碳(TC)浓度. 计算两者的差值, 即为水溶性有机碳(water-soluble organic carbon, WSOC), 测定的 WSOC 值均除去实验室空白和样品空白值.

2 结果与讨论

2.1 气溶胶浓度

表 1 为采样期间(5 月 2~9 日)北京不同粒径颗粒物及其化学成分的质量浓度. 从中可见, 沙尘前北京处于轻度污染水平, $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、TSP 的平均质量浓度分别为 (134.36 ± 30.03) 、 (155.86 ± 32.67) 和 $(351.97 \pm 73.69) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 5 月 4 日上午, 随着沙尘天气降临北京, $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、TSP 的平均质量浓度迅速增至 (902.05 ± 264.89) 、 $(1\,398.56 \pm 502.20)$ 和 $(2\,237.59 \pm 681.49) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 明显高于沙尘前. 其中 PM_{10} 的质量浓度增长尤为明显, 为沙尘前的 8.97 倍, 表明沙尘天气会带来大量悬浮颗粒物, 以粗粒子为主. 5 月 5 日午后, 在持续北风的作用下沙尘离开北京, 颗粒物平均质量浓度回落至初始水平. 与以往沙尘不同的是, 该次沙尘过程中 $\text{PM}_{2.5}$ 的浓度与 PM_{10} 的浓度变化十分一致, 均维持较高的浓度, 达到重污染水平.

同沙尘前相比, 沙尘期 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、TSP 中 WSOC 的质量浓度分别增加 1.34、1.27、1.87 倍, 说明沙尘天气会导致水溶性有机碳质量浓度的升高^[19]. 但不同于颗粒物质量浓度的变化幅度, WSOC 的增长倍数较低, 说明沙尘天气虽然会导致 WSOC 的增多, 但影响不大.

沙尘前 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、TSP 中水溶性无机离子总浓度分别为 (13.83 ± 2.14) 、 (25.12 ± 5.43) 和 $(27.69 \pm 4.95) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别占颗粒物质量浓度的 10.29%、16.12% 和 7.87%, 3 个粒径段二次离子组分 SNA (NH_4^+ 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-}) 的质量浓度分别为 (10.96 ± 1.40) 、 (17.88 ± 3.36) 和 $(18.89 \pm 2.41) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 占总水溶性无机离子的 79.25%、71.18% 和 68.22%. TSP 中水溶性离子质量浓度大小依次为 $\text{NO}_3^- > \text{SO}_4^{2-} > \text{Ca}^{2+} > \text{Cl}^- > \text{NH}_4^+ > \text{Na}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+ > \text{F}^- > \text{NO}_2^-$. 受强沙尘影响, $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、TSP 中水溶性离子总浓度分别增至 (50.14 ± 20.56) 、 (87.84 ± 36.87) 和 $(136.75 \pm 46.38) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别占颗粒物质量浓度的 5.56%、6.28% 和 6.11%. 水溶性离子与颗粒物质量浓度的比例较沙尘前明显

降低,说明沙尘期间北京地区的大气颗粒物受一次污染的影响较明显^[20]. 沙尘期间,北京 TSP 中的主要水溶性离子 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 的浓度分别为沙尘前的 11.55、3.00、14.88、14.89、9.40、4.60、2.40、3.91 倍,浓度增

长最为明显的是地壳元素离子,变化最小的为 NH_4^+ 和 NO_3^- . 强沙尘过后, TSP 中阳离子浓度降至 $(8.83 \pm 2.65) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,阴离子降至 $(21.94 \pm 11.71) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,略高于沙尘前,表明沙尘输送的颗粒物对大气质量的影响依然存在.

表 1 采样期间颗粒物、WSOC、水溶性无机离子、EC、OC 的质量浓度¹⁾/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

项目	沙尘前			沙尘期			沙尘后		
	$\text{PM}_{2.5}$	PM_{10}	TSP	$\text{PM}_{2.5}$	PM_{10}	TSP	$\text{PM}_{2.5}$	PM_{10}	TSP
颗粒物	134.36 ± 30.03	155.86 ± 32.67	351.97 ± 73.69	902.05 ± 264.89	1398.56 ± 502.20	2237.59 ± 681.49	95.36 ± 21.00	155.69 ± 25.52	261.20 ± 32.50
WSOC	8.92 ± 1.59	14.65 ± 3.70	16.03 ± 2.18	11.97 ± 14.10	18.56 ± 15.45	29.90 ± 18.05	7.64 ± 2.79	9.65 ± 2.22	11.75 ± 2.44
Na^+	0.45 ± 0.05	0.82 ± 0.05	0.93 ± 0.12	3.64 ± 1.77	7.08 ± 3.34	10.74 ± 3.62	0.27 ± 0.04	0.47 ± 0.14	1.12 ± 0.39
NH_4^+	1.10 ± 0.32	1.44 ± 0.36	1.55 ± 0.36	2.41 ± 0.97	3.60 ± 1.70	4.65 ± 1.96	1.40 ± 0.85	1.79 ± 1.13	1.85 ± 1.07
K^+	0.21 ± 0.05	0.43 ± 0.02	0.48 ± 0.01	2.68 ± 1.36	4.54 ± 2.93	7.14 ± 3.37	0.33 ± 0.12	0.49 ± 0.18	0.58 ± 0.24
Mg^{2+}	0.14 ± 0.02	0.46 ± 0.10	0.61 ± 0.18	2.64 ± 1.16	5.92 ± 2.50	9.08 ± 3.00	0.28 ± 0.11	0.52 ± 0.19	0.77 ± 0.38
Ca^{2+}	0.85 ± 0.38	3.08 ± 1.09	4.05 ± 1.46	10.71 ± 6.68	20.93 ± 11.58	38.09 ± 14.76	1.08 ± 0.25	2.25 ± 0.42	4.56 ± 1.64
F^-	0.07 ± 0.01	0.15 ± 0.03	0.18 ± 0.04	0.35 ± 0.26	0.57 ± 0.31	0.80 ± 0.52	0.09 ± 0.03	0.12 ± 0.04	0.21 ± 0.08
Cl^-	1.11 ± 0.45	2.22 ± 0.84	2.48 ± 0.94	3.98 ± 2.70	6.72 ± 3.30	11.40 ± 5.67	0.60 ± 0.21	1.14 ± 1.20	2.36 ± 1.64
NO_2^-	0.04 ± 0.02	0.07 ± 0.04	0.08 ± 0.04	0.57 ± 0.16	0.59 ± 0.16	0.63 ± 0.17	0.05 ± 0.02	0.06 ± 0.02	0.07 ± 0.02
NO_3^-	4.90 ± 1.95	8.75 ± 2.74	8.99 ± 1.58	10.26 ± 2.31	16.89 ± 7.10	21.55 ± 7.84	4.62 ± 2.99	7.99 ± 6.03	10.16 ± 7.37
SO_4^{2-}	4.96 ± 0.23	7.69 ± 0.98	8.35 ± 1.19	12.90 ± 6.29	20.99 ± 9.22	32.67 ± 13.67	5.54 ± 3.35	7.25 ± 4.49	9.14 ± 5.35
EC	$2.91 \pm 1.34^*$	—	—	0.58 ± 0.45	0.66 ± 0.51	1.46 ± 3.05	2.40 ± 1.40	2.96 ± 1.80	4.28 ± 2.28
OC	$9.49 \pm 2.05^*$	—	—	25.72 ± 12.57	36.49 ± 20.85	67.35 ± 29.07	10.78 ± 3.02	13.09 ± 3.86	22.26 ± 6.57

1) * 表示数据来源于在线监测;“—”表示无观测数据

2.2 粒径分布

粒径分布是气溶胶的重要特性,决定了它们在大气中的寿命和环境气候效应,气溶胶化学组分的粒径谱图可以提供气溶胶来源的重要信息^[21]. 沙尘前、期间、后颗粒物及各水溶性成分的粒径分布

见图 2. 从中可见,沙尘前后,颗粒物呈现双模态分布,峰值分布出现在 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 和 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 处,沙尘期间颗粒物以粗模态形式存在,表明沙尘期间粗粒径段颗粒物增长最多. WSOC 在沙尘前期主要集中在细粒径段,而在沙尘期及沙尘结束

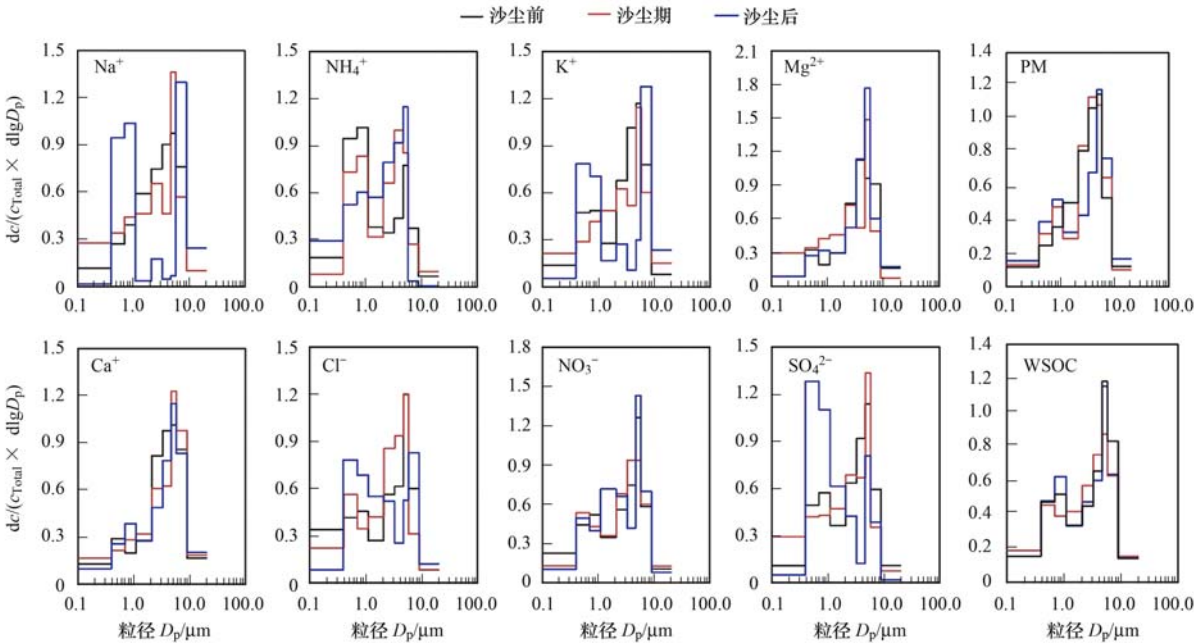


图 2 采样期间 PM 及水溶性成分粒径分布

Fig. 2 Size distribution of PM and water-soluble components during the sample collection period

后粗粒径段浓度有不同程度地增加,尤其是在沙尘期增长最为明显,表明沙尘除了携带地壳元素外,也会有水溶性有机成分的输入。 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 和 Ca^{2+} 表现出相似的粒径分布特征,沙尘前期为双模态分布,沙尘期粗细粒径段均有明显的升高,沙尘结束后也主要以粗模态形式存在。 NH_4^+ 在沙尘之前主要以细模态存在,这与之前的研究结果一致^[22],但是在沙尘期间及沙尘结束后, NH_4^+ 表现出双峰型分布特征,尤其是粗粒径段浓度有明显的升高,表明在沙尘期间, NH_4^+ 有向粗粒径段转移的趋势,这与Wang等^[23]在西安沙尘期间的研究结果一致。 Cl^- 的粒径分布特征为双模态分布,在沙尘前粗、细粒径段浓度差别不大,沙尘期间粗粒径段浓度明显升高。沙尘前 SO_4^{2-} 以前峰型为主,细粒径段浓度高于粗粒径段,而 NO_3^- 在粗粒径段浓度略高于细粒径段,细粒径段中 $[\text{NH}_4^+]$ 与 $(2 \times [\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$ 的摩尔比为0.59,表明细粒径段的 NH_4^+ 不能完全中和 $[\text{SO}_4^{2-}]$ 和 $[\text{NO}_3^-]$,部分 NO_3^- 会发生非均相转化存在于粗粒径段中^[24]。沙尘期间 SO_4^{2-} 及 NO_3^- 均以粗模态为主,峰值出现在 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 粒径段,沙尘结束后 SO_4^{2-} 主要存在于细粒子中,在 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 粒径段出现峰值,而 NO_3^- 在细粒径段的比例有所升高,但依然表现为后峰型,在 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 粒径段出现峰值,表明大部分 NO_3^- 主要以非均相反应存在于粗粒径段中。

2.3 主要离子间的相关性及来源分析

对沙尘天气期间和非沙尘天气期间样品中各水

溶性离子浓度做相关性分析,结果见图3。可以看出沙尘期, Cl^- 和 SO_4^{2-} 与4种地壳元素离子之和(Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 和 Ca^{2+})均呈现较强的正相关关系($P < 0.001$) [图3(a)和3(c)],而在非沙尘期则没有明显的相关性,表明沙尘期的 Cl^- 和 SO_4^{2-} 主要以 NaCl 、 CaCl_2 、 Na_2SO_4 和 CaSO_4 (芒硝: $\text{Na}_2\text{SO}_4 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$;石膏, $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$)的形式从沙尘源区传输至北京^[25]。 NO_3^- 与这些地壳元素离子之间在沙尘期没有表现出明显的相关性[图3(b)],表明 NO_3^- 在沙尘期既可能有一次来源(沙尘期 NO_3^- 浓度相较于非沙尘期也有明显的升高),也可能有非均相转化的二次来源,而在非沙尘期主要来源于二次转化。沙尘期 Cl^- 和 SO_4^{2-} 与 NH_4^+ 均没有表现出相关性[图3(d)和3(f)],进一步表明沙尘期 Cl^- 和 SO_4^{2-} 主要为一次来源,非沙尘期 SO_4^{2-} 与 NH_4^+ 呈现出一定的相关性,相关系数 r 为0.70,表明非沙尘期 SO_4^{2-} 来源于非均相二次转化过程。 NO_3^- 与 NH_4^+ 在沙尘期与非沙尘期均表现出相关性[图3(e)],且在非沙尘期相关系数为0.96,表明沙尘过后 NO_3^- 主要以 NH_4NO_3 的形式存在。

2.4 污染过程及成因分析

沙尘过程受风速、风向、相对湿度、边界层高度等气象条件的综合影响,会呈现不同程度的污染情况。本文将采样期间的气象数据与浓度变化关系进行对照,对此次沙尘过程进行分析(图4)。可以看出,沙尘前以西南和东南风向为主,相对湿度在40%以上,污染程度较小。由Wunderground网站

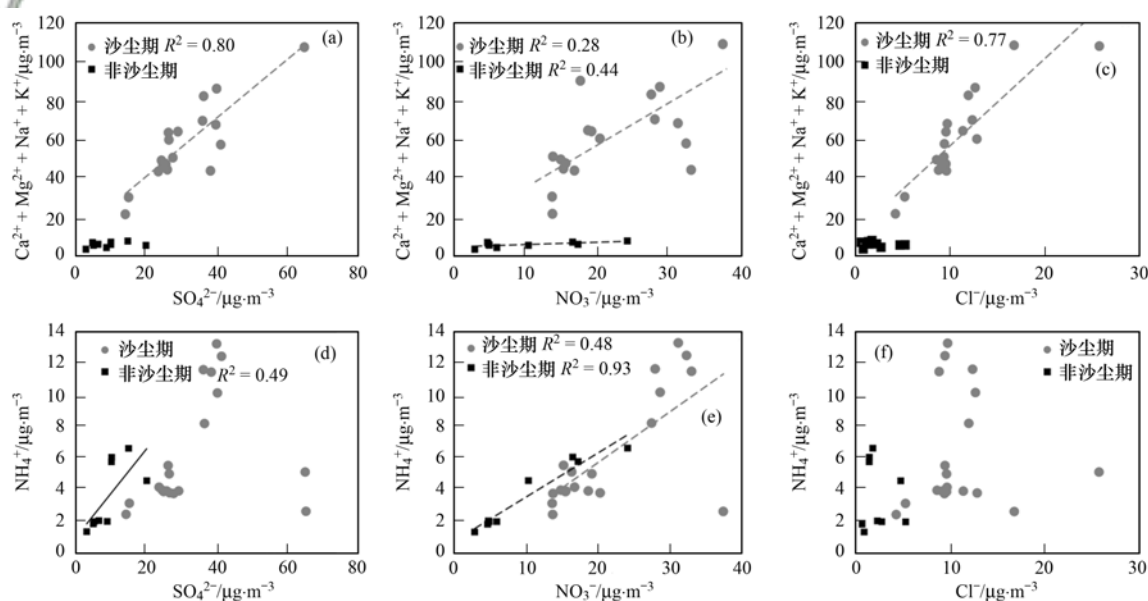


图3 6种主要水溶性离子相关性分析

Fig. 3 Correlation analysis of six main water-soluble ions

(<https://www.wunderground.com>) 的数据可知, 5月4日05:00风速开始加大, 沙尘降临北京, 最高时速可达 $8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 下午17:00, 风速逐渐减弱, 降至 $4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. 在此期间, 以西北方向风为主, 相对湿度较低, 不利于风沙的沉降, 导致颗粒物质量浓度迅速增加, WSOC、离子浓度也相应增长. 5月4日19:00至5月5日07:00, 风向转为西南方向, 风速约为 $4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 相对湿度增大, 最高可达45%. 此时段颗粒物、WSOC、离子的质量浓度达到峰值, 推测是受风速、风向、相对湿度和边界层高度多重因素的影响. 风速和边界层高度的降低不利于颗粒物的清除, 夜间温度降低, 易于水滴凝结, 导致相对湿度增加, 有利于 WSOC 和离子的稳定存在, 且北京北部和西北方向为山脉, 南风不利于污染物的扩散, 导致白天浓度累积后在夜间出现峰值. 5月5日07:00开始转为西北风向, 风速再次增大, 最高可达 $18 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, 将沙尘吹离北京, 颗粒物、WSOC、离子浓度逐渐降低. 11:00以后颗粒物和可溶性无机离子浓度与沙尘来临前基本相同, 表明此次沙尘过程为外来源污染. 值得注意的是, 整个沙尘过程

有两次颗粒物和可溶性无机离子浓度陡增的情况发生, 分别出现在5月4日10:00和5月5日07:00, 结合气象数据可知, 这两个时段为风速较大阶段, 特别是5月5日07:00, 是风速由小转大的过渡时段. 因此, 两次污染物浓度的骤增分别代表着沙尘的一次污染暴发期和二次污染开端. 同时, 此现象还表明沙尘过程中风速对颗粒物和离子的瞬时影响较强, 会大幅度地增加其浓度, 但对 WSOC 的瞬时影响较差.

利用 HYSPLIT 轨迹模型对沙尘期(5月4~6日)与沙尘后(5月8~9日)的气团进行了分析(图5). 可以看出, 沙尘期的气团主要来自两个方向, 以西北方向为主, 说明本次进入北京的沙尘主要为西北路径, 由内蒙古朱日和一带, 经张家口、河北洋河河谷到达北京^[26]. 途径偏南方向的气团主要集中在5月4日夜间. 该方向为污染排放较重的城市地区, 气团中会携带一定的污染物, 加剧污染状况. 偏西方向的气团从河北桑干河地区, 沿永定河谷进入北京, 为两条路径之一^[26]. 但在本次沙尘过程中偏西路径所占比例较少, 非主要因素. 因此,

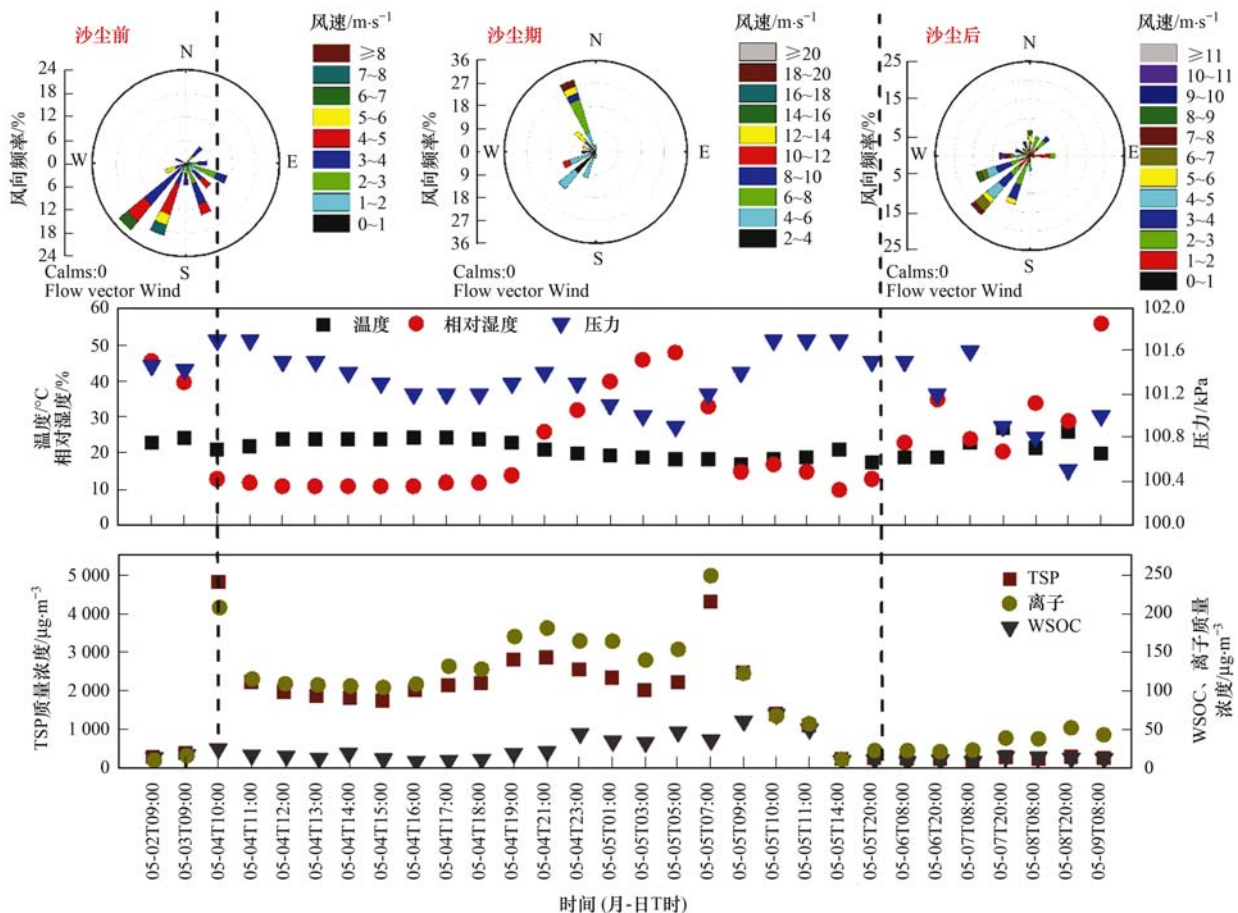


图4 采样期间 TSP、WSOC、水溶性无机离子浓度变化与气象数据

Fig. 4 Concentration change of TSP, WSOC, water-soluble inorganic ions and meteorological data during the sample collection period

本次沙尘为典型的西北方向远距离传输, 影响北京空气质量一度达到严重污染。

通过图 4 可以看出, 5 月 8 日 20:00 水溶性无机离子浓度有一定程度的上升。结合后向轨迹模型分析(图 5), 推测是由于该时段西南风向的影响。沙尘微粒中的 NH_4NO_3 在途经河北污染区域时与酸

性较强的 H_2SO_4 发生反应生成气态 HNO_3 , 再与沙尘粒子反应生成 $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$ 和 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 等^[27], 从而表现出沙尘后的 NO_3^- 和地壳元素离子具有一定相关性[图 3(b)], 浓度有所增加。同时, 大气中的 H_2SO_4 与沙尘粒子反应生成 MgSO_4 和 CaSO_4 ^[27], 被西南风吹回北京。

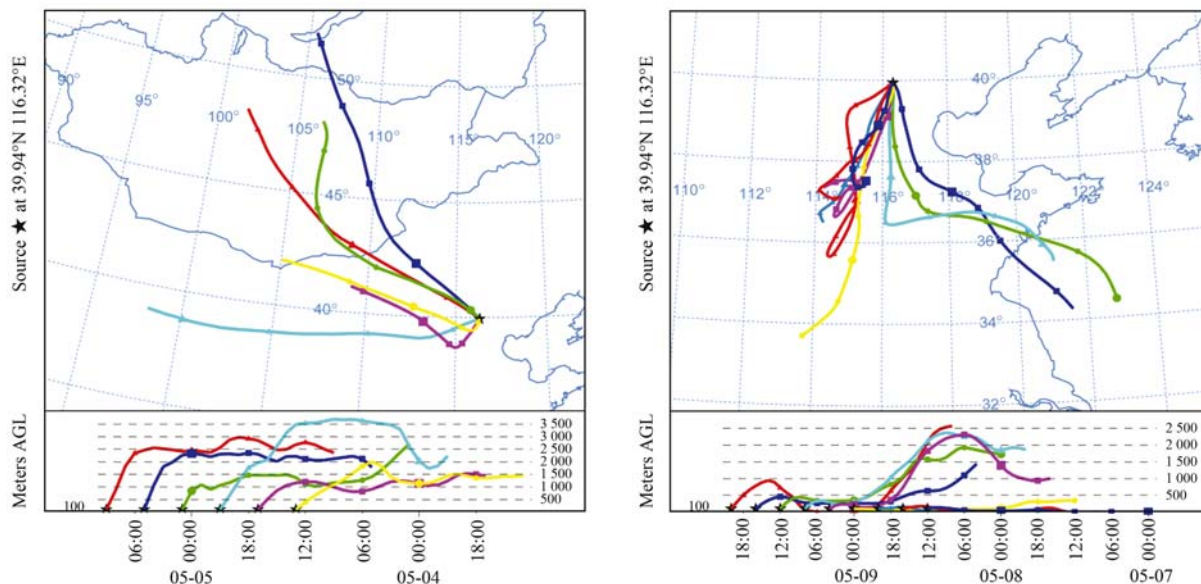


图 5 沙尘期(5月4~5日)与沙尘后(5月8~9日)后向轨迹模型

Fig. 5 Backward trajectory model of the dust period (May 4 and May 5) and after-dust period (May 8 and May 9)

3 结论

(1) 沙尘期颗粒物、WSOC、OC、水溶性无机离子的质量浓度均高于非沙尘期, 且 $\text{PM}_{2.5}$ 与 PM_{10} 同步增长, 均超过严重污染水平, 但 EC 变化不大。

(2) 沙尘期颗粒物、WSOC 和水溶性无机离子主要以粗模态形式分布, 峰值出现在 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 处。沙尘后 SO_4^{2-} 在细粒径段出现峰值, 而 NO_3^- 依然是在粗粒径段出现峰值。

(3) 相关性分析表明沙尘期的 Cl^- 和 SO_4^{2-} 主要为一次污染, NO_3^- 既有一次来源也有二次转化; 非沙尘期的 SO_4^{2-} 主要来自于二次转化, NO_3^- 主要以 NH_4NO_3 的形式存在。

(4) 后向轨迹表明沙尘主要来自西北方向, 受风速、风向、相对湿度、边界层高度等气象条件的影响, 颗粒物、WSOC、离子的质量浓度有明显的变化过程, 表明本次沙尘过程为外来源污染。

参考文献:

- [1] 杜吴鹏, 高庆先, 王跃思, 等. 沙尘天气对我国北方城市大气环境质量的影响[J]. 环境科学研究, 2009, 22(9): 1021-1026.
- Du W P, Gao Q X, Wang Y S, et al. Influence of dust storms on

- urban atmospheric environmental quality in northern China[J]. Research of Environmental Sciences, 2009, 22(9): 1021-1026.
- [2] 陈杰, 赵素平, 殷代英, 等. 沙尘天气过程对中国北方城市空气质量的影响[J]. 中国沙漠, 2015, 35(2): 423-430.
- Chen J, Zhao S P, Yin D Y, et al. Effect of dust process on air quality in cities of northern China[J]. Journal of Desert Research, 2015, 35(2): 423-430.
- [3] 王金玉, 李盛, 王式功, 等. 沙尘污染对暴露人群呼吸系统健康的影响[J]. 中国沙漠, 2013, 33(3): 826-831.
- Wang J Y, Li S, Wang S G, et al. Effects of dust pollution on respiratory system of long term exposed population[J]. Journal of Desert Research, 2013, 33(3): 826-831.
- [4] 云静波, 姜学恭, 孟雪峰, 等. 冷锋型和蒙古气旋型沙尘暴过程若干统计特征的对比分析[J]. 高原气象, 2013, 32(2): 423-434.
- Yun J B, Jiang X G, Meng X F, et al. Comparative analyses on some statistic characteristics between cold front and Mongolia cyclone duststorm processes[J]. Plateau Meteorology, 2013, 32(2): 423-434.
- [5] 王金艳, 王式功, 马艳, 等. 我国北方春季沙尘暴与气候因子之关系[J]. 中国沙漠, 2007, 27(2): 296-300.
- Wang J Y, Wang S G, Ma Y, et al. Relation between climatic characters and dust storm in spring in northern China[J]. Journal of Desert Research, 2007, 27(2): 296-300.
- [6] 樊藩, 陈义珍, 陆建刚, 等. 北京春季强沙尘过程前后的激光雷达观测[J]. 环境科学研究, 2013, 26(11): 1155-1161.
- Fan F, Chen Y Z, Lu J G, et al. Lidar detection of a sand-dust

- process at Beijing in spring [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2013, **26**(11): 1155-1161.
- [7] 杨欣, 陈义珍, 刘厚凤, 等. 北京春季一次沙尘气溶胶污染过程观测[J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(1): 87-94.
Yang X, Chen Y Z, Liu H F, *et al.* Measurement on a spring time dust aerosol pollution process in Beijing [J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(1): 87-94.
- [8] 李贵玲, 周敏, 陈长虹, 等. 2011年春季沙尘天气影响下上海大气颗粒物及其化学组分的变化特征[J]. *环境科学*, 2014, **35**(5): 1644-1653.
Li G L, Zhou M, Chen C H, *et al.* Characteristics of particulate matters and its chemical compositions during the dust episodes in Shanghai in spring, 2011 [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(5): 1644-1653.
- [9] 王玮, 岳欣, 刘红杰, 等. 北京市春季沙尘暴天气大气气溶胶污染特征研究[J]. *环境科学学报*, 2002, **22**(4): 494-498.
Wang W, Yue X, Liu H J, *et al.* Study on pollution characteristics of aerosols during sand-dust storm weather in Beijing [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2002, **22**(4): 494-498.
- [10] 李珊珊, 潘涛, 闫静, 等. 2015年春季北京市一次沙尘天气过程分析[J]. *环境科学与技术*, 2016, **39**(4): 137-143.
Li S S, Pan T, Yan J, *et al.* Analysis of a sand dust weather process in Beijing in spring 2015 [J]. *Environmental Science and Technology*, 2016, **39**(4): 137-143.
- [11] 张秋晨, 朱彬, 苏继峰, 等. 南京3类不同大气污染过程下气溶胶水溶性无机离子的特征研究[J]. *环境科学*, 2012, **33**(6): 1944-1951.
Zhang Q C, Zhu B, Su J F, *et al.* Characteristics of aerosol water-soluble inorganic ions in three types air-pollution incidents of Nanjing city [J]. *Environmental Science*, 2012, **33**(6): 1944-1951.
- [12] 马雁军, 刘宁微, 洪也, 等. 2011年春季辽宁-沙尘天气过程及其对不同粒径颗粒物和空气质量的影响[J]. *环境科学学报*, 2012, **32**(5): 1160-1167.
Ma Y J, Liu N W, Hong Y, *et al.* The impacts on various particle sizes and the air quality caused by a dust weather process in spring 2011 in Liaoning [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2012, **32**(5): 1160-1167.
- [13] 王芳, 陈强, 张文煜, 等. 沙尘天气对兰州市PM₁₀中主要水溶性离子的影响[J]. *环境科学*, 2014, **35**(7): 2477-2482.
Wang F, Chen Q, Zhang W Y, *et al.* Effect of sand dust weather on major water-soluble ions in PM₁₀ in Lanzhou, China [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(7): 2477-2482.
- [14] Lee B K, Jun N Y, Lee H K. Comparison of particulate matter characteristics before, during, and after Asian dust events in Incheon and Ulsan, Korea [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**(11): 1535-1545.
- [15] Adams J W, Rodriguez D, Cox R A. The uptake of SO₂ on Saharan dust: a flow tube study [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2005, **5**(10): 2643-2676.
- [16] 高庆先, 苏福庆, 任阵海, 等. 北京地区沙尘天气及其影响[J]. *中国环境科学*, 2002, **22**(5): 468-471.
Gao Q X, Su F Q, Ren Z H, *et al.* The dust weather of Beijing and its impact [J]. *China Environmental Science*, 2002, **22**(5): 468-471.
- [17] 陈辉, 赵琳娜, 赵鲁强, 等. 沙尘天气过程对北京空气质量的影响[J]. *环境科学研究*, 2012, **25**(6): 609-614.
Chen H, Zhao L N, Zhao L Q, *et al.* Effects of sand dust weather on the air quality of Beijing [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2012, **25**(6): 609-614.
- [18] 徐文帅, 李云婷, 孙瑞雯, 等. 典型沙尘回流天气过程对北京市空气质量影响的特征分析[J]. *环境科学学报*, 2014, **34**(2): 297-302.
Xu W S, Li Y T, Sun R W, *et al.* Impact characteristics of a typical dust backflow weather on the air quality in Beijing [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2014, **34**(2): 297-302.
- [19] Gioda A, Mayol-Bracero O L, Reyes-Rodriguez G J, *et al.* Water-soluble organic and nitrogen levels in cloud and rainwater in a background marine environment under influence of different air masses [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2008, **61**(2): 85-99.
- [20] Wang Q Y, Cao J J, Shen Z X, *et al.* Chemical characteristics of PM_{2.5} during dust storms and air pollution events in Chengdu, China [J]. *Particulology*, 2013, **11**(1): 70-77.
- [21] Calvo A I, Alves C, Castro A, *et al.* Research on aerosol sources and chemical composition: past, current and emerging issues [J]. *Atmospheric Research*, 2013, **120-121**: 1-28.
- [22] Tsai J H, Lin J H, Yao Y C, *et al.* Size distribution and water soluble ions of ambient particulate matter on episode and non-episode days in southern Taiwan [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2012, **12**(2): 263-274.
- [23] Wang G H, Cheng C L, Huang Y, *et al.* Evolution of aerosol chemistry in Xi'an, inland China, during the dust storm period of 2013-part 1: sources, chemical forms and formation mechanisms of nitrate and sulfate [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14**(21): 11571-11585.
- [24] 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.
- [25] 王乃昂, 王涛, 高顺尉, 等. 河西走廊末次冰期芒硝和砂楔与古气候重建[J]. *地学前缘*, 2000, **7**(S2): 59-66.
Wang N A, Wang T, Gao S W, *et al.* The sand wedge and mirabilite of the last ice age and paleoclimatic reconstruction in Hexi corridor, Gansu, west China [J]. *Earth Science Frontiers*, 2000, **7**(S2): 59-66.
- [26] 张志刚, 高庆先, 矫梅燕, 等. 影响北京地区沙尘天气的源地和传输路径分析[J]. *环境科学研究*, 2007, **20**(4): 21-27.
Zhang Z G, Gao Q X, Jiao M Y, *et al.* Analysis on source locations and transportation paths of sand-dusts affecting Beijing [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2007, **20**(4): 21-27.
- [27] 苏彬彬, 许据洋, 纪贤鑫, 等. 春季沙尘过程对华东高山背景区域颗粒物中水溶性无机离子的影响[J]. *环境科学学报*, 2015, **35**(11): 3463-3472.
Su B B, Xu J Y, Ji X X, *et al.* Characteristics of water-soluble inorganic ions in particulate matter at mountain background region of east China during dust storm event [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, **35**(11): 3463-3472.

CONTENTS

Patterns of Mortality from Air Pollutant Emissions in China's Coal-fired Power Plants	QIN Yu, ZHANG Qiang, LI Xin, <i>et al.</i> (5289)
Analysis of the Temporal and Spatial Variation of PM _{2.5} in China Based on the LUR Model	LIU Bing-jie, PENG Xiao-min, LI Ji-hong (5296)
Physicochemical Properties of the Aerosol Particles and Their Impacts on Secondary Aerosol Formation at the Background Site of the Yangtze River Delta	 HUANG Dan-dan, ZHOU Min, YU Chuan-guan, <i>et al.</i> (5308)
Analysis of Different Particle Sizes, Pollution Characteristics, and Sources of Atmospheric Aerosols During the Spring Dust Period in Beijing	YANG Yang, LI Xing-ru, CHEN Xi, <i>et al.</i> (5315)
Characteristics of Ambient VOCs at the Shuangliu Site in Chengdu, China, During Summer and Autumn	DENG Yuan-yuan, LI Jing, LI Ya-qi, <i>et al.</i> (5323)
Source Profiles and Chemical Reactivity of Volatile Organic Compounds from Surface Coating of Aluminum Products in Foshan, China	LI Xia, SU Wei-jian, LI Bi-xia, <i>et al.</i> (5334)
Emission Inventory and Characteristics of Anthropogenic Air Pollutant Sources in the Sichuan Province	ZHOU Zi-hang, DENG Ye, TAN Qin-wen, <i>et al.</i> (5344)
Characteristics of Particulate Matter Emissions from the Coking Process	WANG Yan-hui, ZHAO Liang, SUN Wen-qiang, <i>et al.</i> (5359)
Dry and Wet Deposition of Atmospheric Nitrogen in Small Catchments	WANG Huan-xiao, PANG Shu-jiang, WANG Xiao-yan, <i>et al.</i> (5365)
Seasonal Changes of the Pathways of Nitrogen Export from an Agricultural Watershed in China	LI Wen-chao, LEI Qiu-liang, ZHAI Li-mei, <i>et al.</i> (5375)
Dynamics and Runoff Losses of Nitrogen in Paddy Field Surface Water Under Combined Application of Biochar and Slow/Controlled-Release Fertilizer	 SI Lin-lin, ZHOU Jing-jie, WU Liang-huan, <i>et al.</i> (5383)
Indirect Nitrous Oxide Emissions from an Agricultural Headwater Stream During the Rainy Season in the Upper Reach of the Yangtze River	TIAN Lin-lin, WANG Zheng, ZHU Bo (5391)
Concentration, Flux, and Emission Factor of N ₂ O in Rivers with Different Nitrogen Pollution Features	WANG Miao, LI Ya-feng, LEI Kun, <i>et al.</i> (5400)
Identification of Nitrate Pollution Sources Through Various Isotopic Methods: A Case Study of the Huixian Wetland	PENG Cong, PAN Xiao-dong, JIAO You-jun, <i>et al.</i> (5410)
Temporal and Spatial Distribution of the Soil Water δD and $\delta^{18}O$ in a Typical Karst Valley: A Case Study of the Zhongliang Mountains, Chongqing City	 WU Wei, JIANG Yong-jun, JIA Ya-nan, <i>et al.</i> (5418)
Hydrochemical Characteristics of Groundwater and the Origin in Alluvial-proluvial Fan of Qinhe River	LIU Jiang-tao, CAI Wu-tian, CAO Yue-ting, <i>et al.</i> (5428)
Impact of Maximum Precipitation in 2017 on the Runoff Component of Reclaimed Water-Intaking River	LIAO An-ran, SONG Xian-fang, ZHANG Ying-hua, <i>et al.</i> (5440)
Spectral Evolution Characteristics of DOM in Sediment Interstitial Water During the Formation Stage of Thermal Stratification in the Main Reservoir Area of the Zhoucun Reservoir	 ZHOU Shi-lei, ZHANG Yi-ran, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (5451)
Pollution Characteristic of Ni in Sediments in the Three Gorges Reservoir	ZHANG Wei-jie, YIN Shu-hua, XU Dong-yu, <i>et al.</i> (5464)
Migration and Transformation of Mercury at Sediment-Water Interface of the Dahong Lake Reservoir in the Simian Mountains	GUO Pan, SUN Tao, YANG Guang, <i>et al.</i> (5473)
Effects of Wetland Types on Distribution of Soil Methylmercury Based on the Region of Nanweng River in the Greater Xing'an Mountains	ZHOU Xin-quan, LIU Yu-rong, LI Jing, <i>et al.</i> (5480)
Simulation of the Migration and Release Characteristics of Organophosphate Esters in Fluctuation Zone Soil of the Three Gorges Reservoir During Flooding	 YANG Ting, HE Ming-jing, YANG Zhi-hao, <i>et al.</i> (5487)
Spatial Distribution of Perfluoroalkyl Acids and Transformation of Their Precursors in River Water Samples and Effluents of Wastewater Treatment Plants in a Typical Tourism City	 WANG Shi-liang, SUN Jian-shu, YANG Yue-wei, <i>et al.</i> (5494)
Purification Efficiency and Microbial Characteristics of Four Biofilters Operated Under Different Conditions	JIANG Xiao-liang, LI Meng, ZHANG Shao-hui, <i>et al.</i> (5503)
Effects of Manganese on the Growth and Fluorescence Induction Kinetics of <i>Conticribra weisflogii</i>	WANG Mu-lan, JIANG Yue-lu (5514)
Distribution and Factors Affecting <i>Cylindrospermopsis raciborskii</i> in Guangdong Reservoirs	LEI Min-ting, PENG Liang, HAN Bo-ping, <i>et al.</i> (5523)
Removal of Humic Acid from Water by Magnetic Chitosan-Grafted Polyacrylamide	YOU Wen, LIU Hai-cheng, CAO Jia-wei, <i>et al.</i> (5532)
Ozone-Biological Activated Carbon for Advanced Removal of Typical Persistent Organic Pollutants from Micro-Polluted Source Water in the Yangtze Delta Region	 LAN Ya-qiong, LIU Rui, MA Zheng-jie, <i>et al.</i> (5541)
Color and Nitrogen Removal from Synthetic Dye Wastewater in an Integrated Hydrolysis/Acidification and Anoxic/Aerobic Process	GU Meng-qi, YIN Qi-dong, LIU Ai-ke, <i>et al.</i> (5550)
Removal Characteristics of High Concentrations of Perchlorate Using a "Heterotrophic Sulfur Autotrophic" Combination Process	LIU Ying-nan, TAO Hua-qiang, SONG Yuan-yuan, <i>et al.</i> (5558)
Rapid Start-up of a Nitrite-Dependent Methane Anaerobic Oxidation Reaction Under Static Pressure Conditions	WANG Yi-nan, HU Zhen, RU Dong-yun, <i>et al.</i> (5565)
Optimization of the Flow Distribution Ratio and Mechanism of Nitrogen Removal in a Multi-level AO Coupled Flow Biochemical Process	WANG Fan, LI Jun, BIAN De-jun, <i>et al.</i> (5572)
High-rate Nitrogen Removal in a Two-stage Partial Nitrification-ANAMMOX Process Under Mainstream Conditions	LIU Wen-ru, YANG Dian-hai, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (5580)
Effects of Different Substrate Concentrations on the Short-term Storage of ANAMMOX Bacteria	GAO Xue-jian, ZHANG Jie, LI Dong, <i>et al.</i> (5587)
Optimization of the Mainstream Anaerobic Ammonia Oxidation Process and Its Changes of the Microbial Community	FU Kun-ming, FU Chao, LI Hui, <i>et al.</i> (5596)
Granular Characteristics of Anaerobic Ammonia Oxidation Sludge During the Recovery Process	CHEN Fang-min, GU Cheng-wei, HU Yu-ting, <i>et al.</i> (5605)
Characterization of a Newly Isolated Strain <i>Pseudomonas</i> sp. N3 for Denitrification at Low Temperature	LU Jun-ling, CHEN Hui-ping, XIAO Lin (5612)
Heavy Metal Pollution and Potential Ecological Risk of Soil from Reclaimed Industrial Sites and Surrounding River Sediments	WU Jian, WANG Min, ZHANG Hui-peng, <i>et al.</i> (5620)
Ecological Risk Assessment of Soil Heavy Metals for Different Types of Land Use and Evaluation of Human Health	LI Chun-fang, CAO Jian-fei, LÜ Jian-shu, <i>et al.</i> (5628)
Soil Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of As at a Large-scale Arsenic Slag-contaminated Site	LIU Geng, SHI Ying, TIAN Hai-jin, <i>et al.</i> (5639)
Relationship Between the Bacterial Abundance and Production with Environmental Factors in a Subtropical Karst Reservoir	XIN Sheng-lin, LIANG Yue-ming, PENG Wen-jie, <i>et al.</i> (5647)
Structure Analysis of Arbuscular Mycorrhizal in Roots from Different Shrubs in Karst Regions	LIANG Yue-ming, SU Yi-rong, HE Xun-yang, <i>et al.</i> (5657)
Effects of Stimulated Nitrogen Deposition on the Bacterial Community Structure of Semiarid Temperate Grassland	LI Zong-ming, SHEN Ju-pei, ZHANG Li-mei, <i>et al.</i> (5665)
Effect of Phosphorus Addition on the Abundance of Autotrophic CO ₂ -Fixation Microorganisms in Rhizospheric Soil from a Phosphorus-Limited Paddy Field	 BAI Jing, LI Yi-fei, LIU Shou-long, <i>et al.</i> (5672)
Effects of Varying Long-term Fertilization on Organic Carbon Mineralization and Priming Effect of Paddy Soil	MA Xin, WEI Liang, TANG Mei-liang, <i>et al.</i> (5680)
Relationship Between the Vegetation Community and Soil Nutrient and Enzyme Activity During the Restoration of Abandoned Land in the Loess Hilly Region	 QIAO Wen-jing, DAI Yin-yue, ZHANG Wei, <i>et al.</i> (5687)
Degradation of Pentachlorophenol by Fulvic Acid in a Municipal Solid Waste Landfill	LIU Si-jia, HE Xiao-song, ZHANG Hui, <i>et al.</i> (5699)
Effect of CO ₂ Doubling and Different Plant Growth Stages on Rice Carbon, Nitrogen, and Phosphorus and Their Stoichiometric Ratios	 TANG Mei-ling, XIAO Mou-liang, YUAN Hong-zhao, <i>et al.</i> (5708)
Assessment of Medical Waste Disposal Technologies Based on the AHP	XU Xiao-fang, TAN Quan-yin, LIU Li-li, <i>et al.</i> (5717)
Livestock and Poultry Faeces Nitrogen Loading Rate and Its Potential Return to Farmland in China	LIU Xiao-yong, WANG Xiu-bin, LI Shu-tian (5723)