

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.6

第40卷 第6期

目次

北京城区大气金属元素干湿沉降特征	张国忠, 潘月鹏, 田世丽, 王永宏, 熊秋林, 李广, 顾梦娜, 吕雪梅, 倪雪, 何月欣, 黄威, 刘博文, 王跃思 (2493)
北京城郊 PM _{2.5} 中金属元素的污染特征及潜在生态风险评价	徐静, 李杏茹, 张兰, 陈曦, 杨阳, 刘永桥, 赵清 (2501)
上海城区二次气溶胶的形成: 光化学氧化与液相反应对二次气溶胶形成的影响	高杰, 乔利平, 楼晟荣, 严茹莎, 周敏, 刘瑜存, 冯加良, 黄丹丹 (2510)
天津市 2017 年重污染过程二次无机化学污染特征分析	徐虹, 肖致美, 陈魁, 李立伟, 杨宁, 高璟赞, 李源, 孔君, 毕温凯, 邓小文 (2519)
典型非金属矿物制造工艺过程源成分谱特征	赵雪艳, 于高峰, 王信梧, 张向炎, 殷宝辉, 刘盈盈, 王歆华, 杨文, 赵若杰 (2526)
垃圾焚烧厂排放颗粒物组分粒径分布特征	余卓君, 吴建会, 张裕芬, 张进生, 冯银厂, 李蒲 (2533)
天津市春季样方法道路扬尘碳组分特征及来源分析	马妍, 姬亚芹, 国纪良, 赵静琦, 李越洋, 王士宝, 张蕾 (2540)
霾天气下城市气溶胶吸湿性的观测	杨素英, 田芷洁, 张铁凝, 于兴娜, 李艳伟, 安俊琳, 赵秀勇, 李岩, 王梓航, 吴尚 (2546)
宁东能源化工基地大气 PM _{2.5} 中硝基多环芳烃污染特征及呼吸暴露风险	刘攀亮, 剧媛丽, 毛潇萱, 黄韬, 高宏, 马建民 (2556)
2014 ~ 2016 年间郑州市控制 PM ₁₀ 和 PM _{2.5} 污染的健康效益评估	韩士杰, 王佳, 燕启社, 杨留明, 赵庆炎, 王申博, 李晨, 张轶舜, 张瑞芹 (2565)
1990 ~ 2017 年中国地区气溶胶光学厚度的时空分布及其主要影响类型	刘莹, 林爱文, 覃文敏, 何利杰, 李霄 (2572)
北京春季一次霾-沙天气污染特性与成因分析	王耀庭, 李青春, 郑祚芳, 窦有俊 (2582)
江苏省内河船舶大气污染物排放清单及特征	徐文文, 殷承启, 许雪记, 张玮 (2595)
亚热带稻区大气 NO ₂ 、HNO ₃ 及硝态氮污染特征及干湿沉降	欧阳秀琴, 王波, 沈健林, 朱潇, 王杰飞, 李勇, 吴金水 (2607)
长江源区降水氢氧稳定同位素特征及水汽来源	汪少勇, 王巧丽, 吴锦奎, 何晓波, 丁永建, 王利辉, 胡召富 (2615)
基于高山湖泊沉积记录的贵州北部大气重金属污染历史重建	梁梦瑶, 刘恩峰, 张恩楼, 纪明, 李小林 (2624)
青岛 4 个海水浴场微塑料的分布特征	罗雅丹, 林千惠, 贾芳丽, 徐功娣, 李锋民 (2631)
鄱阳湖湿地候鸟栖息地微塑料污染特征	刘淑丽, 简敏菲, 周隆胤, 李文华, 吴希恩, 饶丹 (2639)
三峡库区消落带土壤溶解性有机质溯源: 基于氮/碳比值的线性双端元源负荷分析	江韬, Joeri Kaal, 梁俭, 刘江, 张耀玲, 王定勇, 魏世强, 赵铮 (2647)
水生生物光合作用对雪玉洞岩溶水体中 CDOM 的影响	范佳鑫, 蒋勇军, 贺秋芳, 王家楠, 何瑞亮, 张彩云, 马丽娜, 汪啟容 (2657)
水化学和环境同位素对济南东源饮用水源地地下水演化过程的指示	张雅, 苏春利, 马燕华, 刘伟江 (2667)
崇左响水地区地下水水质分析及健康风险评价	周巾枚, 蒋忠诚, 徐光黎, 覃小群, 黄奇波, 张连凯 (2675)
云南荞麦地流域地下水水化学特征及物质来源分析	张勇, 郭纯青, 朱彦光, 于爽 (2686)
鄱阳湖流域多尺度 C、N 输送通量及其水质参数变化特征	陆瑶, 高扬, 贾珺杰, 宋贤威, 陈世博, 马明真, 郝卓 (2696)
合流制面源污染传输过程与污染源解析	房金秀, 谢文霞, 朱玉玺, 沈雷, 马玉坤, 李佳, 姜智绘, 李叙勇, 赵洪涛 (2705)
强化浅基质层干植草沟对道路径流的脱氮效果	段进凯, 李田, 张佳炜 (2715)
水源水库暴雨径流过程水体锰的迁移及其影响	邓立凡, 黄廷林, 李楠, 李凯, 吕晓龙, 毛雪静 (2722)
巢湖十五里河沉积物磷吸收潜力及对外源碳的响应	李如忠, 鲍琴, 张瑞钢, 陈慧 (2730)
金盆水库沉积物磷的来源及分布特征	毛雪静, 黄廷林, 李楠, 徐金兰, 苏露, 吕晓龙, 邓立凡 (2738)
水库水体热分层的水质及细菌群落分布特征	王禹冰, 王晓燕, 庞树江, 杨晓明, 刘洋 (2745)
不同水温分层水库沉积物间隙水营养盐垂向分布与细菌群落结构的关系	王慎, 张思思, 许尤, 官卓宇, 杨正健, 刘德富, 马骏 (2753)
表面流人工湿地长期运行后的底泥营养盐累积特征与释放规律	朱伊梦, 姜翠玲, 朱立琴, 杜观超, 高旭, 陈红卫, 李峰东, 张海阔, 张雪, 秦文凯, 李一平 (2764)
针铁矿改性生物炭对砷吸附性能	朱司航, 赵晶晶, 尹英杰, 商建英, 陈冲, 瞿婷 (2773)
改性稻壳生物炭对水溶液中甲基橙的吸附效果与机制	史月月, 单锐, 袁浩然 (2783)
厌氧膜生物反应器处理含盐废水运行效能及膜污染特性	闫欢沙, 许振钰, 金春姬, 邵梦雨, 郭亮, 赵阳国 (2793)
污水处理厂出水有机磷污染特征及强化去除	王小东, 王子文, 陈明飞, 王燕, 王硕, 李激 (2800)
碱度对沸石序批式反应器亚硝化的影响	王瑞鑫, 陈婧, 汪晓军, 胡浩林, Karasuta Chayangkun (2807)
活性污泥物理结构对呼吸过程的影响	郭耀, 李志华, 杨成建, 王慧娟, 李亚明, 姜阳 (2813)
好氧颗粒污泥处理畜禽养殖沼液污染物的特性	廖杰, 叶嘉琦, 曾志超, 刘琳, 徐开钦, 刘超翔 (2821)
快速城市化区河流温室内空气排放的时空特征及驱动因素	刘婷婷, 王晓峰, 袁兴中, 龚小杰, 侯春丽 (2827)
生物炭对潜流人工湿地污染物去除及 NO ₃ 排放影响	邓朝仁, 梁银坤, 黄磊, 方丹丹, 陈玉成, 杜刚 (2840)
曾用抗生素磺胺二甲嘧啶对稻田 N ₂ O 排放的影响及其微生物机制	吴杰, 李志琳, 徐佳迎, 王珏, 蒋静艳 (2847)
不同施氮水平对紫花苜蓿草地土壤呼吸和土壤生化性质的影响	胡伟, 张亚红, 李鹏, 张鹏, 李满友, 尤璟涛, 田水泉 (2858)
典型城市化区域土壤重金属污染的空间特征与风险评价	何博, 赵慧, 王铁宇, 孟晶, 肖荣波, 刘胜然, 周云桥, 史斌 (2869)
西南高锡地质背景区农田土壤与农作物的重金属富集特征	刘意章, 肖唐付, 熊燕, 宁增平, 双燕, 李航, 马良, 陈海燕 (2877)
基于 GIS 和受体模型的枸杞地土壤重金属空间分布特征及来源解析	白一茹, 张兴, 赵云鹏, 王幼奇, 钟艳霞 (2885)
喀斯特地区小尺度农业土壤砷的空间分布及污染评价	汪花, 刘秀明, 刘方, 唐启琳, 王世杰 (2895)
黄土高原不同植被带人工刺槐林土壤团聚体稳定性及其化学计量特征	瞿晴, 徐红伟, 吴旋, 孟敏, 王国梁, 薛蓑 (2904)
秸秆还田配施氮肥对喀斯特农田微生物群落及有机碳矿化的影响	徐学池, 苏以荣, 王桂红, 刘坤平, 胡亚军, 陈香碧, 郑小东, 何寻阳 (2912)
生物炭施用及老化对紫色土中抗生素吸附特征的影响	阴文敏, 关卓, 刘琛, 何杨, 杨飞, 唐翔宇 (2920)
稳定性同位素 DNA-SIP 示踪中性紫色土的氨氧化过程	刘天琳, 王智慧, 闫小娟, 赵永鹏, 贾仲君, 蒋先军 (2930)
纳米银和银离子对土壤中硝化微生物及其氨氧化速率的影响	伍玲丽, 张旭, 舒慧慧, 张丽, 司友斌 (2939)
农田沟道土壤中锰氨氧化 (Mn-ANAMMOX) 过程的探究	陈湜, 李正魁, 覃云斌, 丁帮环, 陈志浩 (2948)
污泥四要素含量对蚯蚓堆肥中氨氧化菌群的影响	吴颖, 黄魁, 夏慧, 陈景阳 (2954)
《环境科学》征订启事 (2929)	《环境科学》征稿简则 (2947)
信息 (2646, 2656, 2857)	

霾天气下城市气溶胶吸湿性的观测

杨素英¹, 田芷洁¹, 张铁凝², 于兴娜¹, 李艳伟¹, 安俊琳¹, 赵秀勇³, 李岩¹, 王梓航¹, 吴尚¹

(1. 南京信息工程大学大气物理学院, 中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室, 南京 210044; 2. 辽宁省人工影响天气办公室, 沈阳 110016; 3. 国电环境保护研究院, 国家环境保护大气物理模拟与污染控制重点实验室, 南京 210031)

摘要: 气溶胶吸湿性对大气能见度有重要影响, 是形成霾污染的主要因素之一。利用南京信息工程大学观测获得的 2014 年 4 月 17 日至 5 月 21 日气溶胶吸湿增长因子(GF)、OC/EC 以及水溶性无机离子资料, 对南京霾日气溶胶吸湿性及主要化学组分进行分析。结果表明, 随着粒径的增加, 平均吸湿增长因子(GF_{mean})数值变化较小, 吸湿性标准差(σ)逐渐增大, 化学组分的外混合程度逐渐增强; 白天气溶胶粒子的吸湿性强于夜间, 但是外混合程度弱于夜晚; 非霾日气溶胶吸湿性强, 外混合程度高, 霾日正好与之相反, 且随着霾等级的增加, 吸湿性和外混合程度都进一步减小; 非霾日气溶胶主要水溶性无机离子为 NH_4^+ 、 NO_3^- 和 SO_4^{2-} , 而霾日 OC/EC 的含量占比较高; 含量相对丰富的 OC/EC 是造成低湿背景霾天气下小尺度气溶胶吸湿性变弱的主要原因, 霾日所处环境相对湿度的高低也是影响气溶胶吸湿能力的重要因素; 整个观测期间, 南京市气溶胶化学组分中 $(NH_4)_2SO_4$ 和 OC 等不可溶物质含量最多, NH_4NO_3 含量次之; 利用化学组分计算得到的平均吸湿性参数 κ_{chem} 和利用 H-TDMA 仪器实际观测计算得出的 κ_{mean} 存在较好的一致性, 两者的相关性在霾天气下进一步增强, 因此可以利用气溶胶主要化学组分来预报气溶胶吸湿性。

关键词: 城市; 霾; 气溶胶; 吸湿性; 化学组分

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)06-2546-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201806173

Urban Aerosol Hygroscopicity During Haze Weather

YANG Su-ying¹, TIAN Zhi-jie¹, ZHANG Tie-ning², YU Xing-na¹, LI Yan-wei¹, AN Jun-lin¹, ZHAO Xiu-yong³, LI Yan¹, WANG Zi-hang¹, WU Shang¹

(1. Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, School of Atmospheric Physics, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 2. Weather Modification Office of Liaoning Province, Shenyang 110016, China; 3. State Environmental Protection Key Laboratory of Atmospheric Physical Modeling and Pollution Control, State Power Environmental Protection Research Institute, Nanjing 210031, China)

Abstract: The hygroscopicity of aerosols has an important influence on atmospheric visibility and is one of the main causes of haze pollution. Based on observations of the aerosol hygroscopic growth factor (GF), water soluble inorganic ions, and organic carbon/elemental carbon (OC/EC) data during haze weather from April 17 to May 21, in 2014, the hygroscopic properties of aerosols and corresponding effects on haze in Nanjing were analyzed. The results showed that the distribution of GF was bimodal and varied from 1.12 to 1.64. With the increase of particle size, the average hygroscopic growth factor (GF_{mean}) changed less and the standard deviation of wettability (σ) increased gradually; meanwhile, the degree of external mixing of chemical components increased gradually. The hygroscopicity of aerosol particles in the day was better than that at night, but the mixing degree was weaker than that at night; in non-haze weather, the hygroscopicity of aerosol particles was stronger and the degree of external mixing was higher, while the hygroscopicity and mixing degree of haze particles showed opposite trends. With the increase of haze levels, the hygroscopicity of aerosol particles grew weaker and the degree of external mixing decreased further. Relative humidity can have a significant impact on the chemical components of aerosols and their hygroscopic capacity. Under a low humidity background, the main chemical components of aerosols included NH_4^+ , NO_3^- , SO_4^{2-} , OC, and EC, and the content of OC/EC in aerosols during haze days was more abundant; in haze weather with low relative humidity, abundant organic matter was the main reason for the decrease of the moisture absorption capacity of small-scale aerosols. The level of relative humidity in the haze weather was also an important factor affecting the hygroscopic capacity of aerosols. The contents of $(NH_4)_2SO_4$, OC, and insoluble substances in aerosols were the highest, followed by NH_4NO_3 . The contents of these chemical components showed obvious diurnal variation characteristics, which resulted in significant diurnal variation of the hygroscopicity of the aerosols. κ_{chem} calculated by the chemical composition and κ_{mean} acquired by observations using H-TDMA showed good consistency, and the correlation coefficient was 0.890 3. In haze weather, the correlation between them was further enhanced. Therefore, the major chemical components of aerosols could be used to predict the hygroscopic properties of aerosols.

Key words: urban; haze; aerosol; hygroscopicity; chemical component

霾是大量细小干尘、烟粒和盐粒等物质均匀悬浮在空中, 使得空气普遍浑浊的一种灾害性天气现象

收稿日期: 2018-06-20; 修订日期: 2018-12-21

基金项目: 国家自然科学基金项目(41575133); 科技部重点专项(2016YFC0203501, 2017YFC1501404); 江苏省高等学校大学生创新创业训练计划项目(201810300013Z, 201810300072X)

作者简介: 杨素英(1975~), 女, 博士, 副教授, 主要研究方向为气溶胶及其环境间接气候效应, E-mail: ysy@nuist.edu.cn

象,对大气能见度、空气质量及人体健康都有很大影响^[1].气溶胶污染是霾污染形成的主要原因^[2].张小曳等^[3]在 IPCC 第五次评估报告中指出,我国霾天出现的主要原因就是高居不下的气溶胶污染.

气溶胶吸湿性表征的是气溶胶在周围环境相对湿度增加时的吸水能力^[4],对其物理化学性质都有重要影响.开展气溶胶吸湿性的相关研究对了解霾的生成、颗粒物混合状态以及能见度预测都有重要意义.吴兑等^[5]通过研究发现:较高的环境相对湿度和 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度是广州霾污染频发的重要因素;江文华等^[6]指出气溶胶在经历吸湿增长后,其消光作用增强从而使得大气能见度下降,加重了霾污染.宋宇等^[7]在针对北京市能见度的研究中发现,在相同气溶胶浓度下,能见度与环境相对湿度呈反比,即较高的相对湿度更易引发重度霾污染.

气溶胶的吸湿能力主要取决于气溶胶的化学组分和其混合方式. Pitchford 等^[8]的研究指出,弱吸湿性的气溶胶粒子主要是由含碳和尘埃颗粒构成,强吸湿性的气溶胶粒子主要是被氧化的无机物、无机盐和盐与有机物的混合物. Tan 等^[9]通过对污染期间气溶胶吸湿能力的观测发现:局地排放的气溶胶粒子中弱吸湿性粒子占比较多,且混合状态倾向于外混合. 颜鹏等^[10]的研究发现冬季北京市区气溶胶的散射系数在空气污染严重时较高,且在不同的污染条件气溶胶的化学组分也不同;吴奕霄等^[11]分析了不同背景下气溶胶的吸湿性,发现污染背景下气溶胶的 GF 和强吸湿粒子占比均高于清洁背景下,这主要与温度、压强、湿度和风速等气象要素以及气溶胶粒子的内外混合状态有关.

目前有不少专家学者针对气溶胶吸湿性及其混合状态进行了研究. 张茹等^[12]在对南京市冬季大气气溶胶吸湿性的研究中探讨了不同粒径范围的气溶胶吸湿特征,并探讨了污染发生和消散等不同过程中气溶胶强弱吸湿组粒子占比及 GF_{mean} 的变化差异. 徐彬等^[13]对春季南京北郊气溶胶吸湿性的研究中重点分析了气溶胶吸湿性的日夜变化,利用 HYSPLIT 模式比较分析了不同气团背景下气溶胶的老化程度及吸湿能力;吴奕霄等^[11]对大气气溶胶吸湿性的研究则重点分析了不同湿度等级下气溶胶吸湿性的变化特征,以及污染时段基本气象要素及气团来源对气溶胶吸湿性的影响. 本研究是在上述研究的基础背景下,主要研究不同等级霾天气下气溶胶吸湿的主要特征和彼此差异,进而获得不同等级霾天气下气溶胶混合方式的尺度分布特征和彼此差异,并通过利用气溶胶化学组分建立不同粒径气溶胶吸湿参数,并与观测获得的气溶胶吸湿参数

进行闭合分析,进而获得影响霾天气的主要化学组分.

南京位于长江三角洲的中心,城市化和工业化得到快速发展,但与此同时,环境污染问题也日益严重,空气中气溶胶浓度显著增加^[14]. 已有研究显示近年来南京霾日数增长迅速,霾污染程度远高于全国平均水平,是中国四大灰霾频发区之一^[15]. 因此在南京展开霾天气下气溶胶吸湿性的观测研究对探究霾的形成原因及今后防霾治霾、解决环境污染问题有重大意义.

1 材料与方法

1.1 观测地点与时间

本文的观测点选取了位于南京市浦口区的南京信息工程大学($\text{N}32.2^\circ$, $\text{E}118.717^\circ$,如图1). 观测时间为2014年4月17日~5月21日. 本文选取了观测期间的基本气象要素、边界层高度、 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度、能见度和气溶胶化学组分及其吸湿因子等资料开展研究. 基本气象要素、 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度和能见度均采用小时分辨率;混合层高度采用每6 h, 2.5 格点的全球再分析资料,数据源自美国国家海洋局和大气管理局空气资源实验室网站(<http://ready.arl.noaa.gov/READYamet.php>).



图1 采样地点及周边地区示意

Fig. 1 Sampling sites and surrounding areas

1.2 观测仪器与数据分析方法

GF 资料采用美国 MSP 公司制造的 H-TDMA 1500(用于选定粒子)和 H-TDMA 1040(用于粒子的加湿和测量吸湿增长后的谱分布)仪器获得. 通过对比气溶胶吸湿前后粒径的变化,获得 GF. H-TDMA 是目前研究气溶胶吸湿性应用最为广泛的仪器,其数据精度较高并且响应速率较快^[16]. 但其测定的粒子范围在 230 nm 以下,因此本文只针对小于 230 nm 的小粒径段气溶胶进行吸湿特征因子的对比分析. 两台 DMA 测样流量都固定在 $0.3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$, 鞘流按照鞘样流比设置为 10:1, DMA1 的鞘流为 $6 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$, DMA2 的鞘流为 $3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$, H-TDMA 观测粒径大小设置为 30、70、110、150、

190 和 230 nm, 每个粒径观测时间为 30 min, 相对湿度设置为 90%.

使用 FA-3 型安德森撞击式采样器获取气溶胶的化学组分. 其采样粒径一共分为 9 级, 具体为粒径 <0.43 、 $0.43 \sim 0.65$ 、 $0.65 \sim 1.1$ 、 $1.1 \sim 2.1$ 、 $2.1 \sim 3.3$ 、 $3.3 \sim 4.7$ 、 $4.7 \sim 7$ 、 $7 \sim 11$ 和 $>11 \mu\text{m}$.

依据 H-TDMA 和 FA-3 型安德森撞击式采样器的设计原理, 本文所使用的粒子直径均为空气动力学直径 D_p :

$$D_p = D_g K \sqrt{\frac{\rho_p}{\rho_0}} \quad (1)$$

式中, D_g 为集合直径; K 为形状系数; ρ_p 为粒子密度; $\rho_0 = 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$.

对气溶胶水溶性离子组分用特氟龙膜进行采样. 离子组分用瑞士万通 850 professional IC 型色谱仪, 检测的无机离子主要包括: Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ 、 K^+ 、 NH_4^+ 、 NO_2^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 Cl^- 和 F^- . 对元素碳 (EC) 和有机碳 (OC) 使用石英膜进行采样, 其质量浓度采用 DRI Model 2001A 热/光分析仪测定.

通过 H-TDMA 观测气溶胶吸湿过程可获得 GF 的概率分布函数 (GF-PDF) 和不同吸湿模态下粒子的平均吸湿增长因子 (GF_{mean}) 和各模态粒子数目的占比. 本次观测实验结果拟合利用的是 MSP 公司开发的 HTDMAfit 软件, 采用 TDMAfit 算法^[13] 处理每一个由 H-TDMA 得到的数据. Cysel 等^[17] 给出了常用的统计量:

$$\text{GF}_{\text{mean}} = \int_0^\infty g c(g) dg \quad (2)$$

$$\sigma = \left[\int_0^\infty (g - g_{\text{mean}})^2 c(g) dg \right]^{1/2} \quad (3)$$

式中, GF_{mean} 表示等效粒径的平均吸湿因子; g 为同样环境相对湿度下, 粒子吸湿增长后的湿直径与粒子吸湿前的干直径之比; $c(g)$ 代表 GF 的概率分布密度 (GF-PDF); σ 表示 GF 的标准差, 用于表示 GF-PDF 的离散程度.

为方便比较不同方法得到的气溶胶吸湿性, 引入无量纲量吸湿性参数 κ 对其进行描述. κ 和 GF 以及相对湿度的关系可表示为^[18]:

$$\kappa = (\text{GF}^3 - 1) \left[\frac{1}{f} \exp \left(\frac{4\sigma M_w}{RT\rho_w D_p} \right) - 1 \right] \quad (4)$$

式中, GF 是吸湿增长因子; f 是相对湿度 (%); M_w 是纯水的摩尔质量 ($M_w = 18 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$); R 是理想气体常数 [$R = 8.314 \text{ J}\cdot(\text{mol}\cdot\text{K})^{-1}$]; T 是温度 (K); ρ_w 是纯水的密度 ($\rho_w = 1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$); D_p 是气溶胶粒子的干粒径 (nm).

为了得到影响气溶胶吸湿能力的化学组分, 本

文根据水溶性离子组分优先配对组合原则^[19], 获得化合物, 具体方法参考文献^[20]. 在气溶胶化学组分的尺度分析基础上, 采用 ZSR (zdanovskii stokes robinson) 方程计算出气溶胶的吸湿性参数 κ (表 1)^[19, 21].

$$\kappa = \sum \varepsilon_i \kappa_i \quad (5)$$

式中, ε_i 对应的是气溶胶粒子中第 i 种化合物所占的体积分数, κ_i 对应的是气溶胶粒子中第 i 种化合物的吸湿性参数.

表 1 不同纯物质的吸湿性参数^[19, 21]

组分	吸湿性参数 (κ)	密度/ $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	文献
NH_4NO_3	0.68	1.72	[19]
$(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$	0.52	1.77	[19]
WSOC	0.30	1.40	[21]

1.3 霾日的划分标准

根据中国气象局 2010 年发布的关于霾的划分方法^[22], 并结合庄智一^[23] 对霾的划分方法, 在小时级能见度 (V) 数值 $<10 \text{ km}$ 时 (排除由于降水、沙尘暴、扬尘和吹雪等天气现象造成的视程障碍), 当环境相对湿度 $<80\%$ 且持续时间 $\geq 3 \text{ h}$, 判断为霾; 当环境相对湿度在 $80\% \sim 95\%$ 之间, $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度高于 $75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 且持续时间 $\geq 3 \text{ h}$ 也判断为霾. 其中能见度 $<2 \text{ km}$ 时定义其为重度霾, 能见度在 $2 \sim 3 \text{ km}$ 时定义其为中度霾, 能见度在 $3 \sim 5 \text{ km}$ 时定义其为轻度霾, 能见度在 $5 \sim 10 \text{ km}$ 时定义其为轻微霾 (详见表 2).

表 2 霾等级划分标准

霾等级	RH $<80\%$ 划分标准	$80\% \leq \text{RH} < 95\%$ 划分标准
重度	$V < 2 \text{ km}$ 持续时间不小于 3 h	满足 RH $<80\%$ 时的划分标准且 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度高于 $75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
中度	$2 \text{ km} \leq V < 3 \text{ km}$ 持续时间不小于 3 h	
轻度	$3 \text{ km} \leq V < 5 \text{ km}$ 持续时间不小于 3 h	
轻微	$5 \text{ km} \leq V < 10 \text{ km}$ 持续时间不小于 3 h	

2 结果与讨论

2.1 相对湿度、能见度和 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度时间变化特征及霾日选取

根据上述霾日标准判断, 并结合观测获得的能见度、相对湿度和 $\text{PM}_{2.5}$ 小时级资料, 进行了不同等级的霾日划分. 将 4 月 23 日、5 月的 3、6、7 和 12 日判定为非霾日; 4 月的 22、24、28、29、30 日、5 月的 1、2、4、5、8、9 和 13~16 日为轻微霾日; 5 月的 17 和 21 日为轻度霾日; 4 月 20 日、5 月的 9 和 20 日为中度霾日; 5 月 18 日为重度霾日; 4 月的 17~19、21、25~27 日、5 月的 10、11 和 16 日出现

降水，排除降水日。

观测期间环境相对湿度呈现出明显的日变化特征：白天低，夜晚高（图2）。排除降水日后平均相对湿度为 53.07%，其中最小值仅为 29.75%。非霾日相对湿度的平均值为 42.58%，而霾日的平均值达到了 60.65%，且随着霾等级的增加，相对湿度进一步增加。即霾日与非霾日均处于低湿状态，但霾

日的相对湿度明显大于非霾日。能见度是霾等级划分的重要参数，本次观测期间能见度数值的变化波动较大，最大值为 10.54 km，最小值仅为 0.51 km。霾天气下 $PM_{2.5}$ 质量浓度明显高于非霾日：霾日下 $PM_{2.5}$ 的最大值达到了 $209 \mu g \cdot m^{-3}$ ，非霾日下最低值仅为 $10 \mu g \cdot m^{-3}$ ，两者相差近 21 倍。观测期间的其它气象要素详见文献[13]。

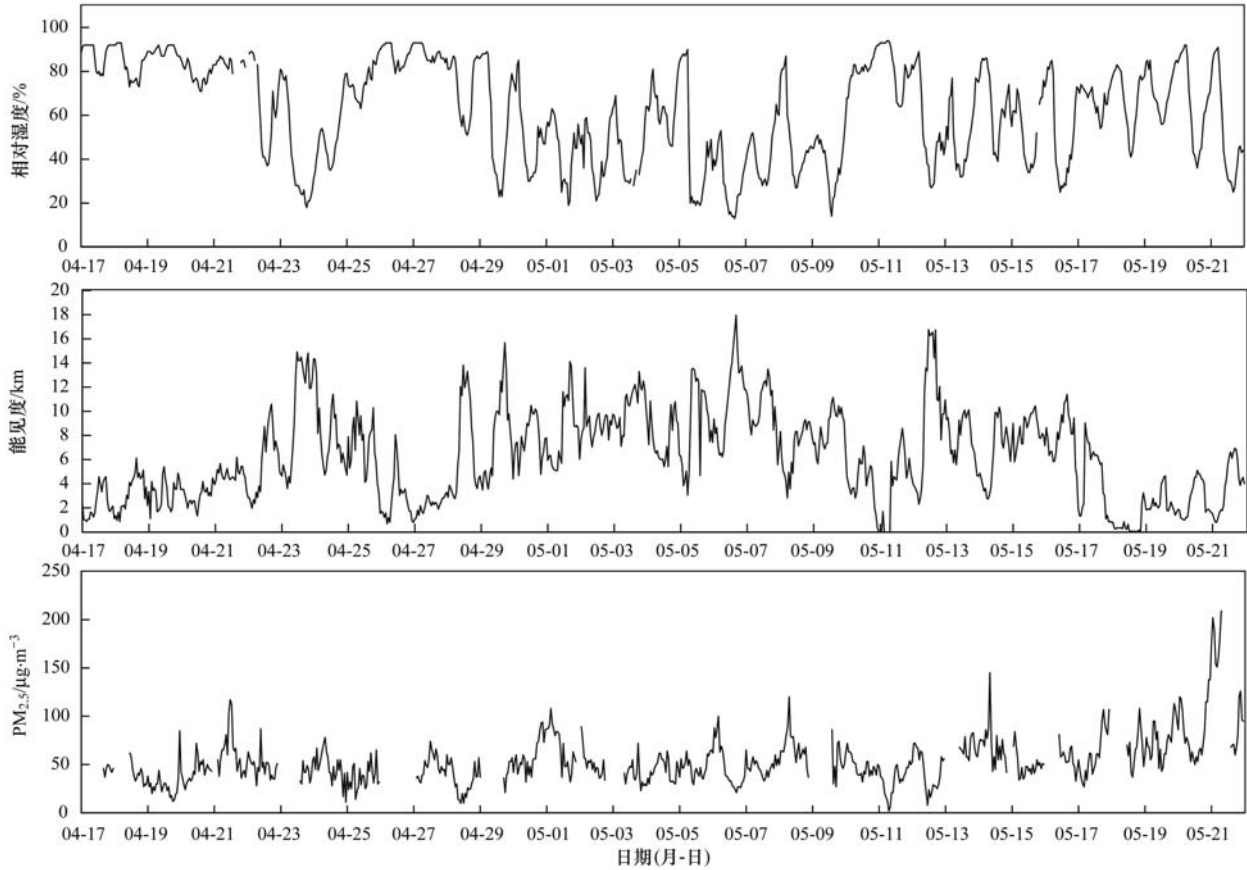


图2 观测期间相对湿度、能见度及 $PM_{2.5}$ 随时间变化

Fig. 2 Temporal variations of relative humidity, visibility and $PM_{2.5}$

2.2 气溶胶吸湿性总体变化特征

观测期间气溶胶整体 GF 谱分布呈双峰分布（GF = 1.0 处有一个弱吸湿模态峰值，GF = 1.4 处有一个强吸湿模态峰值），并以 GF = 1.2 为强弱吸湿模态粒子的划分线。且与其它粒径段的气溶胶粒子相比，30 nm 粒径的气溶胶粒子弱吸湿模态峰值较高，说明了其化学组分和混合状态与大粒径段的粒子存在明显差别。汤莉莉等^[24]和 Jiang 等^[25]分别在对南京市鼓楼区持续性灰霾天气和珠三角地区气溶胶吸湿性及混合状态的研究中也均发现类似结论。具体 GF 谱分布详见文献[13]。

观测期间 30、70、110、150、190 和 230 nm 粒径段的平均吸湿因子 GF_{mean} 分别在 1.15 ~ 1.71、1.14 ~ 1.64、1.13 ~ 1.58、1.12 ~ 1.56、1.15 ~ 1.55 和 1.12 ~ 1.55 之间变化，它们的平均值分别

为 1.27、1.29、1.28、1.26、1.26 和 1.26，表明 GF_{mean} 总体呈波动变化，但随着粒径的增长， GF_{mean} 没有明显增强。钱小东等^[26]通过对安徽寿县不同粒径气溶胶吸湿特征的研究发现，小粒径段（小于 250 nm）的气溶胶随粒径的增大其吸湿因子并无明显变化，与本次研究结论较为一致，其推测可能因为小粒径的气溶胶来源较为相似。图 3 中不同粒径的气溶胶平均标准差 σ 分别为 0.12、0.16、0.16、0.17、0.17 和 0.18，即 σ 随粒径的增加而增大。由于 σ 可以代表气溶胶粒子的混合状态， σ 较小代表气溶胶粒子的化学组分和性质相同，外混合程度较低，或者处在准内混合态，而 σ 较大则表示粒子化学组分和性质不同，外混合程度高。综上，观测期间随着粒径的增加，气溶胶的外混合程度变高，该结论与吴奕霄等^[11]的研究结果一致。

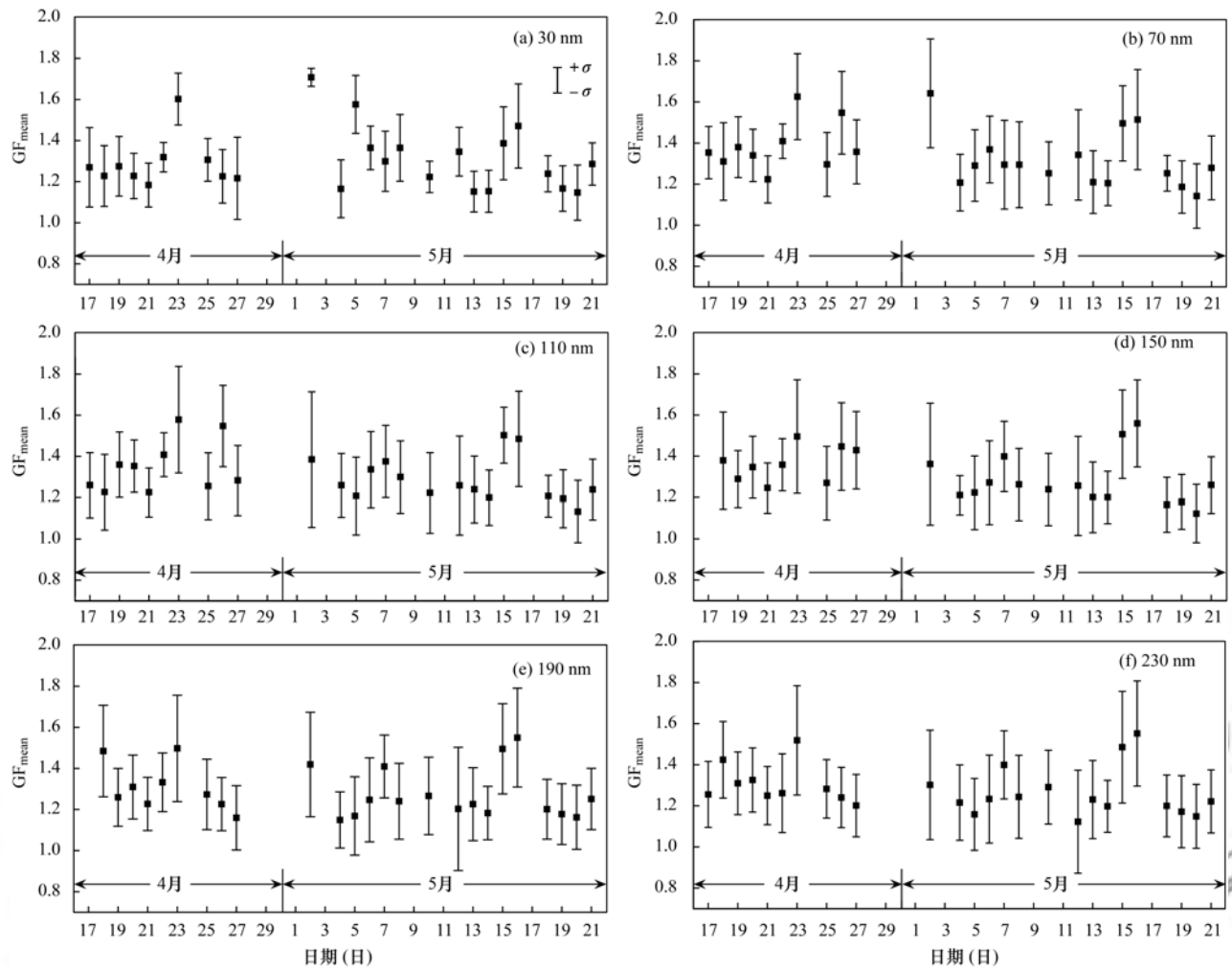


图 3 不同粒径气溶胶粒子的 GF_{mean} 及 σ 随时间分布

Fig. 3 Temporal distribution of the GF_{mean} and σ with time for aerosol particles of different particle sizes

由图 4(a) 可以看出: 各粒径段白天的 GF_{mean} 均大于其对应的夜间 GF_{mean} , 说明粒子白天的吸湿能力较强. Liu 等^[27] 在之前的研究中有类似的结论, 他们认为造成此现象的原因是夜间边界层较为稳定, 会使得新鲜排放的弱吸湿性粒子在近地面层堆积, 而白天边界层抬升(图 5), 上层老化的气溶胶

粒子会因为夹卷作用而堆积到近地面层, 且白天的光化学反应也加速了粒子的老化, 导致了白天强吸湿模态的粒子占比明显多于夜间. 吴奕霄等^[11] 也认为当气溶胶进入老化阶段后, 随着老化过程的不断进行, 气溶胶粒径会继续增长, 可吸湿性物质持续增加, 在积聚模态粒子的外部混合更加明显. 由

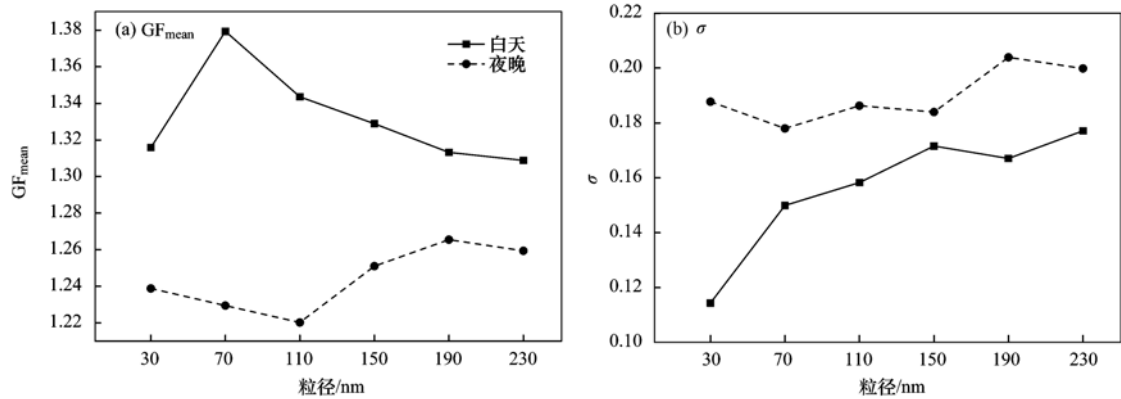


图 4 不同粒径气溶胶粒子的 GF_{mean} 及 σ 日夜对比

Fig. 4 Comparison of the GF_{mean} and σ for aerosol particles of different diameters during day and night

图 4(b) 可以看出白天各个粒径段粒子的 σ 均小于夜间, 这说明白天 GF_{mean} 较均匀, 外混合程度较低. 为了进一步验证白天和夜晚 GF_{mean} 和 σ 的该差异是

否显著, 本文进行了差值 t 检验, 研究表明在各个粒径段两个物理量在白天和夜晚的差值具有明显的差异, 已通过了置信度为 95% 的显著性检验.

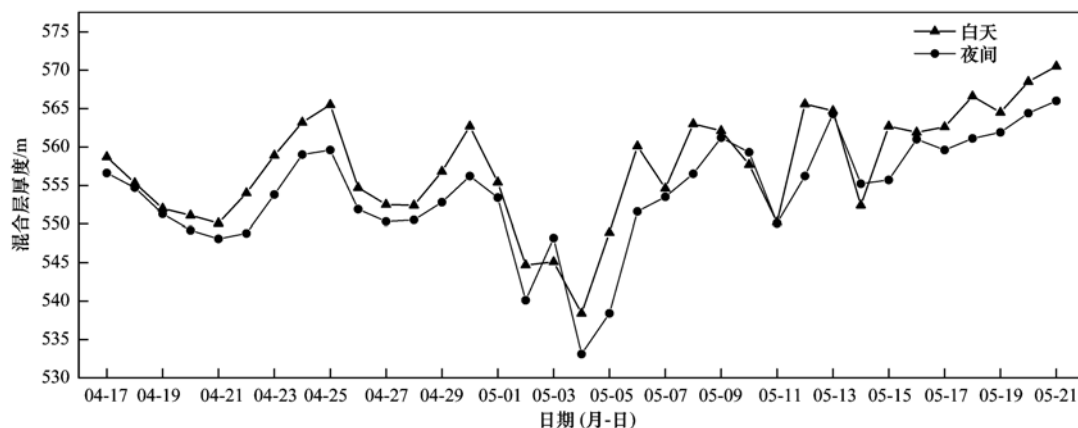


图 5 混合层厚度随时间变化

Fig. 5 Temporal variations of the mixing layer thickness

2.3 霾日气溶胶吸湿性特征

根据 2.1 节中霾日判断标准, 本文选取了不同等级霾日作为研究对象. 对比各等级下气溶胶粒子的 GF_{mean} [图 6(a)]. 从中可以发现非霾日各粒径的 GF_{mean} 均明显大于霾日的 GF_{mean} , 非霾日 GF_{mean} 在 1.38 ~ 1.43 之间变化, 霾日 GF_{mean} 在 1.15 ~ 1.29 之间变化. 说明非霾日气溶胶吸湿性更强, 霾日气

溶胶吸湿性较弱; 对同一粒径的气溶胶粒子在不同等级霾天气下 GF_{mean} 值的对比可以发现, 随着霾等级的增加, 各粒径 GF_{mean} 值逐渐减小, 即气溶胶粒子的吸湿性逐渐变弱. 同时对不同霾等级下的弱吸湿组 GF1 和强吸湿组 GF2 进行统计 [图 6(b)]. 从中可以发现粒径增加会导致弱吸湿组气溶胶粒子的 GF 呈略微减小的趋势.

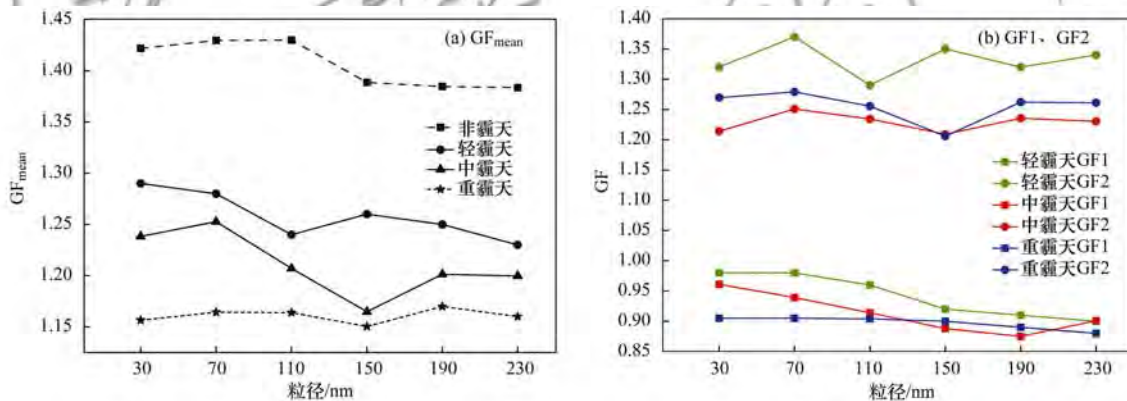


图 6 不同等级霾天气下各粒径粒子的 GF_{mean} 、GF1 和 GF2

Fig. 6 Size distributions of the GF_{mean} and GF1, GF2 on haze days with different grades

由 FA-3 采样器获得的分粒径气溶胶离子化学组分资料, 可计算出气溶胶粒子的主要离子组分及 OC/EC 的质量浓度随粒径变化的谱分布, 见图 7. 从中可以看出各主要可溶性离子及 OC/EC 在粒径小于 430 nm 的范围内均随气溶胶粒径的增大而增大, 由此可计算出粒径小于 230 nm 的气溶胶粒子中的主要离子组分的质量浓度, 见图 8. 从中可以看出, 粒径小于 230 nm 的气溶胶粒子其化学组分质量浓度随时间的变化而变化, 其中 OC 的质量浓度最为丰富, 其次是 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NO_2^- 、 NH_4^+ 和 Cl^- 的质量浓度也较多.

为了进一步确定霾天气下气溶胶吸湿能力变弱的原因, 本文给出了霾天与非霾天粒径小于 230 nm 气溶胶的离子化学组分所占质量分数分布, 见图 9. 可发现霾日非霾日气溶胶主要化学组分为: 水溶性无机离子 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} (SNA) 和 OC/EC. 其中 SNA 和 OC 的质量分数在霾日非霾日差异较大. 霾日 SNA 所占的比例较低, OC/EC 较高. 相关研究表明, 由于有机组分的吸湿性较弱, 当 OC/EC 占比较高时, 气溶胶的吸湿能力会有所降低^[28]; 同时根据观测期间气象要素的统计资料发现, 此次霾日发生的环境相对湿度较低, 平均值为

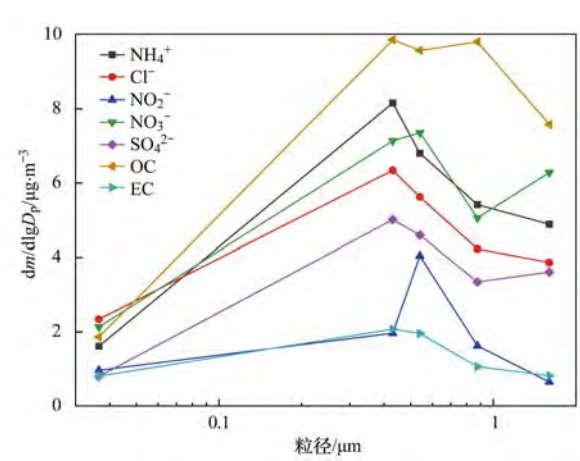


图 7 主要离子成分及 OC/EC 质量谱分布

Fig. 7 Mass concentration spectrum distribution of the main ion components and OC/EC obtained by the sampler

60.65%，闫璐璐等^[29]认为相对湿度会影响污染物的主要组成，在 60% 左右的低湿环境下 OC/EC 的增长较快，但不利于 SNA 的增长。综上所述，低湿背景的霾天气下含量相对丰富的有机物气溶胶是造成小尺度气溶胶吸湿性减弱的主要原因。

根据气溶胶吸湿增长因子标准差所表示的物理意义，为了了解霾天时气溶胶化学组分特征，对不同等级霾天气下不同粒径气溶胶平均吸湿增长因子的标准差 σ 进行了比较，如图 10。从中可以看出，非霾日与霾日 σ 的变化趋势较为一致，都表现为 σ 随粒径的增大而增大，这表明气溶胶粒子的外混合程度随粒径的增大而增加；各个粒径段非霾日气溶胶粒子 σ 均明显大于霾日，且随着霾等级的增加， σ 逐渐减小，说明非霾日气溶胶粒子的化学组

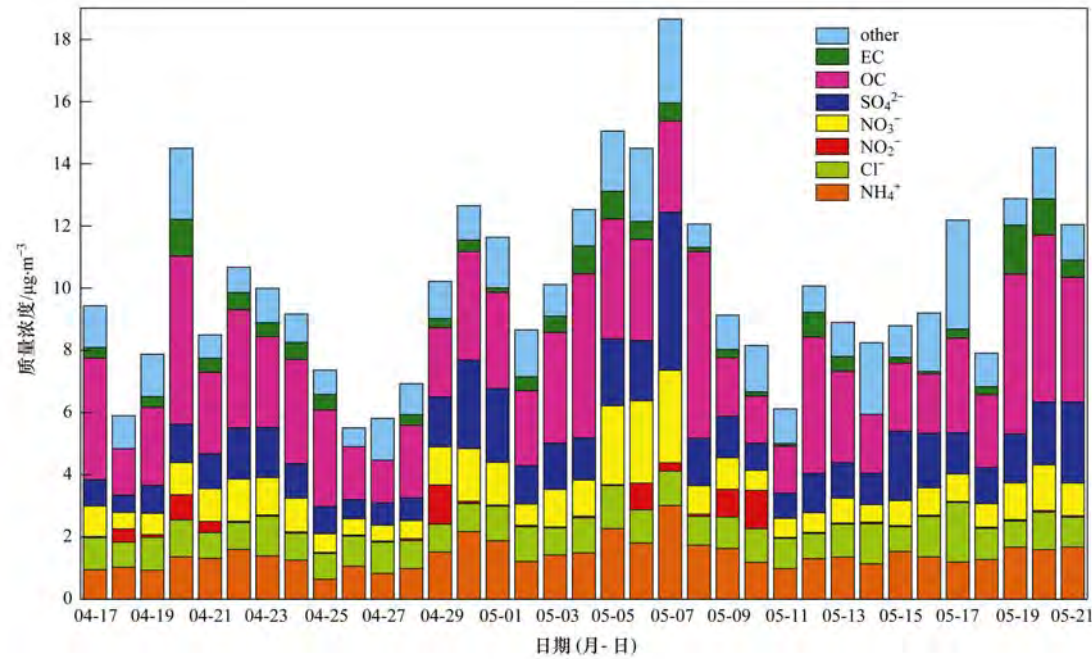


图 8 气溶胶可溶性无机离子、OC/EC 实际质量浓度随时间分布

Fig. 8 Temporal distribution of mass concentrations of soluble inorganic ions and OC/EC

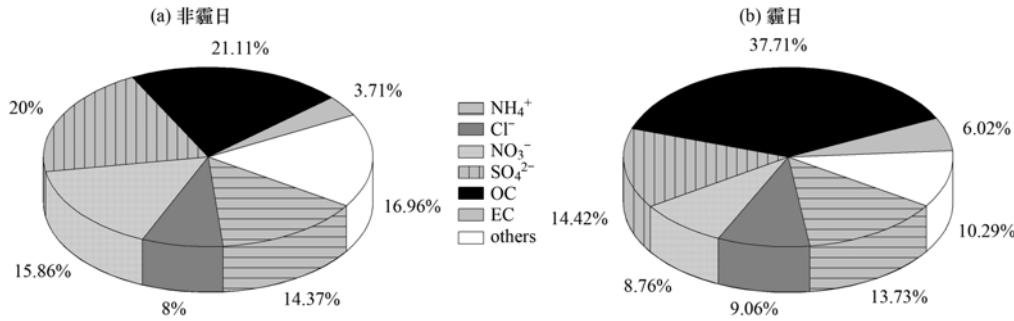


图 9 非霾日、霾日下气溶胶离子组分质量分数

Fig. 9 Contents of aerosol ion components by mass fraction on non-haze days and haze days

分更为复杂，具有更大的外混合比例，而霾日气溶胶化学组成特征与之相反，呈现准内混合特征，并且随着粒径的减小，该准内混合的特征更为明显。

综合上一节的分析可以进一步说明，粒径越小的气溶胶中有机气溶胶的含量越丰富，其与其他主要化学组分(硫酸盐、硝酸盐和铵盐)容易形成准内混合

的状态, 这与先前其他学者的研究结果一致^[17].

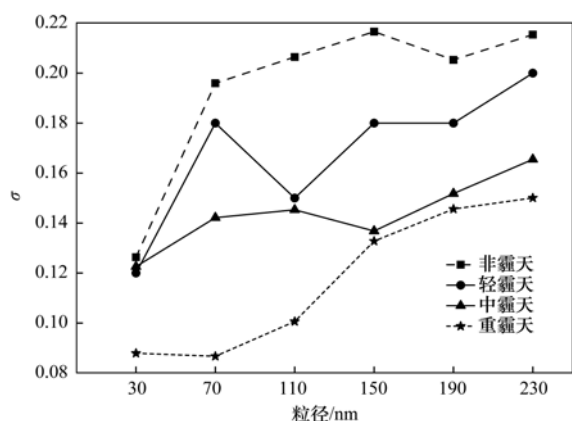


图 10 不同等级霾天气下各粒径粒子的 σ

Fig. 10 Size distribution of σ on haze days with different levels of haze

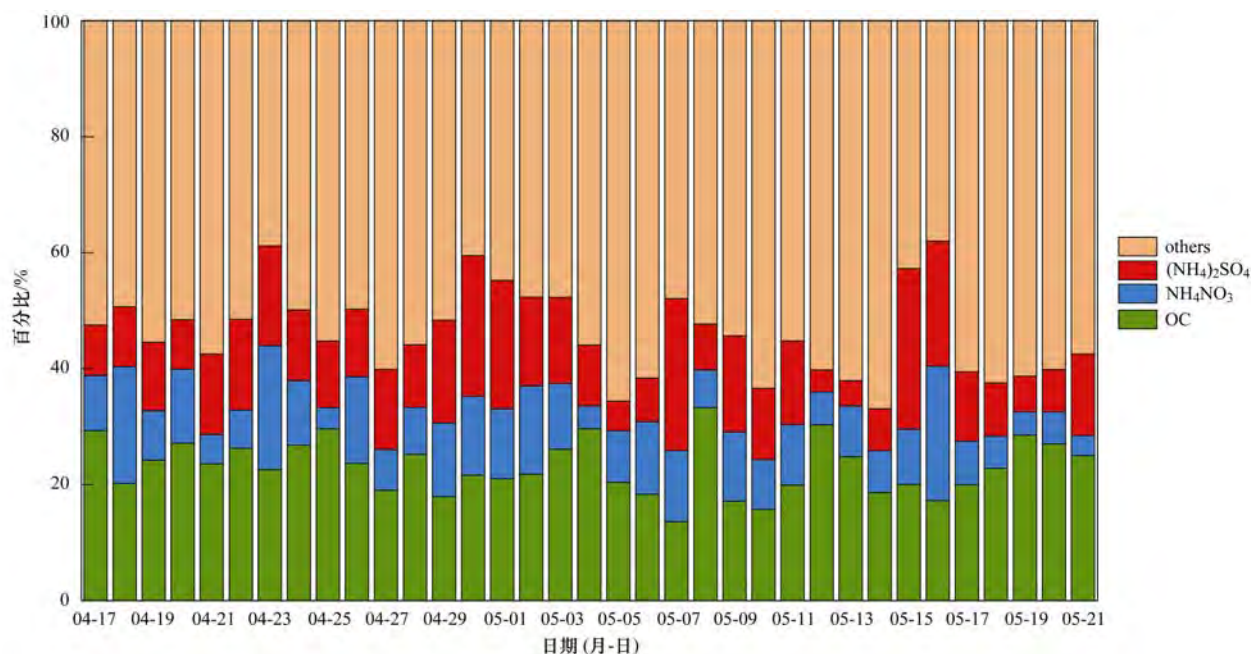


图 11 气溶胶化学组分质量百分含量随时间分布

Fig. 11 Temporal distribution of chemical component mass contents for aerosols

用了 κ 进行闭合分析, κ 与 GF 的换算公式详见公式 (4). 对于多组分气溶胶粒子, 在获得其不同粒径主要的化学成分后, 依据 Zdanovskii-Stokes-Robinson 假设和公式 (5) 可以计算出气溶胶粒子的总吸湿性参数 κ_{chem} . WSOC 通常占 OC 总质量的 20% ~ 60%^[21]. 本文其取中间值, 假设 WSOC 占 OC 总质量的 40%. 其余各种纯物质的 κ 详见表 1.

因为 H-TDMA 观测的粒子粒径仅限于 30 ~ 230 nm, 但是分级采样的化学数据最小的粒子粒径在 0 ~ 430 nm 范围内. 为了将由化学组分计算得到的吸湿性参数 κ_{chem} 和由 H-TDMA 仪器实际所得到的吸湿性参数 κ_{mean} 进行比较, 本研究用每天观测到的 30、70、150 和 230 nm 气溶胶吸湿性参数平均得到一个 κ_{mean} 和当日的 κ_{chem} 进行比较. 其中 κ_{mean} 在 4 月 24

2.4 影响气溶胶吸湿性的主要化学组分分析

气溶胶的吸湿性主要决定于气溶胶粒子的化学组分, 因此笔者又对气溶胶中主要水溶性离子进行配对组合, 获得其化学组分信息, 为后面通过闭合分析确定影响气溶胶吸湿性的主要化学成分奠定基础. 由图 11 可看出气溶胶化学组分随时间变化明显, 从而影响了 GF 随时间的日变化特征. 气溶胶化学组分中不可溶物质 OC 和 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 含量占比最多, NH_4NO_3 次之.

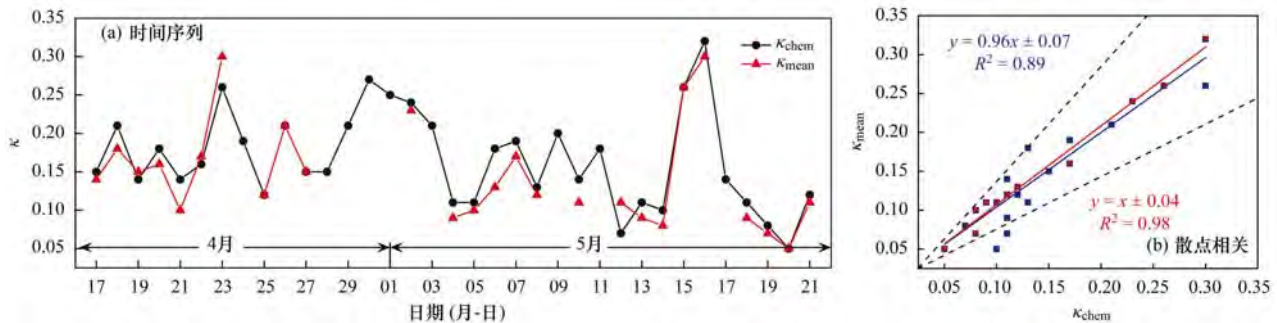
除了 GF 外, 还可以用吸湿性参数 κ 描述气溶胶的吸湿能力. GF 不仅受气溶胶化学性质的影响, 还会受环境相对湿度的影响, 而 κ 只由气溶胶的化学属性所决定, 所以相较于 GF, κ 能更好地反映出气溶胶化学组分对其吸湿性的影响. 因此本研究采

用 4 月 17 日 ~ 5 月 21 日的气溶胶化学组分数据, 共计 26 个测量值, κ_{chem} 为 4 月 17 日 ~ 5 月 21 日的计算值, 共计 35 个数值. 从图 12(a) 中可以看出, 这两种方法得到的吸湿性参数 κ 随时间的变化趋势和高低值的分布特征大致相同, 极大值和极小值分别出现于 5 月 16 日和 5 月 21 日. 但由 H-TDMA 观测所得的 κ_{mean} 较为稳定, 而经由化学组分数据计算所得的 κ_{chem} 变化幅度较大, 产生这一现象的原因在于受气溶胶化学组分的观测方法相对粗糙以及时间分辨率低等带来的测量误差影响, 化学数据计算所得的 κ_{chem} 存在的不确定性相对较大.

本文还对观测期间的吸湿性参数 κ 的预报效果进行了相关性分析, 如图 12(b) 中的散点相关 (蓝色拟合线). 从中可以看出 κ_{mean} 和 κ_{chem} 两者吻合度

较好,符合 $\kappa_{\text{mean}} = 0.96\kappa_{\text{chem}} \pm 0.07$ 的关系式,相关性系数 $R^2 = 0.89$, $P < 0.01$,说明二者的置信度大于99%.根据显著性检验方法,可认为 κ_{mean} 和 κ_{chem} 存在正相关性.因此利用化学组分预报气溶胶吸湿性的方法是可信的.为进一步说明霾日气溶胶吸湿

性的特征,又针对霾日 κ_{mean} 和 κ_{chem} 进行了相关性分析,如图12(b)中散点相关(红色拟合线),可以发现在霾日 κ_{mean} 和 κ_{chem} 的相关性进一步增强,相关性系数 $R^2 = 0.98$,说明霾天气下开展气溶胶吸湿性的观测研究具有重要意义.



黑色直线为1:1线,蓝色直线为观测期所有数据拟合线,红色直线为霾天数据拟合线,虚线为30%偏差线

图12 观测期间 κ_{chem} 和 κ_{mean} 的时间序列及散点相关

Fig. 12 Temporal variations and scatter plot of κ_{chem} and κ_{mean}

3 结论

(1)观测期间气溶胶 GF 的值在 1.12 ~ 1.64 之间变化.随着粒径的增加,GF 并无明显变化,但混合模态却更偏向于外混合.气溶胶粒子吸湿性在白天较强且偏向于内混合,而夜晚特征则与之相反.

(2)霾日的气溶胶吸湿性较弱,外混合程度较低,并且随着霾等级的增加气溶胶吸湿能力和外混合程度进一步减弱,而非霾日气溶胶粒子的吸湿性和外混合程度均较强.

(3)霾天气下环境的相对湿度对气溶胶化学组分及其吸湿性有较大影响,低湿背景下气溶胶的主要化学组分包含 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 以及 OC/EC.霾日 OC/EC 含量相较非霾日更为丰富.丰富的有机物是造成低湿背景下小尺度气溶胶吸湿性减弱的主要原因.

(4)观测期间气溶胶化学组分随时间变化明显,从而影响了 GF 随时间的日变化特征.气溶胶化学组分中不可溶物质 OC 和 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 含量占比最多, NH_4NO_3 次之.

(5) κ_{chem} 和 κ_{mean} 存在较好的一致性,且两者的相关性在霾天气下进一步增强,因此可以利用气溶胶主要化学组分来预报气溶胶吸湿性.

参考文献:

[1] Raikwar S C, Tapasw S. An improved linear depth model for single image fog removal [J]. Multimedia Tools and Applications, 2018, 77(15): 19719-19744.
[2] Cao Y Q, Zhang W, Wang W J, et al. Spatial-temporal characteristics of haze and vertical distribution of aerosols over the Yangtze River Delta of China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2018, 66: 12-19.

[3] 张小曳, 廖宏, 王芬娟. 对 IPCC 第五次评估报告气溶胶-云对气候变化影响与响应结论的解读 [J]. 气候变化研究进展, 2014, 10(1): 37-39.
Zhang X Y, Liao H, Wang F J. The effects of aerosols and clouds on climate change and their responses [J]. Progress in Inquiries of Mutation Climatis, 2014, 10(1): 37-39.
[4] Qi X F, Sun J Y, Zhang L, et al. Aerosol hygroscopicity during the haze red-alert period in december 2016 at a rural site of the North China Plain [J]. Journal of Meteorological Research, 2018, 32(1): 38-48.
[5] 吴兑, 廖碧婷, 陈慧忠, 等. 珠江三角洲地区的灰霾天气研究进展 [J]. 气候与环境研究, 2014, 19(2): 248-264.
Wu D, Liao B T, Chen H Z, et al. Advances in studies of haze weather over Pearl River Delta [J]. Climatic and Environmental Research, 2014, 19(2): 248-264.
[6] 江文华, 刘德, 陈勇航, 等. 1980 ~ 2012 年重庆地区霾日时空变化特征 [J]. 干旱气象, 2015, 33(4): 602-606.
Jiang W H, Liu D, Chen Y H, et al. Temporal and spatial variations of haze days in Chongqing from 1980 to 2012 [J]. Journal of Arid Meteorology, 2015, 33(4): 602-606.
[7] 宋宇, 唐孝炎, 方晨, 等. 北京市大气细粒子的来源分析 [J]. 环境科学, 2002, 23(6): 11-16.
Song Y, Tang X Y, Fang C, et al. Source apportionment on fine particles in Beijing [J]. Environmental Science, 2002, 23(6): 11-16.
[8] Pitchford M L, McMurry P H. Relationship between measured water vapor growth and chemistry of atmospheric aerosol for Grand Canyon, Arizona, in winter 1990 [J]. Atmospheric Environment, 1994, 28(5): 827-839.
[9] Tan H B, Yin Y, Gu X S, et al. An observational study of the hygroscopic properties of aerosols over the Pearl River Delta region [J]. Atmospheric Environment, 2013, 77: 817-826.
[10] 颜鹏, 潘小乐, 汤洁, 等. 北京市区大气气溶胶散射系数亲水增长的观测研究 [J]. 气象学报, 2008, 66(1): 111-119.
Yan P, Pan X L, Tang J, et al. An experimental study on the influence of relative humidity on the atmospheric aerosol scattering coefficient at an urban site in Beijing [J]. Acta Meteorologica Sinica, 2008, 66(1): 111-119.
[11] 吴奕霄, 银燕, 顾雪松, 等. 南京北郊大气气溶胶的吸湿性

- 观测研究[J]. 中国环境科学, 2014, **34**(8): 1938-1949.
- Wu Y X, Yin Y, Gu X F, *et al.* An observational study of the hygroscopic properties of aerosols in north suburb of Nanjing[J]. China Environmental Science, 2014, **34**(8): 1938-1949.
- [12] 张茹, 汤莉莉, 许汉冰, 等. 冬季南京城市大气气溶胶吸湿性观测研究[J]. 环境科学学报, 2018, **38**(1): 32-40.
- Zhang R, Tang L L, Xu H B, *et al.* Hygroscopic properties of urban aerosol in Nanjing during wintertime[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018, **38**(1): 32-40.
- [13] 徐彬, 张泽锋, 李艳伟, 等. 南京北郊春季气溶胶吸湿性分析[J]. 环境科学, 2015, **36**(6): 1911-1918.
- Xu B, Zhang Z F, Li Y W, *et al.* Hygroscopic properties of aerosol particles in north suburb of Nanjing in spring[J]. Environmental Science, 2015, **36**(6): 1911-1918.
- [14] 张程, 于兴娜, 安俊琳, 等. 南京北郊霾天气气溶胶化学组分粒径分布特征[J]. 中国环境科学, 2018, **38**(8): 2873-2881.
- Zhang C, Yu X N, An J L, *et al.* Distribution characteristics of chemical components in aerosol during haze days in north suburban Nanjing[J]. China Environmental Science, 2018, **38**(8): 2873-2881.
- [15] 宋秀瑜, 曹念文, 赵成, 等. 南京地区相对湿度对气溶胶含量的影响[J]. 中国环境科学, 2018, **38**(9): 3240-3246.
- Song X Y, Cao N W, Zhao C, *et al.* Effect of relative humidity on aerosol content in Nanjing[J]. China Environmental Science, 2018, **38**(9): 3240-3246.
- [16] Liu Q F, Jing B, Peng C, *et al.* Hygroscopicity of internally mixed multi-component aerosol particles of atmospheric relevance[J]. Atmospheric Environment, 2016, **125**: 69-77.
- [17] Gysel M, McFiggans G B, Coe H. Inversion of tandem differential mobility analyser (TDMA) measurements[J]. Journal of Aerosol Science, 2009, **40**(2): 134-151.
- [18] Petters M D, Kreidenweis S M. A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, **13**(2): 1081-1091.
- [19] Gysel M, Crosier J, Topping D O, *et al.* Closure study between chemical composition and hygroscopic growth of aerosol particles during TORCH2[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2007, **7**(24): 6131-6144.
- [20] 陈卉, 杨素英, 李艳伟, 等. 黄山夏季气溶胶吸湿性及与化学组分闭合[J]. 环境科学, 2016, **37**(6): 2008-2016.
- Chen H, Yang S Y, Li Y W, *et al.* Hygroscopic properties and closure of aerosol chemical composition in Mt. Huang in summer[J]. Environmental Science, 2016, **37**(6): 2008-2016.
- [21] Liu H J, Zhao C S, Nekat B, *et al.* 2014. Aerosol hygroscopicity derived from size-segregated chemical composition and its parameterization in the North China Plain[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014, **14**(5): 2525-2539.
- [22] QX/T 113-2010, 霾的观测和预报等级[S].
- [23] 庄智一. 上海地区霾的统计分析研究[D]. 上海: 华东师范大学, 2012. 1-60.
- [24] 汤莉莉, 祝愿, 牛生杰, 等. 南京北郊大气细粒子中黑碳气溶胶的观测研究[J]. 环境科学学报, 2011, **31**(4): 709-716.
- Tang L L, Zhu Y, Niu S J, *et al.* Observation of black carbon in fine particulate matter in the north suburb of Nanjing[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2011, **31**(4): 709-716.
- [25] Jiang R X, Hao B T, Li L L, *et al.* Comparison of aerosol hygroscopicity and mixing state between winter and summer seasons in Pearl River Delta region, China[J]. Atmospheric Research, 2016, **169**: 160-170.
- [26] 钱小东, 张启磊, 徐学哲, 等. 气溶胶吸湿和挥发特性测量的 VH-TDMA 装置研究[J]. 中国环境科学, 2017, **37**(4): 1269-1275.
- Qian X D, Zhang Q L, Xu X Z, *et al.* Development of a Volatility Hygroscopic Tandem Differential Mobility Analyzer (VH-TDMA) for the measurement of aerosol thermal and hygroscopic properties[J]. China Environmental Science, 2017, **37**(4): 1269-1275.
- [27] Liu P F, Zhao C S, Göbel T, *et al.* Hygroscopic properties of aerosol particles at high relative humidity and their diurnal variations in the North China Plain[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2011, **11**(7): 3479-3494.
- [28] 李琦, 银燕, 顾雪松, 等. 南京夏季气溶胶吸湿增长因子和云凝结核的观测研究[J]. 中国环境科学, 2015, **35**(2): 337-346.
- Li Q, Yin Y, Gu X S, *et al.* An observational study of aerosol hygroscopic growth factor and cloud condensation nuclei in Nanjing in summer[J]. China Environmental Science, 2015, **35**(2): 337-346.
- [29] 闫璐璐, 刘焕武, 黄学敏, 等. 利用 SPAMS 研究西安市重污染天气细颗粒物污染特征及来源[J]. 环境科学研究, 2018, **31**(11): 1841-1848.
- Yan L L, Liu H W, Huang X M, *et al.* Characteristics and source apportionment of fine particles in Xi'an Using a Single Particle Aerosol Mass Spectrometer (SPAMS) during heavy pollution[J]. Research of Environmental Sciences, 2018, **31**(11): 1841-1848.

CONTENTS

Concurrent Measurement of Wet and Bulk Deposition of Trace Metals in Urban Beijing	ZHANG Guo-zhong, PAN Yue-peng, TIAN Shi-li, <i>et al.</i> (2493)
Concentration and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} Collected in Urban and Suburban Areas of Beijing	XU Jing, LI Xing-ru, ZHANG Lan, <i>et al.</i> (2501)
Secondary Aerosol Formation in Urban Shanghai: Insights into the Roles of Photochemical Oxidation and Aqueous-Phase Reaction	GAO Jie, QIAO Li-ping, LOU Sheng-rong, <i>et al.</i> (2510)
Secondary Inorganic Pollution Characteristics During Heavy Pollution Episodes of 2017 in Tianjin	XU Hong, XIAO Zhi-mei, CHEN Kui, <i>et al.</i> (2519)
Characterization of PM ₁₀ and PM _{2.5} Source Profiles for Emissions from Nonmetal Mineral Products Manufacturing Processes	ZHAO Xue-yan, YU Gao-feng, WANG Xin-wu, <i>et al.</i> (2526)
Characteristics of Component Particle Size Distributions of Particulate Matter Emitted from a Waste Incineration Plant	YU Zhuo-jun, WU Jian-hui, ZHANG Yu-fen, <i>et al.</i> (2533)
Characteristics and Source Apportionment of Carbon Components in Road Dust PM _{2.5} and PM ₁₀ During Spring in Tianjin Derived by Using the Quadrat Sampling Method	MA Yan, JI Ya-qin, GUO Ji-liang, <i>et al.</i> (2540)
Urban Aerosol Hygroscopicity During Haze Weather	YANG Su-ying, TIAN Zhi-jie, ZHANG Tie-ning, <i>et al.</i> (2546)
Atmospheric Pollution Characteristics and Inhalation Exposure Risk of Nitrated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in PM _{2.5} at the Ningdong Energy and Chemical Industry Base, Northwest China	LIU Pan-liang, JU Yuan-li, MAO Xiao-xuan, <i>et al.</i> (2556)
Health Benefit Evaluation for PM ₁₀ and PM _{2.5} Pollution Control in Zhengzhou, China, 2014-2016	HAN Shi-jie, WANG Jia, YAN Qi-she, <i>et al.</i> (2565)
Spatial-temporal Distribution of Aerosol Optical Depth and Its Main Influence Types in China During 1990-2017	LIU Ying, LIN Ai-wen, QIN Wen-min, <i>et al.</i> (2572)
Research on the Pollution Characteristics and Causality of Haze-sand Air Pollution in Beijing in Spring	WANG Yao-ting, LI Qing-chun, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (2582)
Vessel Emission Inventories and Emission Characteristics for Inland Rivers in Jiangsu Province	XU Wen-wen, YIN Cheng-qi, XU Xue-ji, <i>et al.</i> (2595)
Atmospheric Nitrogen Dioxide, Nitric Acid, Nitrate Nitrogen Concentrations, and Wet and Dry Deposition Rates in a Double Rice Region in Subtropical China	OUYANG Xiu-qin, WANG Bo, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2607)
Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation and Moisture Sources in the Headwaters of the Yangtze River	WANG Shao-yong, WANG Qiao-li, WU Jin-kui, <i>et al.</i> (2615)
Historical Trends of Atmospheric Trace Metal Pollution in Northern Guizhou Province as Reconstructed from Alpine Lake Sediments	LIANG Meng-yao, LIU En-feng, ZHANG En-lou, <i>et al.</i> (2624)
Distribution Characteristics of Microplastics in Qingdao Coastal Beaches	LUO Ya-dan, LIN Qian-hui, JIA Fang-li, <i>et al.</i> (2631)
Pollution Characteristics of Microplastics in Migratory Bird Habitats Located Within Poyang Lake Wetlands	LIU Shu-li, JIAN Min-fei, ZHOU Long-yin, <i>et al.</i> (2639)
Use of the Nitrogen/Carbon Ratio (N/C) and Two End-Member Sources Mixing Model to Identify the Origins of Dissolved Organic Matter from Soils in the Water-Level Fluctuation Zones of the Three Gorges Reservoir	JIANG Tao, JOERI Kaal, LIANG Jian, <i>et al.</i> (2647)
Effects of Photosynthesis of Submerged Aquatic Plants on CDOM in a Karst Water System: A Case Study from Xueyu Cave, Chongqing, China	FAN Jia-xin, JIANG Yong-jun, HE Qiu-fang, <i>et al.</i> (2657)
Indicators of Groundwater Evolution Processes Based on Hydrochemistry and Environmental Isotopes: A Case Study of the Dongyuan Drinking Water Source Area in Ji'nan City	ZHANG Ya, SU Chun-li, MA Yan-hua, <i>et al.</i> (2667)
Water Quality Analysis and Health Risk Assessment for Groundwater at Xiangshui, Chongzuo	ZHOU Jin-mei, JIANG Zhong-cheng, XU Guang-li, <i>et al.</i> (2675)
Chemical Characteristics of Groundwater and Material Sources Analysis in Buckwheat Field, Yunnan Province	ZHANG Yong, GUO Chun-qing, ZHU Yan-guang, <i>et al.</i> (2686)
C and N Transport Flux and Associated Changes of Water Quality Parameters from a Multiscale Subtropical Watershed in the Poyang Lake Area	LU Yao, GAO Yang, JIA Jun-jie, <i>et al.</i> (2696)
Pollutant Transport Analysis and Source Apportionment of the Entire Non-point Source Pollution Process in Combined Sewer Systems	FANG Jin-xiu, XIE Wen-xia, ZHU Yu-xi, <i>et al.</i> (2705)
Nitrogen Removal Efficiencies from Road Runoff by Dry Grass Swales with a Shallow Substrate Layer	DUAN Jin-kai, LI Tian, ZHANG Jia-wei (2715)
Migration Characteristics of Manganese During Rainfall Events and Its Impacts on Water Quality in a Drinking Water Source Reservoir	DENG Li-fan, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2722)
Potential for Phosphorus Uptake by Bed Sediments and Its Response to Carbon Additions in the Shiwuli River, Chaohu Lake Basin	LI Ru-zhong, BAO Qin, ZHANG Rui-gang, <i>et al.</i> (2730)
Sources and Distribution of Phosphorus in Sediments of the Jinpen Reservoir	MAO Xue-jing, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2738)
Water Quality Characteristics and Distribution of Bacterial Communities During Thermal Stratification in the Miyun Reservoir	WANG Yu-bing, WANG Xiao-yan, PANG Shu-jiang, <i>et al.</i> (2745)
Relationship Between the Vertical Distribution of Nutrients and Bacterial Community Structures in Sediment Interstitial Waters of Stratified Reservoirs with Different Water Temperatures	WANG Shen, ZHANG Si-si, XU You, <i>et al.</i> (2753)
Accumulation Characteristics and Release Regularity of Nutrients in Sediments of a Surface-flow Constructed Wetland After Long-term Operation	ZHU Yi-meng, JIANG Cui-ling, ZHU Li-qin, <i>et al.</i> (2764)
Application of Goethite Modified Biochar for Arsenic Removal from Aqueous Solution	ZHU Si-hang, ZHAO Jing-jing, YIN Ying-jie, <i>et al.</i> (2773)
Effects and Mechanisms of Methyl Orange Removal from Aqueous Solutions by Modified Rice Shell Biochar	SHI Yue-yue, SHAN Riu, YUAN Hao-ran (2783)
Performance and Membrane Fouling Properties in an Anaerobic Membrane Bioreactor for Salty Wastewater	YAN Huan-xi, XU Zhen-yu, JIN Chun-ji, <i>et al.</i> (2793)
Pollution Characteristics and Enhanced Removal of Organic Phosphorus in Effluent from a Wastewater Treatment Plant	WANG Xiao-dong, WANG Zi-wen, CHEN Ming-fei, <i>et al.</i> (2800)
Effects of Alkalinity on Partial Nitrification in a Zeolite Sequencing Batch Reactor	WANG Rui-xin, CHEN Jing, WANG Xiao-jun, <i>et al.</i> (2807)
Effects of the Physical Structure of Activated Sludge on Respiration Processes	GUO Yao, LI Zhi-hua, YANG Cheng-jian, <i>et al.</i> (2813)
Performance of an Aerobic Granular Reactor Treating Biogas Slurry from Pig Farm	LIAO Jie, YE Jia-qi, ZENG Zhi-chao, <i>et al.</i> (2821)
Spatial-temporal Characteristics and Driving Factors of Greenhouse Gas Emissions from Rivers in a Rapidly Urbanizing Area	LIU Ting-ting, WANG Xiao-feng, YUAN Xing-zhong, <i>et al.</i> (2827)
Influences of Biochar on Pollutant Removal Efficiencies and Nitrous Oxide Emissions in a Subsurface Flow Constructed Wetland	DENG Chao-ren, LIANG Yin-kun, HUANG Lei, <i>et al.</i> (2840)
Effects of the Veterinary Antibiotic Sulfamethazine on N ₂ O Emissions and the Associated Microbiological Mechanism in a Rice Field	WU Jie, LI Zhi-lin, XU Jia-ying, <i>et al.</i> (2847)
Effects of Different Levels of Nitrogen Fertilization on Soil Respiration Rates and Soil Biochemical Properties in an Alfalfa Grassland	HU Wei, ZHANG Ya-hong, LI Peng, <i>et al.</i> (2858)
Spatial Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils from a Typical Urbanized Area	HE Bo, ZHAO Hui, WANG Tie-yu, <i>et al.</i> (2869)
Accumulation of Heavy Metals in Agricultural Soils and Crops from an Area with a High Geochemical Background of Cadmium, Southwestern China	LIU Yi-zhang, XIAO Tang-fu, XIONG Yan, <i>et al.</i> (2877)
Spatial Distribution Characteristics and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Chinese Wolfberry Land Based on GIS and the Receptor Model	BAI Yi-ru, ZHANG Xing, ZHAO Yun-peng, <i>et al.</i> (2885)
Spatial Distribution and Pollution Assessment of As at a Small Scale in Agricultural Soils of the Karst Region	WANG Hua, LIU Xiu-ming, LIU Fang, <i>et al.</i> (2895)
Soil Aggregate Stability and Its Stoichiometric Characteristics in <i>Robinia pseudoacacia</i> Forest within Different Vegetation Zones on the Loess Plateau, China	QU Qing, XU Hong-wei, WU Xuan, <i>et al.</i> (2904)
Straw Returning Plus Nitrogen Fertilizer Affects the Soil Microbial Community and Organic Carbon Mineralization in Karst Farmland	XU Xue-chi, SU Yi-rong, WANG Gui-hong, <i>et al.</i> (2912)
Effects of Biochar Application and Ageing on the Adsorption of Antibiotics in Purple Soil	YIN Wen-min, GUAN Zhuo, LIU Chen, <i>et al.</i> (2920)
Ammonia Oxidation in a Neutral Purple Soil Measured by the ¹³ C-DNA-SIP Method	LIU Tian-lin, WANG Zhi-hui, YAN Xiao-juan, <i>et al.</i> (2930)
Effects of Silver Nanoparticles and Silver Ions on Soil Nitrification Microorganisms and Ammonoxidation	WU Ling-li, ZHANG Xu, SHU Kun-hui, <i>et al.</i> (2939)
Insight into the Process of Mn-ANAMMOX in Soils of Agricultural Drainage Ditches	CHEN Shi, LI Zheng-kui, QIN Yun-bin, <i>et al.</i> (2948)
Effects of Different Concentrations of Tetracycline in Sludge on Ammonia Oxidizers During Vermicomposting	WU Ying, HUANG Kui, XIA Hui, <i>et al.</i> (2954)