

方知库  
Eco-Environmental  
Knowledge Web

# 环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

基于PMF和源示踪物比例法的大气羰基化合物来源解析：以南京市观测为例  
胡崑，王鸣，王红丽，景盛翱，陈文泰，卢兴东



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社

2021年1月

第42卷 第1期

Vol.42 No.1



目次

2019年国庆节前后北京气态氨和气溶胶铵盐浓度的同步观测 ..... 顾梦娜, 潘月鹏, 宋琳琳, 李萍, 田世丽, 武岳洋, 杨婷婷, 李浩洋, 石生伟, 吐莉尼沙, 吕雪梅, 孙倩, 方运霆 (1)

基于无人机探空和数值模拟天津一次重污染过程分析 ..... 杨旭, 蔡子颖, 韩素芹, 史静, 唐颖潇, 姜明, 邱晓滨 (9)

中原城市群典型城市秋冬季大气 PM<sub>2.5</sub> 污染特征及溯源 ..... 苗青青, 姜楠, 张瑞芹, 赵孝因, 齐静文 (19)

沈阳市冬季大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子污染特征及来源解析 ..... 王国祯, 任万辉, 于兴娜, 侯思宇, 张毓秀 (30)

保定地区 PM<sub>2.5</sub> 中重金属元素的污染特征及健康风险评价 ..... 雷文凯, 李杏茹, 张兰, 徐静, 赵文吉, 刘子锐 (38)

基于 PMF 和源示踪物比例法的大气羰基化合物来源解析: 以南京市观测为例 ..... 胡崑, 王鸣, 王红丽, 景盛翔, 陈文泰, 卢兴东 (45)

2019年天津市挥发性有机物污染特征及来源 ..... 高璟, 肖致美, 徐虹, 李立伟, 李鹏, 唐逸, 杨宁, 李源, 毕温凯, 陈魁 (55)

柳州市春季大气挥发性有机物污染特征及源解析 ..... 刘齐, 卢星林, 曾鹏, 于爽 (65)

天津市郊夏季的臭氧变化特征及其前体物 VOCs 的来源解析 ..... 罗瑞雪, 刘保双, 梁丹妮, 毕晓辉, 张裕芬, 冯银厂 (75)

2017年春夏期间南京地区臭氧污染输送影响及潜在源区 ..... 谢放尖, 陆晓波, 杨峰, 李文青, 李浩, 谢轶嵩, 王艳, 刘益和, 王庆九, 胡建林 (88)

2006~2019年珠三角地区臭氧污染趋势 ..... 赵伟, 高博, 卢清, 钟志强, 梁小明, 刘明, 马社霞, 孙家仁, 陈来国, 范绍佳 (97)

大型石化企业邻近区域大气沉降中多环芳烃赋存特征及源解析 ..... 李大雁, 齐晓宝, 吴健, 黄沈发, 王敏, 沙晨燕, 沈城 (106)

叶片大气颗粒物滞纳能力评估方法的定量对比 ..... 岳晨, 李广德, 席本野, 曹治国 (114)

东江流域敌敌畏的排放量估算及归趋模拟 ..... 张冰, 张芊芊, 应光国 (127)

松花江哈尔滨段及阿什河抗生素的分布规律与生态风险评估 ..... 杨尚乐, 王旭明, 王伟华, 胡雪莹, 高立伟, 孙兴滨 (136)

东北小兴凯湖沉积物 POPs 污染特征及生态风险评估 ..... 李慧, 李捷, 宋鹏, 程云轩, 焦立新, 杨亚铮 (147)

河南省地表水源中 PPCPs 分布及生态风险评估 ..... 周颖, 吴东海, 陆光华, 姚晶晶, 魏磊, 韩枫 (159)

无锡-常州地下水水中内分泌干扰物的赋存特征和健康风险评估 ..... 王淑婷, 饶竹, 郭峰, 刘成海, 战楠, 王娅南, 彭洁, 杨鸿波 (166)

清江流域地表水重金属季节性分布特征及健康风险评估 ..... 刘昭, 周宏, 曹文佳, 刘伟, 兰圣涛 (175)

会仙岩溶湿地丰平枯时期地下水金属元素污染与健康风险 ..... 李军, 赵一, 邹胜章, 蓝美宁, 樊连杰, 谢浩, 秦月, 朱丹滢 (184)

三峡库区城镇化影响下河流 DOM 光谱特征季节变化 ..... 陈昭宇, 李思悦 (195)

不同植物覆盖下黄河三角洲湿地土壤中微塑料的分布 ..... 岳俊杰, 赵爽, 程昊东, 段鑫越, 石洪华, 汪磊, 端正花 (204)

基于宏基因组学探讨东平湖水库的菌群结构、耐药基因谱及其公共健康风险 ..... 张红娜, 崔娜, 申红妙 (211)

分层型水库藻类季相演替的细菌种群驱动机制 ..... 闫苗苗, 张海涵, 黄廷林, 宗容容, 刘凯文, 苗雨甜, 杨尚业, 黄鑫, 王娜 (221)

丹江口库区浮游真菌组成与功能及其影响因素 ..... 郑保海, 王晓宇, 李英军, 陈彦, 李百炼, 李玉英, 陈兆进 (234)

太湖出流河道藻颗粒变化及其水质效应 ..... 郭宇龙, 许海, 陈旭清, 郑建中, 詹旭, 朱广伟, 朱梦圆 (242)

石盘丘小流域不同土地利用方式下土壤氮磷流失形态及通量 ..... 邓华, 高明, 龙翼, 黎嘉成, 王盛燕, 王子芳 (251)

前期干旱天数对生物滞留系统除氮性能的影响 ..... 陈焱, 李欣芮, 郑爽, 刘臻, 余雪花, 程启洪 (263)

浒苔生物炭对雨水径流中氨氮的吸附特性及吸附机制 ..... 陈友媛, 李培强, 李闲驰, 孙萍, 赵新月, 李洁, 李晋, 辛至然 (274)

填料对潮汐流人工湿地中 CANON 作用强化的影响 ..... 刘冰, 郑煜铭, 秦会安, 古励 (283)

FeMnNi-LDHs 对水中 As(III) 的吸附性能与机制 ..... 廖玉梅, 余杰, 魏世强, 蒋珍茂 (293)

硝酸钙添加和铅改性膨润土覆盖联用控制底泥中磷释放的效果及机制 ..... 张宏华, 林建伟, 詹艳慧, 俞阳, 张志斌 (305)

某市污水厂抗生素和抗生素抗性基因的分布特征 ..... 颜亚玮, 於驰晨, 李菲菲, 姚鹏城, 刘宏远 (315)

不同污泥在微波预处理-厌氧消化过程中抗性基因分布及菌群结构演替 ..... 李慧莉, 武彩云, 唐安平, 佟娟, 魏源送 (323)

天然富硒土地划定的富硒阈值 ..... 王惠艳, 曾道明, 郭志娟, 成晓梦, 彭敏, 孙跃 (333)

融合自然-人为因子改进回归克里格对土壤镉空间分布预测 ..... 高中原, 肖荣波, 王鹏, 邓一荣, 戴俊杰, 刘楚藩 (343)

南方典型水稻土镉(Cd)累积规律模拟 ..... 戴雅婷, 傅开道, 杨阳, 王美娥, 陈卫平 (353)

闽西南土壤-水稻系统重金属生物可给性及健康风险 ..... 林承奇, 蔡宇豪, 胡恭任, 于瑞莲, 郝春莉, 黄华斌 (359)

干湿交替灌溉制度下纳米修复材料对杂交水稻籽粒 Cd 累积及产量的影响 ..... 杨茹, 陈馨睿, 张颖, 崔俊义, 武立权, 马友华, 廖江, 何海兵 (368)

三元复合调理剂对土壤镉赋存形态和糙米镉累积的调控效应 ..... 蒋毅, 刘雅, 辜娇峰, 杨世童, 曾雄, 王轩宇, 周航, 廖柏寒 (378)

风化煤组配改良剂结合水分管理对水稻根际土壤与稻米甲基汞含量的影响 ..... 郑顺安, 吴泽赢, 杜兆林, 倪润祥, 姚启星 (386)

不同施肥措施对水稻土壤微生物抗性的影响 ..... 郑开凯, 马志远, 孙波, 梁玉婷 (394)

氮添加影响下新疆天山雪岭云杉林土壤酶活性及其与环境因子的相关性 ..... 张涵, 贡璐, 刘旭, 邵康, 李昕竹, 李蕊希 (403)

黄土陵区撂荒农田土壤酶活性及酶化学计量变化特征 ..... 钟泽坤, 杨改河, 任成杰, 韩新辉 (411)

生物炭对土壤酶活性和细菌群落的影响及其作用机制 ..... 冯慧琳, 徐辰生, 何欢辉, 曾强, 陈楠, 李小龙, 任天宝, 姬小明, 刘国顺 (422)

植被恢复对刺萼龙葵根际土壤细菌群落结构与功能的影响 ..... 张瑞海, 宋振, 付卫东, 鄂玲玲, 高金会, 王然, 王忠辉, 张国良 (433)

黄壤稻田土壤微生物量碳氮及水稻品质对生物炭配施氮肥的响应 ..... 史登林, 王小利, 刘安凯, 侯再芬, 梁国太 (443)

等碳量添加秸秆和生物炭对土壤呼吸及微生物量碳氮的影响 ..... 何甜甜, 王静, 符云鹏, 符新妍, 刘天, 李亚坤, 李建华 (450)

秸秆与氮肥配比对农田土壤内外源碳释放的影响 ..... 孙昭安, 张轩, 胡正江, 王开永, 陈清, 孟凡乔 (459)

生物炭与化肥混合对氨挥发和磷固定的影响 ..... 杨文娜, 邓正昕, 李娇, 郑杰炳, 王子芳, 高明 (467)

氮肥减投条件下膜材料使用对稻田氨挥发排放的影响 ..... 俞映惊, 王梦凡, 杨根, 何世颖, 段婧婧, 杨林章, 薛利红 (477)

微塑料对斑马鱼胚胎孵化影响及其在幼鱼肠道中的积累 ..... 赵佳, 饶本强, 郭秀梅, 高进勇 (485)

无人机热红外支持下的城市微尺度热环境模拟 ..... 阳少奇, 冯莉, 田慧慧, 刘艳霞 (492)

基于人居尺度的中国城市热岛强度时空变化及其驱动因子解析 ..... 孙艳伟, 王润, 郭青海, 高超 (501)

《环境科学》征订启事(8) 《环境科学》征稿简则(220) 信息(233, 352, 421)

# 2019年国庆节前后北京气态氨和气溶胶铵盐浓度的同步观测

顾梦娜<sup>1,2</sup>, 潘月鹏<sup>1,2\*</sup>, 宋琳琳<sup>2,3</sup>, 李萍<sup>1,2</sup>, 田世丽<sup>1\*</sup>, 武岳洋<sup>4</sup>, 杨婷婷<sup>4</sup>, 李浩洋<sup>4</sup>, 石生伟<sup>4</sup>, 吐莉尼沙<sup>5</sup>, 吕雪梅<sup>1</sup>, 孙倩<sup>1</sup>, 方运霆<sup>3</sup>

(1. 中国科学院大气物理研究所, 大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 中国科学院沈阳应用生态研究所, 辽宁省稳定同位素技术重点实验室, 沈阳 110016; 4. 北京农学院生物与资源环境学院, 北京 102206; 5. 新疆维吾尔自治区气象台, 乌鲁木齐 830002)

**摘要:** 我国自2013年实施《大气污染防治行动计划》以来, 大气细颗粒物( $PM_{2.5}$ )特别是硫酸盐浓度迅速下降, 但硝酸盐浓度降幅较小, 大气中过量的氨气( $NH_3$ )是维持硝酸盐居高不下的主要因素。迄今, 我国生态环境部门尚未将 $NH_3$ 纳入常规观测, 以往有关 $NH_3$ 和气溶胶铵盐( $NH_4^+$ )的研究多是分别进行的, 缺少同步观测。由于 $NH_3$ 和 $NH_4^+$ 在大气中可互相转化, 只测量其中一种相态很难全面了解它们的动态变化。本研究基于酸涂覆的蜂窝型扩散管和膜采样串联系统, 同步测量了2019年国庆节前后北京城区大气 $NH_3$ 和 $NH_4^+$ 浓度, 时间分辨率为2 h( $PM_{2.5} > 35 \mu g \cdot m^{-3}$ ) ~ 5 h( $PM_{2.5} < 35 \mu g \cdot m^{-3}$ )。结果表明, 采样期间 $NH_3$ 和 $NH_4^+$ 平均浓度分别为 $(4.1 \pm 2.9) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(1.7 \pm 1.4) \mu g \cdot m^{-3}$ , 且二者均与 $PM_{2.5}$ 、CO和 $NO_2$ 呈现相似的时间变化规律。 $NH_3$ 浓度在早晨(05:30~08:30)和夜间(21:30~05:30)较高, 这种双峰日变化特征在污染天( $PM_{2.5} > 75 \mu g \cdot m^{-3}$ )最为明显。 $NH_3$ 浓度在污染天17:30~21:30存在明显的低谷, 这主要与有利的扩散条件有关(平均风速 $6 m \cdot s^{-1}$ )。 $NH_4^+$ 浓度的日变化特征与 $NH_3$ 差异较大,  $NH_4^+$ 浓度在非污染天( $PM_{2.5} < 75 \mu g \cdot m^{-3}$ )17:30~21:30出现明显峰值, 期间 $NH_3$ 浓度较低, 而 $NO_2$ 浓度较高。在非污染天,  $NH_3$ 浓度是 $NH_4^+$ 的2.8倍; 而在污染天, 由于气粒转化加速, 大气 $NH_3$ 浓度低于 $NH_4^+$  ( $NH_3/NH_4^+ = 0.8$ )。国庆节前大气 $NH_3$ 、CO、 $NO_2$ 、 $SO_2$ 和 $PM_{2.5}$ 浓度超过国庆后的幅度分别为54.2%、40.4%、33.3%、0.0%和49.4%。国庆节前虽然实施了减排行动, 但极端不利的静稳天气导致大气环境容量下降, 掩盖了污染物减排的效果, 导致大部分污染物浓度不降反升。

**关键词:** 氨气; 气溶胶铵盐; 日变化; 相态分布; 国庆节阅兵

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)01-0001-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.202005192

## Concurrent Collection of Ammonia Gas and Aerosol Ammonium in Urban Beijing During National Celebration Days Utilizing an Acid-Coated Honeycomb Denuder in Combination with a Filter System

GU Meng-na<sup>1,2</sup>, PAN Yue-peng<sup>1,2\*</sup>, SONG Lin-lin<sup>2,3</sup>, LI Ping<sup>1,2</sup>, TIAN Shi-li<sup>1\*</sup>, WU Yue-yang<sup>4</sup>, YANG Ting-ting<sup>4</sup>, LI Hao-yang<sup>4</sup>, SHI Sheng-wei<sup>4</sup>, Tulinisha<sup>5</sup>, LÜ Xue-mei<sup>1</sup>, SUN Qian<sup>1</sup>, FANG Yun-ting<sup>3</sup>

(1. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. Key Laboratory of Stable Isotope Techniques and Applications, Liaoning Province, Institute of Applied Ecology, Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110016, China; 4. College of Bioscience and Resources Environment, Beijing University of Agriculture, Beijing 102206, China; 5. Xinjiang Meteorological Observatory, Urumqi 830002, China)

**Abstract:** Since 2013, the Chinese government implemented the Air Pollution Prevention and Control Action Plan. As a result, the atmospheric concentrations of sulfate reduced significantly, whereas the nitrate concentrations remain relatively high due to the excess of ammonia ( $NH_3$ ). To date, there is no official observation network monitoring  $NH_3$  concentrations in China. Previous studies have focused on  $NH_3$  or ammonium ( $NH_4^+$ ) separately. These limitations hinder a complete understanding of their dynamic changes due to the rapid gas-to-particle conversion. In this study, the concentrations of  $NH_3$  and  $NH_4^+$  were measured concurrently in urban Beijing during autumn 2019 utilizing an acid-coated denuder-filter combination with a time resolution from 2 h ( $PM_{2.5} > 35 \mu g \cdot m^{-3}$ ) to 5 h ( $PM_{2.5} < 35 \mu g \cdot m^{-3}$ ). The mean concentrations of  $NH_3$  and  $NH_4^+$  during the study were  $(4.1 \pm 2.9) \mu g \cdot m^{-3}$  and  $(1.7 \pm 1.4) \mu g \cdot m^{-3}$ , respectively. The temporal patterns of  $NH_3$  or  $NH_4^+$  coincided with that of  $PM_{2.5}$ , CO, and  $NO_2$  throughout the sampling

收稿日期: 2020-05-19; 修订日期: 2020-06-28

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0210100, 2017YFC0212703); 国家自然科学基金项目(42077204, 41807311); 北京高等学校高水平人才交叉培养计划项目(PXM2020\_014207\_000009)

作者简介: 顾梦娜(1994~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为大气气同位素源解析, E-mail: gumengna17@mails.ucas.ac.cn

\* 通信作者, E-mail: panyuepeng@mail.iap.ac.cn; tianshili@mail.iap.ac.cn

period. The diurnal distributions of  $\text{NH}_3$  were bimodal, both on polluted ( $\text{PM}_{2.5} > 75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) and non-polluted ( $\text{PM}_{2.5} < 75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) days, peaking at 21:30-05:30 and 05:30-08:30, respectively. The  $\text{NH}_3$  concentrations on polluted days were relatively lower during 17:30-21:30, which may be related to higher wind speeds. In contrast to  $\text{NH}_3$ ,  $\text{NH}_4^+$  had an obvious peak during 17:30-21:30 due to the formation of ammonium nitrate. The meteorological conditions favor the gas-to-particle conversion on polluted days, resulting in a lower  $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$  ratio of 0.8. However, this value may reach 2.8 on non-polluted days. The concentrations of  $\text{NH}_3$ , CO,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{SO}_2$ , and  $\text{PM}_{2.5}$  in the emission control period showed a significant increase greater than or comparable to those in the non-control period by 54.2%, 40.4%, 33.3%, 0%, and 49.4%, respectively. This result shows that the stagnant conditions offset the benefit of emission control actions implemented during and before the National Celebration Day.

**Key words:** ammonia; ammonium; diurnal variations; gas to particle conversion; National Celebration Day Parade

氨气( $\text{NH}_3$ )是大气中最主要的碱性气体,可与酸性气体( $\text{H}_2\text{SO}_4$ 、 $\text{HNO}_3$ 和 $\text{HCl}$ 等)反应生成铵盐气溶胶( $\text{NH}_4^+$ ),是霾污染期间二次粒子的主要成分<sup>[1]</sup>. 2013年以来,随着《大气污染防治行动计划》的实施,我国东部地区大气硫酸盐浓度明显下降,但硝酸盐浓度居高不下,大气中过量 $\text{NH}_3$ 对此起着非常重要的作用. 2008~2016年,卫星观测到欧洲、北美和中国主要农业区大气 $\text{NH}_3$ 柱浓度呈现增长趋势<sup>[2]</sup>, $\text{NH}_3$ 减排议题备受关注. 我国 $\text{NH}_3$ 排放量较高<sup>[3]</sup>,导致大气处于富氨环境,特别是华北平原地区<sup>[4]</sup>, $\text{NH}_3$ 年平均浓度达 $13.4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,是全球 $\text{NH}_3$ 热点区之一<sup>[5]</sup>. 大气中 $\text{NH}_3$ 与 $\text{NH}_4^+$ 最终可以干湿沉降的方式被去除(氮沉降)<sup>[6]</sup>,但这种方式只能将 $\text{NH}_3$ 和 $\text{NH}_4^+$ 从大气转移到地表生态系统,而不能将它们彻底消除. 更重要的是,过量的氮沉降还会造成土壤酸化、水体富营养化和生物多样性降低等危害<sup>[7]</sup>. 随着社会经济的快速发展,我国大气氮沉降1980~2010年增幅达60%<sup>[8]</sup>,且主要的形态是还原性氮( $\text{NH}_x$ )<sup>[9]</sup>. 因此,揭示大气中 $\text{NH}_3$ 和 $\text{NH}_4^+$ 的动态变化对于理解大气污染形成过程,缓解过量氮沉降,进而保护生态环境都具有重要科学意义.

对于大气 $\text{NH}_x$ 研究,以往主要集中在 $\text{NH}_4^+$ 的测量, $\text{NH}_3$ 的观测资料有限. 而且,以往的 $\text{NH}_3$ 和 $\text{NH}_4^+$ 测量大多是分别进行的,缺乏它们的同步观测研究. 由于大气 $\text{NH}_3$ 和 $\text{NH}_4^+$ 之间存在相互转化<sup>[10]</sup>,只测量其中一种相态很难全面了解 $\text{NH}_3$ 与 $\text{NH}_4^+$ 的动态变化. 多级滤膜采样系统是一种常用的同步采样方法,它先采集颗粒物 $\text{NH}_4^+$ ,再采集 $\text{NH}_3$ <sup>[11]</sup>. 这种采样方式在收集 $\text{NH}_4^+$ 的时候可能会吸附一部分 $\text{NH}_3$ ,造成 $\text{NH}_4^+$ 采样的正偏差;采集到的 $\text{NH}_4^+$ 也可能发生分解,造成 $\text{NH}_4^+$ 采样的负偏差<sup>[12]</sup>;这2种偏差都会影响 $\text{NH}_3$ 测量的准确性,进而影响对相态分布的认识. 另一种方法是基于扩散管-膜采样串联系统<sup>[13]</sup>. 在该采样系统中, $\text{NH}_3$ 首先被涂有酸涂层的扩散管吸附,扩散系数较低的 $\text{NH}_4^+$ 会随气流进入下游,被酸浸渍的滤膜捕获. 该采样系

统可以实现气粒分离,适用于研究 $\text{NH}_x$ 的相态分布,主要包括圆柱形扩散管<sup>[14]</sup>、环形扩散管<sup>[15]</sup>和蜂窝型扩散管<sup>[16]</sup>等. 其中,蜂窝型扩散管内表面积大、吸收容量高,因而可大流量采样,缩短了采样时间,提高了大气 $\text{NH}_3$ 与 $\text{NH}_4^+$ 采样的时间分辨率.

本研究选取北京为大气污染代表城市,利用蜂窝型扩散管-膜采样系统在2019年国庆节前后开展了大气 $\text{NH}_3$ 与 $\text{NH}_4^+$ 的同步采样和化学分析. 本研究旨在评估国庆节减排前后北京城区大气 $\text{NH}_3$ 与 $\text{NH}_4^+$ 的浓度水平、相态分布和日变化特征. 本研究结果有助于深入理解二次污染物的转化过程和形成机制,以期为大气污染防治的精准施策提供部分科学依据.

## 1 材料与方法

### 1.1 观测站点

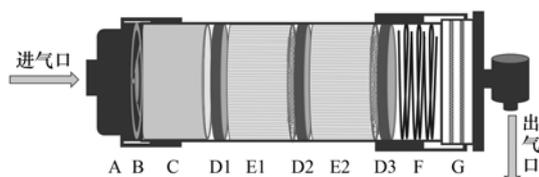
观测站设在中国科学院大气物理研究所铁塔分部院内( $39^\circ 58' \text{N}$ ,  $116^\circ 22' \text{E}$ ),地处北京市北三环和北四环之间,东西两侧为元大都公园(其中,东200 m为南北走向的G6高速),南北两侧为居民小区(其中,北100 m为东西走向的北土城西路). 观测仪器架设于院内中国生态系统研究网络大气分中心(SCAS-CERN)办公楼楼顶(距地面8 m).

### 1.2 观测仪器

蜂窝型扩散管-滤膜采样系统(Thermo Scientific™ ChemComb 3500)由哈佛公共卫生学院研发,可实现气体和颗粒物的相态分离和同步采集. 采样系统主要包括聚四氟乙烯(PTFE)涂层喷嘴、 $\text{PM}_{2.5}$ 撞击器、玻璃过渡段、玻璃垫片、蜂窝扩散管、弹簧和滤膜组件共7部分(图1). 其中, $\text{PM}_{2.5}$ 撞击器中间的圆形凹陷均匀涂覆真空润滑油,可有效吸附直径大于 $2.5 \mu\text{m}$ 的颗粒物. 喷嘴和撞击器均涂有PTFE涂层,可有效减少 $\text{NH}_3$ 在内表面的吸附. 每个扩散管( $38 \text{ mm} \times 47 \text{ mm}$ )包含212个六角形通道,该蜂窝型设计将气体与扩散管的接触面积增加到了 $310 \text{ cm}^2$ ,从而实现了在小时尺度上收集 $\text{NH}_3$ <sup>[16]</sup>.

### 1.3 采样与分析方法

采样前, $\text{NH}_3$ 收集蜂窝扩散管(E1和E2)用10



A. PTFE 涂层喷嘴; B.  $PM_{2.5}$  撞击器; C. 玻璃过渡段;  
D. 玻璃垫片; E. 蜂窝扩散管; F. 弹簧; G. 滤膜组

图 1 蜂窝扩散管-滤膜采样系统

Fig. 1 Sampling system of honeycomb denuder

mL 含有 2% 柠檬酸 + 1% 甘油的甲醇溶液涂覆, 在烘箱干燥 ( $55^{\circ}\text{C}$ , 1 h) 后安装到图 1 所示的系统进行采样. 采集  $NH_4^+$  纤维素膜 (G;  $8\ \mu\text{m}$ , 47 mm, Whatman) 用 0.5 mL 5% 柠檬酸溶液涂覆, 烘箱干燥后密封, 冷藏保存备用.

采样时, 气流通过喷嘴 (A) 进入采样系统. 在  $10\ \text{L}\cdot\text{min}^{-1}$  的工作流速下, 大于  $2.5\ \mu\text{m}$  的颗粒物被  $PM_{2.5}$  撞击器 (B) 凹形盘片上涂覆的润滑油截留, 而小于  $2.5\ \mu\text{m}$  的颗粒物随气流进入采样器内部. 气流首先经过玻璃过渡段 (C) 形成层流,  $NH_3$  在经过蜂窝扩散管 (E1 和 E2) 时被柠檬酸涂层吸附. 剩余的气流进入滤膜组 (G), 细颗粒物  $NH_4^+$  被采集到酸性纤维素膜上面, 完成气粒分离采样.

采样后, 立即密封采样系统进出口, 带回实验室进行浸提处理. 吸收  $NH_3$  的蜂窝扩散管用 30 mL 高纯水浸提, 吸收颗粒物  $NH_4^+$  的滤膜用 15 mL 高纯水超声浸提 45 min. 扩散管和滤膜浸提液中  $NH_4^+$  浓度采用离子色谱仪 (ICS-90, 美国戴安公司) 进行测试. 根据浸提液离子浓度、采样体积等实验参数计算  $NH_3$  和  $NH_4^+$  的大气浓度, 公式为:

$$c = c_j \times V_j / V \quad (1)$$

式中,  $c$  为大气浓度 ( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ),  $c_j$  为浸提液离子浓度 ( $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ),  $V_j$  为离子浸提液体积 (mL),  $V$  表示一段时间内采集到的空气体积 ( $\text{m}^3$ ),  $NH_3$  和  $NH_4^+$  的转换系数为 0.944.

#### 1.4 采样时间

外场观测于 2019 年 9 月 25 日开始, 至 2019 年 10 月 21 日结束. 其中, 9 月 25 日 ~ 10 月 16 日期间每天采集 5 套样品, 采样时间分割点分别为 05:30、08:30、12:30、17:30 和 21:30. 10 月 16 ~ 21 日期间平均每日采集 1 套样品, 采样时长为 18 ~ 30 h. 2019 年 9 月 25 日 ~ 2019 年 10 月 10 日采样期间纤维素膜缺失, 无  $NH_4^+$  观测样品, 其它时间均为  $NH_3$  和  $NH_4^+$  同步采样. 扩散管均为当天制备完成, 至使用前的最长保存时间为 20 h. 采样器制备后 0、5 和 20 h 这 3 个时间点分别测定空白值, 得到的  $NH_4^+$  离子浓度均低于检出限, 确保扩散管保存期间无污染.

#### 1.5 数据处理

本次观测共获得 112 个  $NH_3$  样品, 29 个  $NH_4^+$  样品. 其中, 有 52 个  $NH_3$  样品和 2 个  $NH_4^+$  样品离子浓度未检出. 未检出的样品 80% 以上出现在  $PM_{2.5} < 35\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  时, 这是因为清洁天浓度较低, 在有限时长 (3 ~ 5 h) 内采集的样品量达不到仪器分析检出限. 因此, 观测期间满足测试要求的有效样本包括:  $PM_{2.5} < 35\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  时, 采样时长累积到 5 h 以上的样品; 或者  $PM_{2.5} > 35\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  时, 采样时长累积到 2 h 以上的样品. 为统计观测期间数据的整体变化规律, 本文将未检出的样品浓度均替换为最低检出限的一半 ( $0.07\ \text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ ), 然后根据公式 (1) 计算样品大气浓度.

本文数据处理和作图使用开源软件 R 语言 (4.0.0).

#### 1.6 辅助资料

气象观测数据 (温度、湿度、风速和风向) 采用中国气象数据网北京市海淀区同期小时数据 (<http://data.cma.cn/>). 环境大气污染物数据 ( $PM_{2.5}$ 、CO、 $NO_2$  和  $SO_2$ ) 来自于北京市环境保护监测中心奥运村站同期小时浓度 (<http://www.bjmemc.com.cn/>). 奥运村与本站点观测资料具有较好的一致性<sup>[17]</sup>.

## 2 结果与讨论

### 2.1 大气氨和铵盐气溶胶浓度水平和时间变化

图 2 显示了 2019 年 9 月 25 日 ~ 10 月 21 日污染物浓度及气象要素随时间的变化. 如图 2 (c) 所示, 本次采样期间  $NH_3$  浓度变化范围为  $1.7 \sim 14.8\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 平均  $(4.1 \pm 2.9)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ;  $NH_4^+$  浓度变化范围为  $0.3 \sim 4.9\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 平均  $(1.7 \pm 1.4)\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . 采样期间,  $NH_3$  与  $PM_{2.5}$ 、CO 以及  $NO_2$  均呈现相似的时间变化规律, 且呈显著相关 ( $P < 0.05$ ), 但与  $SO_2$  不相关 ( $P > 0.05$ ); 而  $NH_4^+$  与  $PM_{2.5}$ 、CO、 $NO_2$  和  $SO_2$  均呈显著相关 ( $P < 0.01$ ). 大气  $NH_3$  和  $NH_4^+$  与  $PM_{2.5}$ 、CO 和  $NO_2$  显著的相关性说明它们可能具有相似的来源或者经历了相同的大气过程.

为分析  $NH_3$  浓度变化规律, 将观测时间分为 3 个时段 (图 2). 第 1 时段 (9 月 25 日 ~ 10 月 5 日) 大气  $NH_3$  平均浓度为  $5.8\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , 明显高于第 2 时段  $2.9\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (10 月 5 日 ~ 10 月 14 日) 和第 3 时段  $3.3\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (10 月 14 日 ~ 10 月 21 日). 这 3 个时段  $NH_3$  浓度的变化可能与温度有关<sup>[18]</sup>, 第 1 时段平均气温为  $20.6^{\circ}\text{C}$ , 10 月 5 日开始气温迅速下降, 导致

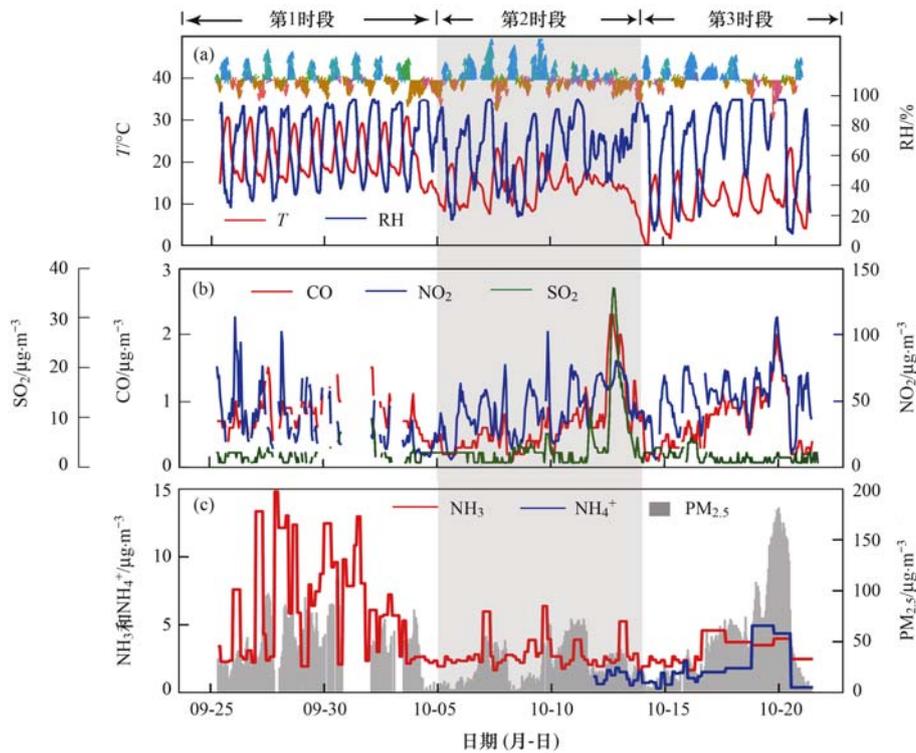


图2 污染物浓度及气象要素时间变化

Fig. 2 Time series of pollutant concentration and meteorological parameters

第2和3时段平均气温只有 $12.9^{\circ}\text{C}$ .除温度以外,风向也是影响 $\text{NH}_3$ 浓度的重要因素.例如在10月16日~10月20日期间,大气 $\text{NH}_3$ 出现浓度峰值,此时主导风向以偏南风为主;当盛行风向在10月20日8:00转为偏北风后,污染物浓度迅速降低.风向转变引起的 $\text{NH}_3$ 浓度变化与源区排放强度有关.北京南部的华北平原工农业发达,是 $\text{NH}_3$ 浓度的热点地区;而北京西北部的蒙古高原,空气相对清洁,大气 $\text{NH}_3$ 浓度较低<sup>[5]</sup>.

为进一步了解 $\text{NH}_3$ 与 $\text{NH}_4^+$ 浓度水平及变化特征,将采样日期分为非污染( $\text{PM}_{2.5} < 75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ )与

污染天( $\text{PM}_{2.5} > 75 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).由表1可知,本研究期间非污染天和污染天大气 $\text{NH}_3$ 平均浓度分别为 $(3.5 \pm 2.3) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(4.9 \pm 3.1) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , $\text{NH}_4^+$ 平均浓度分别为 $(1.3 \pm 0.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(4.6 \pm 0.3) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ .与北京以往观测结果相比,本研究期间 $\text{NH}_3$ 浓度明显偏低,而 $\text{NH}_4^+$ 浓度接近于北京2015和2016年测量结果,但低于北京2013年和2008年测量结果.本研究期间相对较低的 $\text{NH}_3$ 与 $\text{NH}_4^+$ 浓度水平反映了我国近年来实施的大气污染防治行动计划的成效,也与国庆期间临时加强的减排措施有关.

表1 北京大气 $\text{NH}_3$ 和 $\text{NH}_4^+$ 浓度对比(平均值 $\pm$ 标准差)/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ Table 1 Summary of  $\text{NH}_3$  and  $\text{NH}_4^+$  concentrations observed in Beijing (mean  $\pm$  SD)/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 

| 观测时间         | 天气类型 | $\text{NH}_3$   | $\text{NH}_4^+$ | $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$ | 文献   |
|--------------|------|-----------------|-----------------|-----------------------------|------|
| 2019年10~11月  | 非污染天 | $3.5 \pm 2.3$   | $1.3 \pm 0.9$   | $2.8 \pm 1.5$               | 本研究  |
| 2019年10~11月  | 污染天  | $4.9 \pm 3.1$   | $4.6 \pm 0.3$   | $0.8 \pm 0.1$               | 本研究  |
| 2016年5~6月    | 非污染天 | $8.7 \pm 3.0$   | $2.0 \pm 1.4$   | 4.46                        | [14] |
| 2016年5~6月    | 污染天  | $15.6 \pm 10.7$ | $3.4 \pm 1.0$   | 4.55                        | [14] |
| 2015年8~9月    | 非污染天 | $20.2 \pm 1.2$  | $1.15 \pm 0.26$ | 17.6                        | [19] |
| 2015年8~9月    | 非污染天 | —               | 1.7             | —                           | [20] |
| 2013年春季      | 非污染天 | 6.3             | 3.7             | 2.1~4.5                     | [21] |
| 2013年春季      | 污染天  | 14.1            | 24.1            | 0.4~0.9                     | [21] |
| 2008~2010年秋季 | 季节平均 | $12.6 \pm 6.5$  | —               | —                           | [22] |
| 2008年秋季      | 季节平均 | 12.0            | 8.9             | 1.3                         | [23] |

1)“—”表示此处无数值

## 2.2 大气氨和铵盐气溶胶浓度的日内变化

图3统计了污染天和非污染天大气 $\text{NH}_3$ 浓度

的日变化特征.可以看出,非污染天与污染天 $\text{NH}_3$ 浓度的差异较大,但都在早晨和晚上呈现浓度高峰,

说明这种日变化特征具有一定的普遍性. 其中, 21:30~05:30 出现的  $\text{NH}_3$  浓度夜间高值可能与本地源排放的  $\text{NH}_3$  在近地层的累积有关, 而 05:30~08:30 的早高峰可能受到移动源排放或露水蒸发等因素影响<sup>[1,24]</sup>. 有关  $\text{NH}_3$  浓度的早高峰现象已有较多报道, 但对于其形成机制和来源尚无定论. 值得注意的是, 污染天  $\text{NH}_3$  浓度日内变化幅度比非污染天剧烈得多, 特别是在 05:30~08:30 和 21:30~05:30 的浓度远高于其它时间, 同时在 17:30~21:30 存在一个明显  $\text{NH}_3$  浓度低谷. 除了排放源, 气象条件也可能影响  $\text{NH}_3$  浓度的日变化. 例如, 非污染天期间不同时段的风速波动较小, 平均风速为  $(1.9 \pm 0.3) \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , 因此  $\text{NH}_3$  浓度的日变化幅度较小. 而在污染天, 风速日内变化较大: 在 05:30~08:30 和 21:30~05:30 风速接近  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , 静稳的天气条件导致  $\text{NH}_3$  迅速积累而产生浓度高峰; 与之相反, 17:30~21:30 期间风速高达  $6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , 有利的大气扩散条件导致了  $\text{NH}_3$  浓度的低谷.

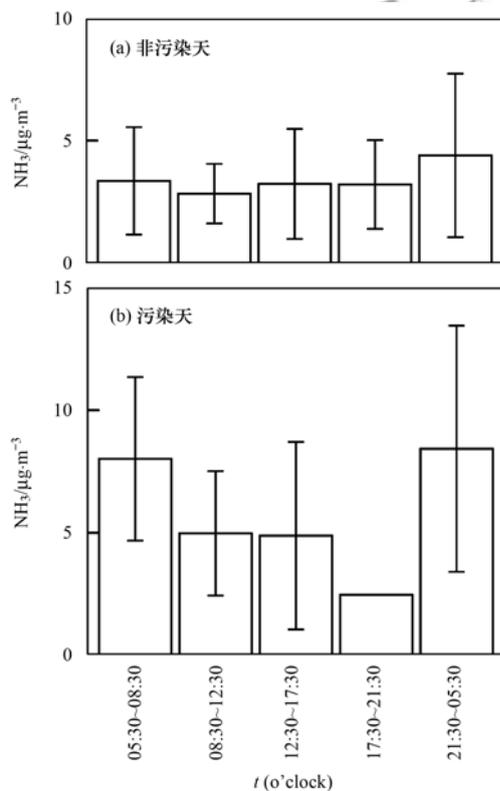


图3 非污染天 ( $n=94$ ) 和污染天 ( $n=15$ )  $\text{NH}_3$  浓度日变化

Fig. 3 Diurnal variations of  $\text{NH}_3$  concentration during pollution ( $n=94$ ) and non-pollution ( $n=15$ ) days

由于污染天未采集  $\text{NH}_4^+$  的日变化样品, 图 4 (a) 只显示了非污染天  $\text{NH}_4^+$  浓度的日变化信息. 可以看出, 非污染天  $\text{NH}_4^+$  平均浓度变化范围为  $0.9 \sim 1.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . 与  $\text{NH}_3$  浓度的日变化特征不同,  $\text{NH}_4^+$  浓度整体上呈现日间 (08:30~21:30) 高于夜间

(21:30~08:30). 值得注意的是,  $\text{NH}_4^+$  浓度在 17:30~21:30 存在明显高值, 而对应时段大气  $\text{NH}_3$  的浓度较低 [图 4 (b)]. 较高的  $\text{NO}_2$  浓度可能会促进  $\text{NH}_3$  的气粒转化<sup>[10]</sup>, 导致  $\text{NH}_3$  的低谷和  $\text{NH}_4^+$  的峰值出现在同一时段.

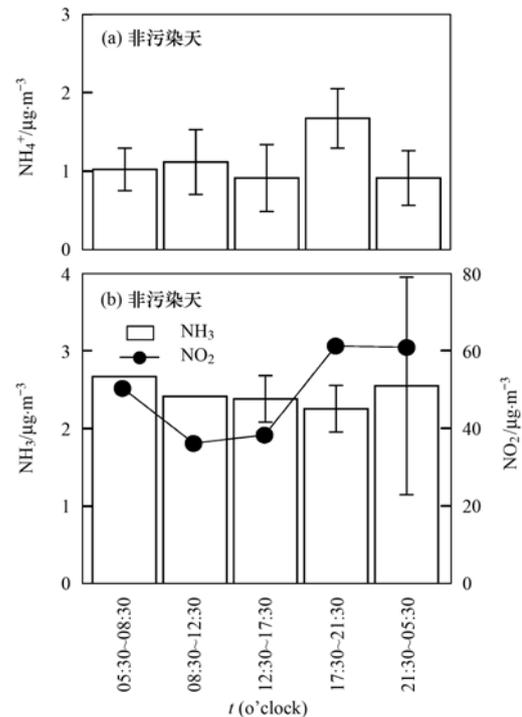


图4 非污染天  $\text{NH}_4^+$  浓度及对应  $\text{NH}_3$  浓度的日变化 ( $n=29$ )

Fig. 4 Diurnal variations of  $\text{NH}_4^+$  and  $\text{NH}_3$  concentrations during non-pollution days ( $n=29$ )

为探究不同污染条件下气粒转化对  $\text{NH}_3$  和  $\text{NH}_4^+$  浓度的影响程度, 图 5 统计了  $\text{PM}_{2.5}$  浓度发生改变时  $\text{NH}_3$  和  $\text{NH}_4^+$  的相对变化. 其中, 非污染天  $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$  平均为  $2.8 \pm 1.5$ , 即  $\text{NH}_x$  相态分布主要以  $\text{NH}_3$  的形式存在; 但随着污染加剧, 气态前体物

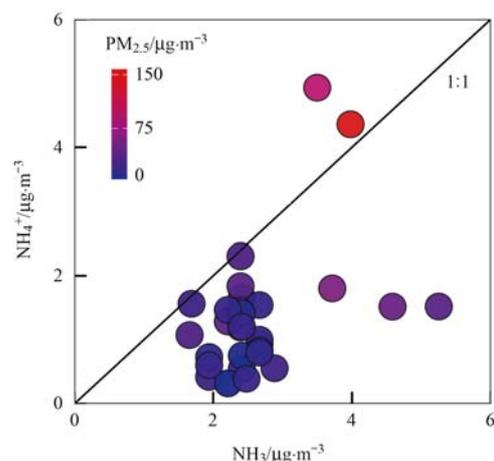


图5 不同污染情况下  $\text{NH}_3$  和  $\text{NH}_4^+$  的浓度分布

Fig. 5 Variations of  $\text{NH}_3$  and  $\text{NH}_4^+$  concentrations under different pollution conditions

$\text{NH}_3$  向颗粒态  $\text{NH}_4^+$  转化加速,使得  $\text{NH}_4^+$  浓度大幅度增加,  $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$  比值降低( $0.8 \pm 0.1$ ). 这一变化趋势与以往北京春季研究结果类似<sup>[19]</sup>,但与夏季气体  $\text{NH}_3$  始终是主要存在形态的测量结果不同<sup>[12]</sup>. 这可能是本研究期间发生的重污染过程均呈现出低温( $16.3^\circ\text{C}$ )、高湿( $81.8\%$ )和弱风( $0.7 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ )的典型静稳天气条件,有利于  $\text{NH}_3$  向颗粒物  $\text{NH}_4^+$  转化<sup>[1,10]</sup>.

### 2.3 国庆阅兵时段大气污染物减排的影响

为评估国庆阅兵期间的减排措施对污染物浓度的影响,以阅兵当天为时间节点,将国庆前1周作为污染管控期(9月25日~10月1日),国庆后1周作为无管控期(10月2~8日),分别计算了  $\text{NH}_3$ 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和  $\text{CO}$  等5种污染物浓度的平均值[图6(a)].可以看出,管控期间  $\text{NH}_3$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{NO}_2$ 和  $\text{PM}_{2.5}$ 浓度( $7.1$ 、 $0.8$ 、 $43.7$ 和  $49.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ )均高于无管控期( $3.3$ 、 $0.5$ 、 $29.2$ 和  $25.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ),增幅分别为  $54.2\%$ 、 $40.4\%$ 、 $33.3\%$ 和  $49.4\%$ ;而管控期间与管控后  $\text{SO}_2$ 浓度均为  $2.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ,无明显变化.这一结果与以往重大活动期间空气质量变化特征完全不同.比如,2014年APEC会议期间  $\text{NH}_3$ 浓度降幅  $20\% \sim 43\%$ <sup>[25]</sup>;2015年阅兵期间六环内  $\text{NH}_4^+$ 浓度降幅  $71\%$ <sup>[19]</sup>,  $\text{NH}_3$ 浓度降幅  $13\%$ <sup>[19]</sup>.这一显著差异与气象因素密切相关,比如2015年阅兵期间北

京的主导风向为北风<sup>[19]</sup>,而本次采样期间持续的偏南风有利于污染物的传输与积聚(图2).另外,相比于无管控期[图6(b)],管控期间风速明显降低( $0.8 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ),弱风、高温( $22.0^\circ\text{C}$ )和高湿( $69.3\%$ )的静稳气象条件导致大气环境容量下降,本地源排放的污染物迅速累积,浓度急剧增加.在这种极端不利的气象条件下,管控前后  $\text{SO}_2$ 浓度却无明显变化,这间接反映出  $\text{SO}_2$ 减排力度比其它污染物更大.

污染源排放和气象条件变化是影响近地面大气污染物浓度的主要因素<sup>[26]</sup>,但两者的相对贡献很难直接用浓度数据进行评价,特别是遇到极端不利的气象条件时,短期的减排效果可能无法在浓度变化上得到体现.2008~2016年,华北地区  $\text{SO}_2$ 柱浓度降幅达到  $70\%$ <sup>[2]</sup>,这与大气污染防治行动计划的成功实施密不可分.数值模式评估发现,本地减排、周边减排和气象条件变化对北京2013~2017年  $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的影响分别为  $65.4\%$ 、 $22.5\%$ 和  $12.1\%$ ,而冬季气象条件所占的贡献高达  $30\%$ <sup>[27]</sup>.因此,长期的减排措施有利于改善空气质量,但在气象条件不利时减排的压力会增加.针对2015年阅兵蓝期间的一项模式评估结果认为,有利的气象条件在  $\text{PM}_{2.5}$ 浓度下降中的贡献占  $73\%$ ,而减排措施的贡献仅占  $27\%$ <sup>[28]</sup>.这一案例进一步说明,在气象条件整体有利的情况下,减排措施可以进一步改善空气质量.相反,在气象条件极端不利的时候,减排的效果可能会被掩盖,这也是2019年国庆阅兵管控期间污染物浓度不降反升的主要原因.

### 3 结论

(1)蜂窝型扩散管和膜采样串联系统分别收集大气  $\text{NH}_3$ 和颗粒物  $\text{NH}_4^+$ 的空白较低,适用于同步测量  $\text{NH}_3$ 和  $\text{NH}_4^+$ 的快速变化:当  $\text{PM}_{2.5} < 35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时,采样时长需要累积到5h以上;当  $\text{PM}_{2.5} > 35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时,可实现2h分辨率的  $\text{NH}_3$ 和  $\text{NH}_4^+$ 同步采样.

(2)本次采样期间,  $\text{NH}_3$ 和  $\text{NH}_4^+$ 浓度变化范围分别为  $1.7 \sim 14.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和  $0.3 \sim 4.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ;非污染天与污染天  $\text{NH}_3$ 浓度均呈现出为夜间高于日间的特征;非污染天  $\text{NH}_4^+$ 浓度在  $17:30 \sim 21:30$ 的峰值可能与硝酸铵形成有关;非污染天  $\text{NH}_3$ 浓度高于  $\text{NH}_4^+$ ,而污染天则相反.

(3)北京2019年国庆节大气污染物管控期间,  $\text{NH}_3$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{NO}_2$ 、 $\text{SO}_2$ 和  $\text{PM}_{2.5}$ 浓度高于无管控期的幅度分别为  $54.2\%$ 、 $40.4\%$ 、 $33.3\%$ 、 $0.0\%$ 和  $49.4\%$ .管控期间弱风( $0.8 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ )、高温( $22.0^\circ\text{C}$ )

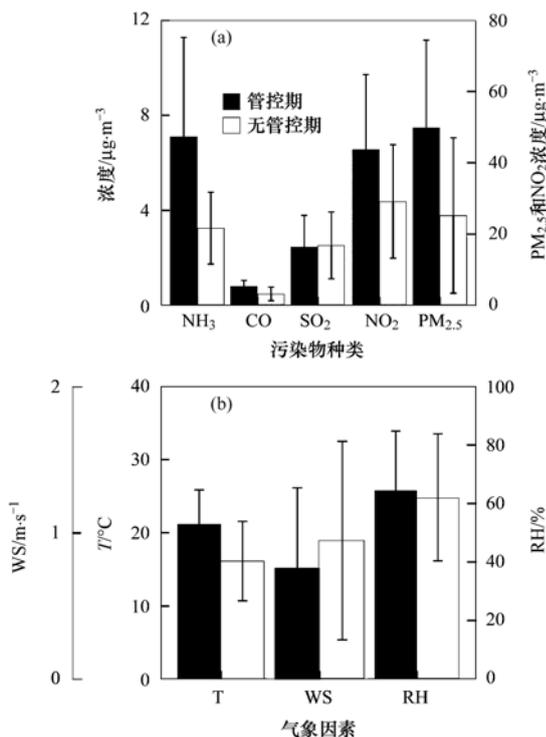


图6 管控期间与无管控期污染物浓度和气象要素对比  
Fig. 6 Comparison of pollutant concentration and meteorological parameters between the control period and non-control period

和高湿(69.3%)的静稳天气导致大气环境容量下降,不利的天气条件掩盖了减排的效果。

致谢:感谢中国科学院大气物理研究所何月欣、刘进、倪雪和刘博文等在观测实验期间提供帮助。

#### 参考文献:

- [1] Ianniello A, Spataro F, Esposito G, *et al.* Chemical characteristics of inorganic ammonium salts in PM<sub>2.5</sub> in the atmosphere of Beijing (China) [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(21): 10803-10822.
- [2] Liu M X, Huang X, Song Y, *et al.* Rapid SO<sub>2</sub> emission reductions significantly increase tropospheric ammonia concentrations over the North China Plain [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(24): 17933-17943.
- [3] Wang H Y, Zhang D, Zhang Y T, *et al.* Ammonia emissions from paddy fields are underestimated in China [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **235**: 482-488.
- [4] Zhou F, Ciaia P, Hayashi K, *et al.* Re-estimating NH<sub>3</sub> emissions from Chinese cropland by a new nonlinear model [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50**(2): 564-572.
- [5] Pan Y P, Tian S L, Zhao Y H, *et al.* Identifying ammonia hotspots in China using a national observation network [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **52**(7): 3926-3934.
- [6] 许稳, 金鑫, 罗少辉, 等. 西宁近郊大气氨干湿沉降研究 [J]. *环境科学*, 2017, **38**(4): 1279-1288.
- Xu W, Jin X, Luo S H, *et al.* Dry and bulk nitrogen deposition in suburbs of Xining City [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(4): 1279-1288.
- [7] Liu M X, Huang X, Song Y, *et al.* Ammonia emission control in China would mitigate haze pollution and nitrogen deposition, but worsen acid rain [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2019, **116**(16): 7760-7765.
- [8] Liu X J, Zhang Y, Han W X, *et al.* Enhanced nitrogen deposition over China [J]. *Nature*, 2013, **494**(7438): 459-462.
- [9] Pan Y P, Wang Y S, Tang G Q, *et al.* Wet and dry deposition of atmospheric nitrogen at ten sites in Northern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(14): 6515-6535.
- [10] 邵生成, 常运华, 曹芳, 等. 南京城市大气氨-铵的高频演化及其气粒转化机制 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(10): 4355-4363.
- Shao S C, Chang Y H, Cao F, *et al.* High-frequency evolution of urban atmospheric ammonia and ammonium and its gas-to-particle conversion mechanism in Nanjing city [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(10): 4355-4363.
- [11] Savard M M, Cole A, Smirnov A, *et al.*  $\delta^{15}\text{N}$  values of atmospheric N species simultaneously collected using sector-based samplers distant from sources-Isotopic inheritance and fractionation [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **162**: 11-22.
- [12] Pathak R K, Wu W S, Wang T. Summertime PM<sub>2.5</sub> ionic species in four major cities of China: nitrate formation in an ammonia-deficient atmosphere [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(5): 1711-1722.
- [13] Yu X Y, Lee T, Ayres B, *et al.* Loss of fine particle ammonium from denuded nylon filters [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(25): 4797-807.
- [14] 田世丽, 刘学军, 潘月鹏, 等. 应用扩散管测量霾污染期间大气氮硫化物浓度的方法 [J]. *环境科学*, 2017, **38**(9): 3605-3609.
- Tian S L, Liu X J, Pan Y P, *et al.* Observations of reactive nitrogen and sulfur compounds during haze episodes using a denuder-based system [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(9): 3605-3609.
- [15] Allegrini I, De Santis F, Di Palo V, *et al.* Annular denuder method for sampling reactive gases and aerosols in the atmosphere [J]. *Science of the Total Environment*, 1987, **67**(1): 1-16.
- [16] Walters W W, Hastings M G. Collection of ammonia for high time-resolved nitrogen isotopic characterization utilizing an acid-coated honeycomb denuder [J]. *Analytical Chemistry*, 2018, **90**(13): 8051-8057.
- [17] Pan Y P, Wang Y S, Zhang J K, *et al.* Redefining the importance of nitrate during haze pollution to help optimize an emission control strategy [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **141**: 197-202.
- [18] Langford A O, Fehsenfeld F C, Zachariassen J, *et al.* Gaseous ammonia fluxes and background concentrations in terrestrial ecosystems of the United States [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1992, **6**(4): 459-483.
- [19] Xu W, Song W, Zhang Y Y, *et al.* Air quality improvement in a megacity: implications from 2015 Beijing Parade Blue pollution control actions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(1): 31-46.
- [20] Wu L B, Ren H, Wang P, *et al.* Aerosol ammonium in the urban boundary layer in Beijing: insights from nitrogen isotope ratios and simulations in summer 2015 [J]. *Environmental Science & Technology Letters*, 2019, **6**(7): 389-395.
- [21] 韦莲芳, 段菁春, 谭吉华, 等. 北京春季大气中氨的气粒相转化及颗粒态铵采样偏差研究 [J]. *中国科学: 地球科学*, 2015, **45**(2): 216-226.
- Wei L F, Duan J C, Tan J H, *et al.* Gas-to-particle conversion of atmospheric ammonia and sampling artifacts of ammonium in spring of Beijing [J]. *Science China Earth Sciences*, 2015, **58**(3): 345-355.
- [22] Meng Z Y, Lin W L, Jiang X M, *et al.* Characteristics of atmospheric ammonia over Beijing, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(12): 6139-6151.
- [23] 邓利群, 李红, 柴发合, 等. 北京东北部城区大气细粒子与相关气体污染特征研究 [J]. *中国环境科学*, 2011, **31**(7): 1064-1070.
- Li L Q, Li H, Chai H F, *et al.* The pollution characteristics of the atmospheric fine particles and related gaseous pollutants in the northeastern urban area of Beijing [J]. *China Environmental Science*, 2011, **31**(7): 1064-1070.
- [24] 程刚, 段俊, 李金香, 等. 北京市交通环境大气氨污染水平分析 [J]. *大气与环境光学学报*, 2018, **13**(3): 193-207.
- Cheng G, Duan J, Li J X, *et al.* Analysis of atmospheric ammonia pollution level in Beijing traffic environment [J]. *Journal of Atmospheric and Environmental Optics*, 2018, **13**(3): 193-207.
- [25] Chang Y H, Liu X J, Deng C R, *et al.* Source apportionment of atmospheric ammonia before, during, and after the 2014 APEC summit in Beijing using stable nitrogen isotope signatures [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(18): 11635-11647.
- [26] Liu Z R, Hu B, Wang L L, *et al.* Seasonal and diurnal variation in particulate matter (PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>) at an urban site of Beijing: analyses from a 9-year study [J]. *Environmental Science*

- and Pollution Research, 2015, **22**(1): 627-642.
- [27] Cheng J, Su J P, Cui T, *et al.* Dominant role of emission reduction in PM<sub>2.5</sub> air quality improvement in Beijing during 2013- 2017: a model-based decomposition analysis [ J ]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, **19**(9): 6125-6146.
- [28] 康志明, 桂海林, 王继康, 等. 2015年北京“阅兵蓝”特征及成因探讨[J]. 中国环境科学, 2016, **36**(11): 3227-3236.
- Kang J M, Gui H L, Wang J K, *et al.* Characteristics and cause of the “parade blue” in Beijing 2015 [ J ]. China Environmental Science, 2016, **36**(11): 3227-3236.

## 欢迎订阅 2021 年《环境科学》

《环境科学》创刊于 1976 年,由中国科学院主管,中国科学院生态环境研究中心主办,是我国环境科学学科中最早创刊的学术性期刊。

《环境科学》自创刊以来,始终坚持“防治污染,改善生态,促进发展,造福人民”的宗旨,报道我国环境科学领域内具有创新性高水平,有重要意义的基础研究和应用研究成果,以及反映控制污染,清洁生产和生态环境建设等可持续发展的战略思想、理论和实用技术等。

《环境科学》在国内外公开发行,并在国内外科技界有较大影响,被国内外一些重要检索系统收录,如工程索引 Ei Compendex;医学索引 MEDLINE; Scopus; 化学文摘 CA;俄罗斯文摘杂志 AJ;美国生物学文摘预评 BP;美国医学索引 IM;日本科学技术情报中心数据库 JICST;英国动物学记录 ZR;剑桥科学文摘(CSA): Environmental Sciences;剑桥科学文摘(CSA): Pollution Abstracts;剑桥科学文摘(CAS): Life Sciences Abstracts 等;国内的检索系统有中国科技论文统计与引文数据库(CSTPCD);中文科技期刊数据库(维普);中国期刊全文数据库(CNKI);数字化期刊全文数据库(万方);中国科学引文数据库(CSCD);中国生物学文摘等。

全国各地邮局均可订阅,如有漏订的读者可直接与编辑部联系,办理补订手续。

国内统一连续出版物号:CN 11-1895/X

国际标准连续出版物号:ISSN 0250-3301

国外发行代号:M 205

国内邮发代号:2-821

编辑部地址:北京市海淀区双清路 18 号(2871 信箱) 邮编:100085

电话:010-62941102;传真:010-62849343;E-mail:hjcx@rcees.ac.cn;网址:www.hjcx.ac.cn

## CONTENTS

|  |   |
|--|---|
| Concurrent Collection of Ammonia Gas and Aerosol Ammonium in Urban Beijing During National Celebration Days Utilizing an Acid-Coated Honeycomb Denuder in Combination with a Filter System ..... | GU Meng-na, PAN Yue-peng, SONG Lin-lin, <i>et al.</i> ( 1 )         |
| Heavy Pollution Episode in Tianjin Based on UAV Meteorological Sounding and Numerical Model .....  | YANG Xu, CAI Zi-ying, HAN Su-qin, <i>et al.</i> ( 9 )               |
| Characteristics and Sources of PM <sub>2.5</sub> Pollution in Typical Cities of the Central Plains Urban Agglomeration in Autumn and Winter .....  | MIAO Qing-qing, JIANG Nan, ZHANG Rui-qin, <i>et al.</i> ( 19 )      |
| Characteristics and Sources of Water-soluble Ion Pollution in PM <sub>2.5</sub> in Winter in Shenyang .....  | WANG Guo-zhen, REN Wan-hui, YU Xing-na, <i>et al.</i> ( 30 )        |
| Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in PM <sub>2.5</sub> Collected in Baoding .....   | LEI Wen-kai, LI Xing-ru, ZHANG Lan, <i>et al.</i> ( 38 )            |
| Source Apportionment of Ambient Carbonyl Compounds Based on a PMF and Source Tracer Ratio Method: A Case Based on Observations in Nanjing .....  | HU Kun, WANG Ming, WANG Hong-li, <i>et al.</i> ( 45 )               |
| Characterization and Source Apportionment of Atmospheric VOCs in Tianjin in 2019 .....   | GAO Jing-yun, XIAO Zhi-mei, XU Hong, <i>et al.</i> ( 55 )           |
| Characteristics and Source Apportionment of Ambient VOCs in Spring in Liuzhou .....  | LIU Qi, LU Xing-lin, ZENG Peng, <i>et al.</i> ( 65 )                |
| Characteristics of Ozone and Source Apportionment of the Precursor VOCs in Tianjin Suburbs in Summer .....   | LUO Rui-xue, LIU Bao-shuang, LIANG Dan-ni, <i>et al.</i> ( 75 )     |
| Transport Influence and Potential Sources of Ozone Pollution for Nanjing During Spring and Summer in 2017 .....  | XIE Fang-jian, LU Xiao-bo, YANG Feng, <i>et al.</i> ( 88 )          |
| Ozone Pollution Trend in the Pearl River Delta Region During 2006-2019 .....   | ZHAO Wei, GAO Bo, LU Qing, <i>et al.</i> ( 97 )                     |
| Distribution Characteristics and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmospheric Deposition in Areas Adjacent to a Large Petrochemical Enterprise .....                  | LI Da-yan, QI Xiao-bao, WU Jian, <i>et al.</i> ( 106 )              |
| Quantitative Comparison of Methods to Assess the Airborne Particulate Matter Retention Capacity of Leaves .....  | YUE Chen, LI Guang-de, XI Ben-ye, <i>et al.</i> ( 114 )             |
| Emission Estimation and Fate Simulation of Dichlorvos in the Dongjiang River Watershed .....   | ZHANG Bing, ZHANG Qian-qian, YING Guang-guo ( 127 )                 |
| Distribution and Ecological Risk Assessment of Antibiotics in the Songhua River Basin of the Harbin Section and Ashe River .....   | YANG Shang-le, WANG Xu-ming, WANG Wei-hua, <i>et al.</i> ( 136 )    |
| Characteristics and Ecological Risk Assessment of POPs Pollution in Sediments of Xiaoxingkai Lake in the Northeast China .....   | LI Hui, LI Jie, SONG Peng, <i>et al.</i> ( 147 )                    |
| Distribution and Ecological Risk Assessment of PPCPs in Drinking Water Sources of Henan Province .....   | ZHOU Ying, WU Dong-hai, LU Guang-hua, <i>et al.</i> ( 159 )         |
| Occurrence Characteristics and Health Risk Assessment of Endocrine Disrupting Chemicals in Groundwater in Wuxi-Changzhou .....   | WANG Shu-ting, RAO Zhu, GUO Feng, <i>et al.</i> ( 166 )             |
| Seasonal Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Surface Water of Qingjiang River .....   | LIU Zhao, ZHOU Hong, CAO Wen-jia, <i>et al.</i> ( 175 )             |
| Metal Pollutions and Human Health Risks in Groundwater from Wet, Normal, and Dry Periods in the Huixian Karst Wetland, China .....   | LI Jun, ZHAO Yi, ZOU Sheng-zhang, <i>et al.</i> ( 184 )             |
| Seasonal Variation of DOM Spectral Characteristics of Rivers with Different Urbanization Levels in the Three Gorges Reservoir Area .....   | CHEN Zhao-yu, LI Si-yue ( 195 )                                     |
| Distribution of Micro-plastics in the Soil Covered by Different Vegetation in Yellow River Delta Wetland .....   | YUE Jun-jie, ZHAO Shuang, CHENG Hao-dong, <i>et al.</i> ( 204 )     |
| Metagenomic Analysis Provides Insights into Bacterial Communities, Antibiotic Resistomes, and Public Health Risks in the Dongping Lake Reservoir .....   | ZHANG Hong-na, CUI Na, SHEN Hong-miao ( 211 )                       |
| Mechanism of Algal Community Dynamics Driven by the Seasonal Water Bacterial Community in a Stratified Drinking Water Reservoir .....  | YAN Miao-miao, ZHANG Hai-han, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> ( 221 ) |
| Community Structure, Function, and Influencing Factors of Planktonic Fungi in the Danjiangkou Reservoir .....  | ZHENG Bao-hai, WANG Xiao-yu, LI Ying-jun, <i>et al.</i> ( 234 )     |
| Changes in Algal Particles and Their Water Quality Effects in the Outflow River of Taihu Lake .....  | GUO Yu-long, XU Hai, CHEN Xu-qing, <i>et al.</i> ( 242 )            |
| Characteristics of Soil Nitrogen and Phosphorus Losses Under Different Land-use Schemes in the Shipanqiu Watershed .....   | DENG Hua, GAO Ming, LONG Yi, <i>et al.</i> ( 251 )                  |
| Influence of Antecedent Dry Days on Nitrogen Removal in Bioretention Systems .....   | CHEN Yao, LI Xin-rui, ZHENG Shuang, <i>et al.</i> ( 263 )           |
| Effect of <i>Enteromorpha prolifera</i> Biochar on the Adsorption Characteristics and Adsorption Mechanisms of Ammonia Nitrogen in Rainfall Runoff .....   | CHEN You-yuan, LI Pei-qiang, LI Xian-chi, <i>et al.</i> ( 274 )     |
| Effect of Filter Medium on the Enhancement of Complete Autotrophic Nitrogen Removal over Nitrite Process in a Tidal Flow Constructed Wetland .....   | LIU Bing, ZHENG Yu-ming, QIN Hui-an, <i>et al.</i> ( 283 )          |
| Adsorption Effect and Mechanism of Aqueous Arsenic on FeMnNi-LDHs .....  | LIAO Yu-mei, YU Jie, WEI Shi-qiang, <i>et al.</i> ( 293 )           |
| Combined Use of Zirconium-Modified Bentonite Capping and Calcium Nitrate Addition to Control the Release of Phosphorus from Sediments .....  | ZHANG Hong-hua, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> ( 305 )   |
| Distribution Characteristics of Antibiotics and Antibiotic Resistance Genes in Wastewater Treatment Plants .....   | XIE Ya-wei, YU Chi-sheng, LI Fei-fei, <i>et al.</i> ( 315 )         |
| Occurrence of Antibiotic Resistance Genes and Bacterial Community Structure of Different Sludge Samples During Microwave Pretreatment-Anaerobic Digestion .....                                  | LI Hui-li, WU Cai-yun, TANG An-ping, <i>et al.</i> ( 323 )          |
| Selenium Threshold for the Delimitation of Natural Selenium-Enriched Land .....  | WANG Hui-yan, ZENG Dao-ming, GUO Zhi-juan, <i>et al.</i> ( 333 )    |
| Improved Regression Kriging Prediction of the Spatial Distribution of the Soil Cadmium by Integrating Natural and Human Factors .....  | GAO Zhong-yuan, XIAO Rong-bo, WANG Peng, <i>et al.</i> ( 343 )      |
| Simulation Cadmium (Cd) Accumulation in Typical Paddy Soils in South China .....   | DAI Ya-ting, FU Kai-dao, YANG Yang, <i>et al.</i> ( 353 )           |
| Bioaccessibility and Health Risks of the Heavy Metals in Soil-Rice System of Southwest Fujian Province .....   | LIN Cheng-qi, CAI Yu-hao, HU Gong-ren, <i>et al.</i> ( 359 )        |
| Effects of Nano Material on Cadmium Accumulation Capacity and Grain Yield of Indica Hybrid Rice Under Wetting-drying Alternation Irrigation .....  | YANG Ru, CHEN Xin-rui, ZHANG Ying, <i>et al.</i> ( 368 )            |
| Regulation Control of a Tribasic Amendment on the Chemical Fractions of Cd and As in Paddy Soil and Their Accumulation in Rice .....   | JIANG Yi, LIU Ya, GU Jiao-feng, <i>et al.</i> ( 378 )               |
| Combined Effect of Weathered Coal Based Amendments and Soil Water Management on Methylmercury Accumulation in Paddy Soil and Rice Grains .....   | ZHENG Shun-an, WU Ze-ying, DU Zhao-ling, <i>et al.</i> ( 386 )      |
| Effects of Fertilization Strategies on the Cadmium Resistance of Paddy Soil Microorganisms .....   | ZHENG Kai-kai, MA Zhi-yuan, SUN Bo, <i>et al.</i> ( 394 )           |
| Soil Enzyme Activity in <i>Picea schrenkiana</i> and Its Relationship with Environmental Factors in the Tianshan Mountains, Xinjiang .....   | ZHANG Han, GONG Lu, LIU Xu, <i>et al.</i> ( 403 )                   |
| Effects of Farmland Abandonment on Soil Enzymatic Activity and Enzymatic Stoichiometry in the Loess Hilly Region, China .....  | ZHONG Ze-kun, YANG Gai-he, REN Cheng-jie, <i>et al.</i> ( 411 )     |
| Effect of Biochar on Soil Enzyme Activity & the Bacterial Community and Its Mechanism .....  | FENG Hui-lin, XU Chen-sheng, HE Huan-hui, <i>et al.</i> ( 422 )     |
| Effects of Vegetation Restoration on the Structure and Function of the Rhizosphere Soil Bacterial Community of <i>Solanum rostratum</i> .....  | ZHANG Rui-hai, SONG Zhen, FU We-dong, <i>et al.</i> ( 433 )         |
| Response of Microbial Biomass Carbon and Nitrogen and Rice Quality in a Yellow Soil Paddy Field to Biochar Combined with Nitrogen Fertilizer .....   | SHI Deng-lin, WANG Xiao-li, LIU An-kai, <i>et al.</i> ( 443 )       |
| Effects of Adding Straw and Biochar with Equal Carbon Content on Soil Respiration and Microbial Biomass Carbon and Nitrogen .....  | HE Tian-tian, WANG Jing, FU Yun-peng, <i>et al.</i> ( 450 )         |
| How Different Ratios of Straw Incorporation to Nitrogen Fertilization Influence Endogenous and Exogenous Carbon Release from Agricultural Soils .....  | SUN Zhao-an, ZHANG Xuan, HU Zheng-jiang, <i>et al.</i> ( 459 )      |
| Effect of Biochar and Chemical Fertilizer Mixture on Ammonia Volatilization and Phosphorus Fixation .....  | YANG Wen-na, DENG Zhen-xin, LI Jiao, <i>et al.</i> ( 467 )          |
| Effects of Film Materials on Ammonia Volatilization Emissions from a Paddy System After Reducing Nitrogen Fertilizer Application .....   | YU Ying-liang, WANG Meng-fan, YANG Bei, <i>et al.</i> ( 477 )       |
| Effects of Microplastics on Embryo Hatching and Intestinal Accumulation in Larval Zebrafish <i>Danio rerio</i> .....   | ZHAO Jia, RAO Ben-qiang, GUO Xiu-mei, <i>et al.</i> ( 485 )         |
| Urban Micro-Scale Thermal Environment Simulation Supported by UAV Thermal Infrared Data .....  | YANG Shao-qi, FENG Li, TIAN Hui-hui, <i>et al.</i> ( 492 )          |
| Estimation of the Urban Heat Island Intensity Change and Its Relationships with Driving Factors Across China Based on the Human Settlement Scale .....   | SUN Yan-wei, WANG Run, GUO Qing-hai, <i>et al.</i> ( 501 )          |