

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

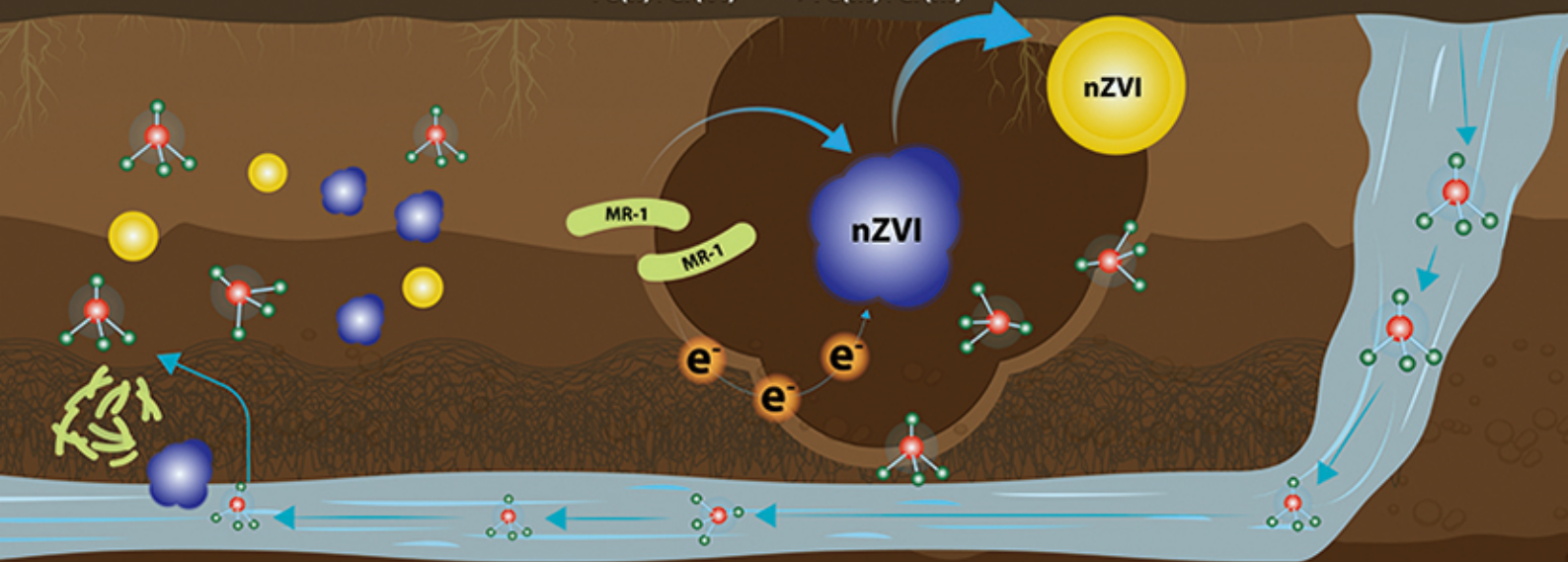
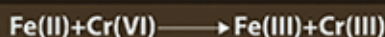
环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

电活性微生物激活生物质炭/零价铁协同钝化Cr(VI)及机制

廖聪坚, 赵晓蕾, 刘凯, 钟松雄, 李芳柏, 方利平, 叶挺进, 石虎砚



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年9月

第42卷 第9期
Vol.42 No.9

目次

北京市 2014~2020 年 PM _{2.5} 和 O ₃ 时空分布与健康效应评估	陈菁, 彭金龙, 徐彦森 (4071)
京津冀地区高分辨率 PM _{2.5} 浓度时空变化模拟与分析	杨晓辉, 宋春杰, 范丽行, 张凌云, 魏强, 李夫星, 王丽艳, 王卫 (4083)
京津冀典型城市冬季人为源减排与气象条件对 PM _{2.5} 污染影响	邵玄逸, 王晓琦, 钟巍盛, 王瑞鹏 (4095)
太行山两侧污染物传输对横谷城市气溶胶的影响分析	王雁, 郭伟, 闫世明, 裴坤宁, 李明明, 陈二萍 (4104)
嘉善冬季碳质气溶胶变化特征及其来源解析	张颖龙, 李莉, 吴伟超, 吕升, 秦阳, 祝新明, 高晋徽, 唐倩, 夏峰 (4116)
基于机器学习算法的新冠疫情管控对河南省空气质量影响的模拟分析	魏煜, 徐起翔, 赵金帅, 张瑞芹 (4126)
新乡市大气 PM _{2.5} 载带金属元素季节分布、来源特征与健康风险	刘恒嘉, 贾梦珂, 刘永丽, 赵艺洁, 郑爱华, 刘恒志, 徐肃阳, 肖晴晴, 苏晓燕, 任言 (4140)
黄渤海气溶胶中砷的分布特征和季节变化	袁帅, 王艳, 刘汝海, 种习习, 刘晓雨, 邵龙 (4151)
天津市 2020 年冬季重污染过程气溶胶消光特性及其来源	李立伟, 肖致美, 杨宁, 蔡子颖, 闫斌峰, 元洁, 白宇, 郑乃源, 唐邈 (4158)
中国暖季近地面臭氧浓度空间格局演变及主要气象驱动因素	何超, 慕航, 杨璐, 王丹璐, 邱彦峰, 叶志祥, 易嘉慧, 柯碧钦, 田雅, 洪松 (4168)
乌海市夏季臭氧污染特征及基于过程分析的成因探究	张瑞欣, 陈强, 夏佳琦, 刘晓, 郭文凯, 李光耀, 陈梅 (4180)
珠江三角洲海岸背景区大气 VOCs 污染特征与来源	云龙, 李成柳, 张明棣, 何龙, 郭键锋 (4191)
永定河上游地表水-地下水水化学特征及其成因分析	孔晓乐, 杨永辉, 曹博, 王艺璇, 裴宏伟, 沈彦军 (4202)
汉江中下游水质时空变异与驱动因素识别	程兵芬, 张远, 夏瑞, 张楠, 张新飞 (4211)
环境持久性药物在江苏省地表水中的污染水平、分布特征及生态风险评估	赵美美, 范德玲, 古文, 汪贞, 梁梦园, 刘济宁, 张志 (4222)
柳江流域河流溶解态重金属时空分布及污染评价	张婉军, 辛存林, 于爽, 刘齐, 曾鹏 (4234)
雷州半岛地下水重金属来源解析及健康风险评价	师环环, 潘羽杰, 曾敏, 黄长生, 侯清芹, 皮鹏程, 彭红霞 (4246)
龙子祠泉域地下水金属元素分布特征及健康风险评价	谢浩, 梁永平, 李军, 邹胜章, 申豪勇, 赵春红, 王志恒 (4257)
硫氧同位素解析典型岩溶地下河流域硫酸盐季节变化特征和来源	任坤, 潘晓东, 兰干江, 彭聪, 梁嘉鹏, 曾洁 (4267)
包头南海湿地磷形态及污染源定量识别	拜亚红, 钱晨歌, 袁思静, 谢子嫣, 来凌子, 张敏, 刘颖, 苗春林 (4275)
城市新城区公园沟塘沉积物磷释放风险及影响因素分析	李如忠, 宋敏, 杨继伟 (4287)
水力停留时间对潜流湿地净化效果影响及脱氮途径解析	齐冉, 张灵, 杨帆, 颜昌宙 (4296)
锰砂人工湿地对污染物的强化去除	马权, 王东麟, 林慧, 柏耀辉 (4304)
4 种典型沉水植物对去除磷污染底泥的应用效果	陶理, 王沛芳, 袁秋生, 王洵, 胡斌 (4311)
输水情景下白洋淀好氧反硝化菌群落对溶解性有机物的响应	周石磊, 张甜娜, 陈召莹, 张紫薇, 于明会, 姚波, 崔建升, 罗晓 (4319)
木屑生物炭在雨水径流中的氮磷淋出和吸附特性	孟依柯, 王媛, 汪传跃 (4332)
海州湾潮间带沙蚕对沉积物微塑料的指示作用	王嘉旋, 宋可心, 孙一鑫, 方涛, 李瑾祯, 张涛, 冯志华 (4341)
纳米二氧化钛与镉对斜生栅藻 (<i>Scenedesmus obliquus</i>) 生长的拮抗效应及其作用机制	王璞, 赵丽红, 朱小山 (4350)
螺旋霉素废水处理过程中菌群结构、水质特征及抗性基因之间关系分析	武彩云, 李慧莉, 覃彩霞, 佟娟, 魏源送 (4358)
整合铁对厌氧铁氨氧化脱氮效能及微生物群落的影响	廖宏燕, 宋诚, 万柳杨, 时绍鹏, 王兴祖 (4366)
溶解氧对低碳源城市污水处理系统脱氮性能与微生物群落的影响	池玉蕾, 石炬, 任童, 王晓昌, 金鹏康 (4374)
间歇梯度曝气下缩短 SRT 强化短程 SNEDPR 系统脱氮除磷	张玉君, 李冬, 王歆鑫, 张杰 (4383)
生物膜系统中部分反硝化实现特性	于莉芳, 张兴秀, 张琼, 王晓玉, 彭党聪, 张日霞 (4390)
厌氧推流进水对反硝化除磷好氧颗粒污泥系统的影响	李冬, 曹思雨, 王琪, 张杰 (4399)
不同好氧/缺氧时长联合分区排泥优化生活污水短程硝化反硝化除磷颗粒系统运行	王文琪, 李冬, 高鑫, 张杰 (4406)
中国西南地区金属矿开采对矿区土壤重金属影响的 Meta 分析	张健琳, 瞿明凯, 陈剑, 杨兰芳, 赵永存, 黄标 (4414)
青藏高原典型流域土壤重金属分布特征及其生态风险评价	杜昊霖, 王莺, 王劲松, 姚玉璧, 周悦, 刘晓云, 芦亚玲 (4422)
电子垃圾拆解区土壤-农作物系统中镉元素的空间分布特征及其风险评价	张璐瑶, 赵科理, 傅伟军 (4432)
改性生物炭特性表征及对冶炼厂周边农田土壤铜镉形态的影响	王鑫宇, 孟海波, 沈玉君, 王佳锐, 张曦, 丁京涛, 周海宾, 李春燕, 程琼仪 (4441)
组配改良剂联合锌肥对土壤-水稻系统镉迁移转运的影响	周坤华, 周航, 王子钰, 刘雅, 刘佳伟, 辜娇峰, 曾鹏, 廖柏寒 (4452)
不同结构改良剂对铜镉污染土壤水稻生长和重金属吸收的影响	魏玮, 李平, 郎漫 (4462)
1 株草螺属植物内生菌 R-13 的分离鉴定及对龙葵吸收土壤镉的影响	鹿杰, 刘月敏, 黄永春, 王常荣, 刘斌, 刘仲齐, 黄益宗, 黄雁飞, 张长波 (4471)
不同地区土壤古菌群落对重金属污染响应	李雨桐, 杨杉, 张艺, 范例, 刘坤, 张晟 (4481)
高通量测序分析黄土高原退耕还林区土壤细菌群落特征	刘晓华, 魏天兴 (4489)
餐厨垃圾生物发酵液对黄土丘陵区土壤质量的影响试验	邵立明, 任俊达, 吕凡, 章骅, 何晶晶 (4500)
秦岭不同海拔土壤团聚体稳定性及其与土壤酶活性的耦合关系	马震菲, 胡汗, 李益, 郭鑫鑫, 任成杰, 赵发珠 (4510)
电活性微生物激活生物炭/零价铁协同钝化 Cr(VI) 及机制	廖聪坚, 赵晓蕾, 刘凯, 钟松雄, 李芳柏, 方利平, 叶挺进, 石虎砚 (4520)
降水变化对荒漠草原土壤呼吸的影响	蒿康伊, 张丽华, 谢忠奎, 赵锐锋, 王军锋, 郭亚飞, 高江平 (4527)
氮肥分施次数及硝化抑制剂对盆栽玉米 N ₂ O 排放的影响	符佩娇, 吉恒宽, 何秋香, 汤水荣, 王鸿浩, 伍延正, 孟磊 (4538)
负载 NH ₄ ⁺ -N 生物炭对土壤 N ₂ O-N 排放和 NH ₃ -N 挥发的影响	马晓刚, 何建桥, 陈玉蓝, 李德天, 刘川, 董建新, 郑学博 (4548)
微塑料添加对橘园土壤有机碳矿化的影响	张秀玲, 鄢紫薇, 王峰, 王玺, 徐晗, 胡荣桂, 严昶, 林杉 (4558)
1985~2019 年中国全氟辛酸磺酰基化合物的动态物质流分析	王佳钰, 陈景文, 唐伟豪, 崔蕴晗, 王中钰, 宋国宝, 陈伟强 (4566)
《环境科学》征订启事(4201) 《环境科学》征稿简则(4340) 信息(4382, 4537, 4565)	

京津冀典型城市冬季人为源减排与气象条件对 $\text{PM}_{2.5}$ 污染影响

邵玄逸, 王晓琦*, 钟嶷盛, 王瑞鹏

(北京工业大学环境与能源工程学院, 区域大气复合污染防治北京市重点实验室, 北京 100124)

摘要: 本研究基于采样分析与 WRF-CAMx-PSAT 模式分析了 2018 年 1 月北京和唐山 $\text{PM}_{2.5}$ 的组分特征、传输特征和来源解析。结果表明, 2018 年 1 月北京和唐山水溶性无机离子占 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的 49.59% 和 39.13%, 两地 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 分别为 2.02 和 1.51, 均受移动源主导, 北京和唐山 $\text{PM}_{2.5}$ 外来贡献分别占总浓度的 48.74% 和 30.67%, 除此之外主要受到邻近局地、西北通道和西南通道这 3 个方面的污染输送。在污染日时段, 两地受西南通道污染贡献分别上升 9.65% 和 15.02%。北京 $\text{PM}_{2.5}$ 污染浓度贡献最大的是移动源和扬尘源, 二次离子受区域输入影响较为明显, 唐山则以移动源和工业源为主, 且一次颗粒物和 SO_4^{2-} 的本地贡献十分显著。与 2013 年相比, 水溶性离子主导组分由 SO_4^{2-} 向 NO_3^- 转变, 主要污染源由燃煤源和工业源向移动源和扬尘源转变, 同时 2018 年气象条件对于污染的缓解也比 2013 年更为有利, 其中二次离子的气象影响变化与这两年的相对湿度变化差异紧密相关。

关键词: $\text{PM}_{2.5}$; 水溶性无机离子; 区域传输; 来源解析; 气象影响

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)09-4095-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202011216

Impacts of Anthropogenic Emission Reduction and Meteorological Conditions on $\text{PM}_{2.5}$ Pollution in Typical Cities of Beijing-Tianjin-Hebei in Winter

SHAO Xuan-yi, WANG Xiao-qi*, ZHONG Yi-sheng, WANG Rui-peng

(Key Laboratory of Beijing on Regional Air Pollution Control, College of Environmental and Energy Engineering, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China)

Abstract: This study used sampling analysis and a CAMx-PSAT coupling model to analyze the components, transmission, and source apportionment of $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing and Tangshan in January 2018. The results showed that in January 2018, water-soluble inorganic ions (WSIIs) accounted for 49.59% and 39.13% of $\text{PM}_{2.5}$ mass concentrations in Beijing and Tangshan, respectively. The ratios of NO_3^- to SO_4^{2-} were 2.02 and 1.51, respectively, indicating that pollution in both cities was dominated by mobile sources. In Beijing and Tangshan, $\text{PM}_{2.5}$ accounted for 48.74% and 30.67% of transmission, respectively. Regional transmissions were mainly contributed by neighboring areas, northwest masses, and southwest masses. However, the contribution of the southwest passage to pollution in the respective cities increased by 9.65% and 15.02% during pollution periods. The principal sources contributing to $\text{PM}_{2.5}$ pollution in Beijing were mobile and dust sources. Secondary ions were more obviously affected by regional contributions, mobile and industrial sources had the most significant effect in Tangshan, and most particulate matter and sulfate were contributed by local emissions. From 2013 to 2018, the dominant component of WSIIs changed from sulfate to nitrate while the main pollution sources changed from coal-fired and industrial sources to mobile and dust sources. Meanwhile, in January 2018, the meteorological factors were more favorable for pollution mitigation than in 2013. The meteorological impact of secondary ions is closely related to the lower relative humidity in 2018, compared to 2013.

Key words: $\text{PM}_{2.5}$; water soluble inorganic ions; regional transport; source apportionment; meteorological changes

21 世纪以来,随着我国工业化、城镇化以及现代化的不断推进,伴随着 $\text{PM}_{2.5}$ 为首的大气环境复合污染问题日益突出。大气污染除组分结构复杂多变外^[1], 还受地形^[2] 和气象条件^[3] 的影响, 具有显著的区域扩散特征, 对城市的大气能见度, 城市居民的身体健康^[4, 5] 以及生态环境风貌具有重要影响。

京津冀地区是我国北方重要的人口与工业城市集中区之一, 自 2013 年我国发布大气污染防治行动计划(2013~2017 年, “行动计划”) 和京津冀及周边地区 2017~2018 年秋冬季大气污染综合治理攻坚行动方案至今^[6], 诸多研究者对这一阶段的

$\text{PM}_{2.5}$ 及其相关前体物的污染状况变化作了多方面多尺度的研究与评价, 针对 $\text{PM}_{2.5}$ 污染气象^[7]、主要组分特征^[8, 9]、典型重污染时段分析^[10]、潜在源分析^[11]、传输贡献^[12] 及来源解析^[13, 14], 还有运用主成分分析与多目标非线性规划(principal component analysis and multiple nonlinear regression, PCA-

收稿日期: 2020-11-25; 修订日期: 2021-03-07

基金项目: 国家自然科学基金重点项目(51638001); 国家重点研发计划项目(2018YFC0213206)

作者简介: 邵玄逸(1996~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为环境规划管理与大气复合污染防治, E-mail: shaoxuanyi@emails.bjut.edu.cn

* 通信作者, E-mail: wangxq@bjut.edu.cn

MNLR)将源解析结果与气象、能源和经济因素相结合对两次污染防治行动方案成效的评价研究^[15]. 有研究表明“行动计划”实施前后北京及周边地区PM_{2.5}中主要二次离子SNA(SO₄²⁻、NO₃⁻和NH₄⁺)浓度均有大幅降低,同时在2016~2017年,SO₄²⁻占比降低而NO₃⁻占比逐渐升高^[8,9],在重污染时段SNA的占比均高于清洁日,外来传输贡献显著上升^[10],同时Dong等^[16]的研究表明,尽管减排对PM_{2.5}浓度影响占比为70%~90%,然而2017年气象条件对PM_{2.5}的减轻相比2014年起到了更为不利的影响. 总体而言,这一系列研究充分肯定了“行动计划”前后京津冀地区空气质量的改善,同时在这期间PM_{2.5}各组分占比、污染源贡献比例结构以及气象条件均存在着一系列的变化,且河北多个城市的第二产业仍处于其经济发展的主导地位,污染排放负荷居高不下,因此对于政策成果的后续研究仍然十分必要.

本文选取京津冀地区产业排放结构差异较大的北京与唐山作为研究对象,分析了2018年1月两城市PM_{2.5}组分特征,运用空气质量模型并结合相关研究,比对分析“行动计划”前后2013年和2018年两地的冬季PM_{2.5}组分变化、传输贡献变化与行业贡献变化,以期为后续区域联防联控战略重心的调整与补充,以及落实下一步的污染防控计划提供一定科学支撑.

1 材料与方法

1.1 样品采集与分析

本研究选取北京师范大学(39.96°N, 116.36°E)科技楼楼顶和唐山市环境监测中心(39.64°N, 118.16°E)楼顶进行样品采集,采集点位于商业区和居民区附近,可以较好地体现城区的污染特征. 采样时间为2018-01-02~2018-01-24,采样时间为23 h·d⁻¹(10:00至次日09:00). 采样仪器选用武汉天虹多通道颗粒物采样器(URG-3000ABC),采样流量设为16.67 L·min⁻¹,采样期间同时记录采样体积和气温、湿度等气象要素. 采样滤膜选用Whatman(英国)特氟龙滤膜. 采样完成后,首先将滤膜样品和空白样品置于恒温恒湿箱(温度(20±2)℃;湿度(40±4)%,平衡48 h,在超净室用电子天平(型号:MSA6.6S-000-DF微量天平,精度:0.001 mg)进行称量,称重后立即放入聚四氟乙烯容器内密封并置于4℃冰箱内保存.

剪取1/4样品滤膜,称重后放入试管中,加入10 mL高纯水,置于超声波清洗器振荡60 min,使用聚丙烯无菌注射器净0.45 μL一次性针头微孔滤膜

过滤后注入离子色谱系统. 离子色谱仪型号为Thermo Fisher Scientific ICS-1100,所测组分包括Na⁺、NH₄⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、F⁻、Cl⁻、NO₂⁻、NO₃⁻和SO₄²⁻共10种水溶性离子,其中阳离子选用CS12A色谱柱,液相淋洗液为20 mmol·L⁻¹的甲基磺酸(MSA),阴离子选用AS11-HC色谱柱,淋洗液为15 mmol·L⁻¹的KOH. 为减少测试过程的实验误差,在样品测试前先采用具有国家认证的标准物质(GSB 07-3185-2014)进行质量控制标定,同时在测样过程中称取3份空白滤膜做同样前处理后进行测试,取均值作为滤膜本底值,用于测试数据的校正.

1.2 模型设置

本研究采用WRF-CAMx-PSAT耦合模型对京津冀地区PM_{2.5}传输规律进行模拟研究,气象场模型采用WRF v3.5.1版本,初始背景边界条件采用美国国家环境预报中心(NCEP)提供的6 h、1°分辨率的全球对流层FNL数据集. 空气质量模型采用美国ENVIRON公司在UAM-V模式基础上开发的CAMx v6.3版本,在其中开启内嵌的颗粒物示踪模块(PSAT),用于针对颗粒物各类组分进行来源识别,可以有效识别分析不同地区各类污染物的来源贡献. CAMx模拟区域采用Lambert投影,设置两层嵌套网络,外层分辨率为36 km×36 km,内层分辨率为12 km×12 km. 内层网格主要覆盖京津冀地区(包含北京、天津、河北、山东、山西、河南、内蒙古和辽宁的部分区域). 气象化学机制选用CB05,水平扩散和气象化学扩散使用PPM(Piecewise Parabolic Method)和EBI(Euler Backward Iterative chemistry solver)机制. 京津冀区域采用本研究团队通过自下而上的方法建立的京津冀地区大气污染物排放清单^[17],包含物种有PM_{2.5}、PM₁₀、NO_x、SO₂、VOCs、CO和NH₃等,京津冀以外区域采用清华大学MEIC排放清单^[18]并应用GIS工具进行分排放源统计汇总,再就模拟区域进行网格化分配. 排放区域分为8个部分,分别为北京、唐山、京津冀中部地区(包括天津、廊坊、保定)、秦皇岛、河北北部(包括张家口、承德)、河北东南(包括沧州、衡水)、河北西南(包括石家庄、保定、邢台、邯郸)和京津冀区域以外的网格区域. 并选取北京和唐山的国控监测站点作为受体点. 排放源分为电力源、冶金源、其他工业源、移动源、扬尘源、居民源以及其他排放源. 模拟年份分别为2013和2018年1月的标准情景以及利用2018年排放清单和2013年气象场模拟的混合情景.

1.3 模型验证

为验证CAMx模型模拟结果的准确性,本文选取北京市和唐山市国控站点PM_{2.5}逐小时监测均值

作为范本进行模型验证,并引入标准化平均偏差(NMB)和相关系数(COR)来评估模拟值的准确性^[19].验证结果显示(图1和表1),北京市和唐山市2018年1月PM_{2.5}模拟浓度与监测浓度的相关系数分别为0.72和0.69,标准化平均偏差为-9.60%和-10.44%,2013年1月相关系数分别为0.69和0.73,可以看出,标准化平均偏差为-25.65%和-31.71%.模拟浓度与实际相比均有一定程度的低估,尤其在污染较为严重的2013年,低估程度更高.其模拟误差一方面来源于排放清单的不确定性,另一方面在于模型化学反应机制中的不确定性所带来的系统误差,导致对于重污染环境的模拟效果欠佳.综合PM_{2.5}以及气象条件的各项评估指数以及相关研究考虑^[20],本文所选用的模型

参数设置方案对PM_{2.5}的模拟效果良好,模拟误差处于可接受范围内,对本研究具有一定的可靠性.

表1 模拟结果与观测结果的对比

Table 1 Comparison between simulated and observed parameters				
地点	年份	指标	NMB/%	COR
北京	2013	PM _{2.5} 浓度	-25.65	0.69
		温度	-1.30	0.68
		风速	22.20	0.46
	2018	PM _{2.5} 浓度	-9.60	0.72
		温度	-0.70	0.88
		风速	34.80	0.57
唐山	2013	PM _{2.5} 浓度	-31.71	0.73
		温度	-2.10	0.71
		风速	20.50	0.45
	2018	PM _{2.5} 浓度	-10.44	0.69
		温度	-1.10	0.85
		风速	31.17	0.51

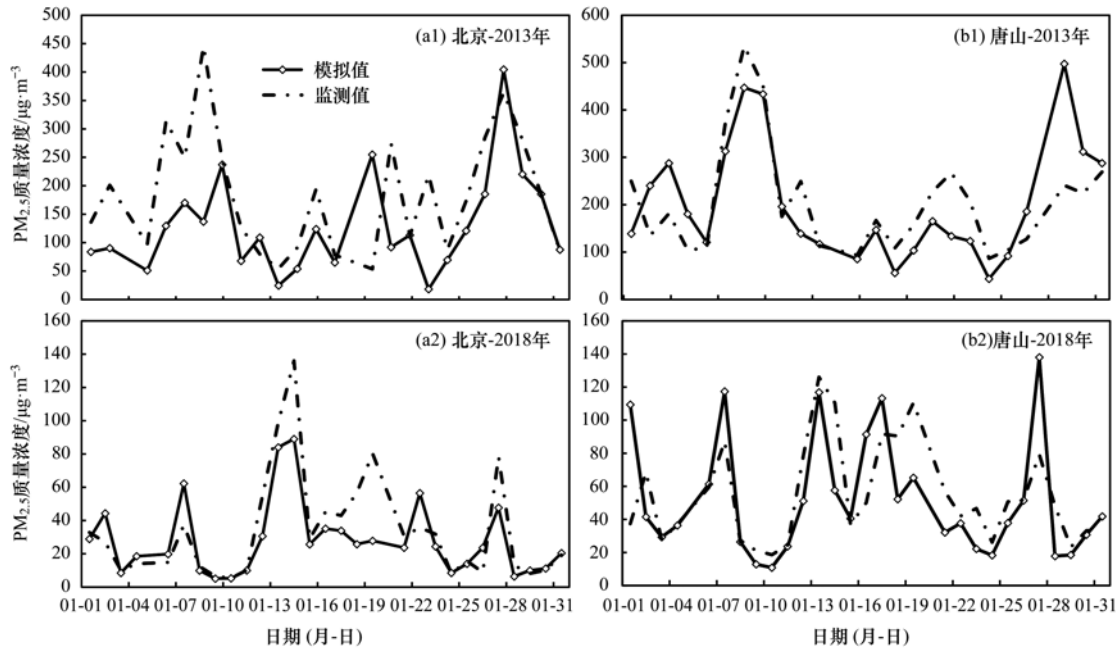


图1 模拟值与监测值对比

Fig. 1 Comparison between modelling data and monitoring data

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5}及其水溶性组分污染特征

基于滤膜采样监测得到的北京市和唐山市2018年1月PM_{2.5}质量浓度分别为(51.04 ± 41.53) μg·m⁻³和(57.60 ± 23.96) μg·m⁻³,与发布的PM_{2.5}监测值(<https://www.aqistudy.cn/historydata/>)相比,相关性达到了0.8以上.从PM_{2.5}日变化趋势曲线来看(图2),北京与唐山的趋势较为接近,根据国家二级标准(75 μg·m⁻³)界定,两地PM_{2.5}超标率分别为13%和30%,主要分布在1月12~14日和1月17~19日两个污染阶段.

通过离子色谱进一步分析PM_{2.5}中水溶性无机

离子(WSIIs),2018年1月监测时段内,北京市和唐山市WSIIs日均浓度分别为(26.58 ± 21.42) μg·m⁻³和(22.97 ± 8.86) μg·m⁻³,占PM_{2.5}质量浓度的49.59%和39.13%,各组分质量浓度如图2所示.其中SNA是WSIIs最重要组成部分,在本次观测过程中占WSIIs的80%以上,北京市SNA质量浓度(μg·m⁻³)及其在WSIIs中占比(%)分别为4.76(18.39)、11.41(43.65)和6.68(22.93),唐山市SNA对应结果为6.14(26.38)、9.70(41.64)和5.49(24.15).北京和唐山的SNA组分中均为硝酸盐占比最高,硫酸盐与铵盐则较为接近.而唐山的SO₄²⁻质量浓度高于北京,NO₃⁻和NH₄⁺则低于北京.主要是由于唐山市较高的工业源比重使得大气

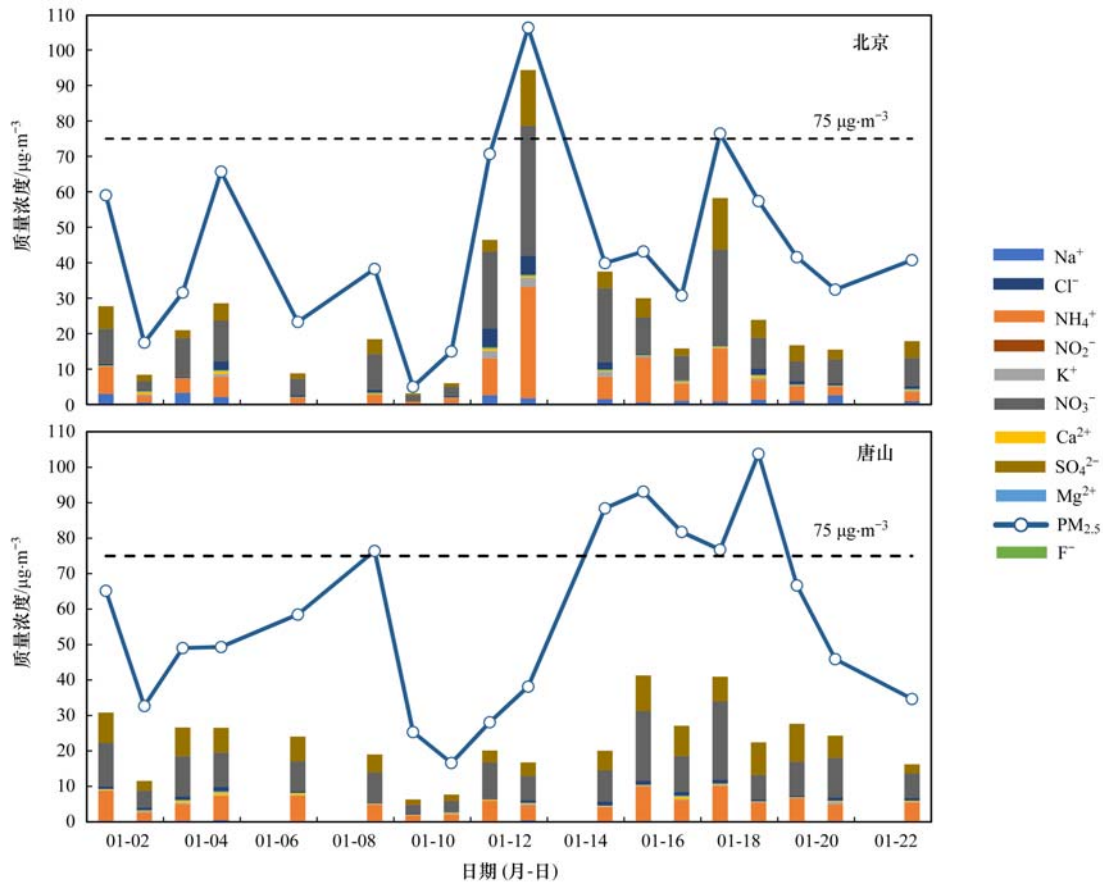


图2 2018年1月北京与唐山PM_{2.5}以及离子组分日均浓度趋势

Fig. 2 Daily average concentration of PM_{2.5} and ionic components in Beijing and Tangshan in January 2018

中SO₂水平升高,而北京则有更多的移动源比重造成了更高的氮氧化物排放.除了SNA之外,其他水溶性离子中两地均有占比较高的Cl⁻和K⁺,有研究表明这两种离子作为生物质和燃煤燃烧的指示物之一^[21],普遍会在冬季受供暖影响显著升高.

通过计算NO₃⁻和SO₄²⁻浓度比值可以更直观地反映移动源和固定源对大气污染的相对贡献强度.除SNA以外,本研究中,北京的NO₃⁻/SO₄²⁻为2.02,显著高于唐山的1.51.证明移动源对北京市的PM_{2.5}污染贡献更为显著.结合华北地区其他城市的相关监测结果^[22]来看,WSHs对北京的污染贡献更为显著.通过计算WSHs中阴阳离子电荷当量浓度比值可以初步判断大气颗粒物的酸碱性,计算公式如下:

$$AE = \frac{\rho(\text{Cl}^-)}{35.5} + \frac{\rho(\text{NO}_2^-)}{62} + \frac{\rho(\text{NO}_3^-)}{62} + \frac{\rho(\text{SO}_4^{2-})}{48}$$

$$CE = \frac{\rho(\text{Na}^+)}{23} + \frac{\rho(\text{NH}_4^+)}{18} + \frac{\rho(\text{K}^+)}{39} + \frac{\rho(\text{Mg}^{2+})}{12} + \frac{\rho(\text{Ca}^{2+})}{20}$$

式中, ρ 表示质量浓度($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$),AE(anion equivalent)和CE(cation equivalent)分别为阴离子和

阳离子的电荷当量浓度.本研究中,北京市1月监测时段的AE/CE值为0.78($R^2=0.93$),唐山为0.88($R^2=0.88$),这表明两地PM_{2.5}中阴离子均已配比饱和,而阳离子有所盈余,呈现碱性特征.比较观测时段北京和唐山污染日与清洁日SNA占比变化,并结合硫酸化率(SOR)和氮氧化率(NOR)的变化分析气态前体物对二次组分的影响,计算公式如下:

$$\text{SOR} = \frac{\text{SO}_4^{2-}}{\text{SO}_4^{2-} + \text{SO}_2}$$

$$\text{NOR} = \frac{\text{NO}_3^-}{\text{NO}_3^- + \text{NO}_x}$$

结果表明北京在污染日SNA组分占比分别上涨了2.4%、2.2%和9.3%,SOR从0.35上涨为0.43,NOR从0.21上涨到0.23,而NO₃⁻/SO₄²⁻则从2.47下降至2.18.这些变化表明,北京在污染时段SNA占比和二次转化活性显著提升,且SOR上升幅度相比NOR更大,伴随着NO₃⁻/SO₄²⁻的下降,表明工业源和燃烧源对北京的污染时段具有显著影响.唐山在污染日占比和SOR和NOR与清洁日变化差异较小,分析原因主要由于在观测时段唐山地区污染时段PM_{2.5}浓度($86.73\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)低于北京($106.66\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$).另外,结合采样时段观测得到的

相对湿度数据表明,唐山市在污染时段相对湿度上涨幅度(42.2%→48.4%)也显著低于北京(32.4%→47.8%),总体较低的污染程度与相对平稳的气象条件,可能造成了唐山并没有发生如北京一样显著的 SNA 比率的急剧上升现象。

2.2 污染物来源分析

根据实验室自上而下统计整理的京津冀区域排放清单分析表明,相比于 2013 年,京津冀地区在“行动计划”的严格调控下,各类大气污染物排放量均有大幅度降低。以本研究主要研究的北京和唐山两地为例,北京市 SO₂ 排放降幅最为显著,达到了 89.2%,这主要归功于北京在 2013~2017 年采取了多项针对削减本地居民散煤、淘汰小型燃煤锅炉^[23,24]、煤电减排升级^[25]及钢铁企业外迁的一系列政策,基本实现了北京平原地区无煤化、火电厂完成超低排放改造以及本地冶金企业清零。这一结果与北京市政府相关报告^[26]得出的排放量变化趋势相符。唐山市由于其第二产业密集的特点,SO₂ 减排幅度低于北京。两地 NO_x 和 VOCs 减排比例降幅均小于 SO₂。

通过 CAMx-PSAT 模型分析冬季京津冀地区对北京市和唐山市 PM_{2.5} 的传输影响如图 3 所示。2018 年 1 月北京和唐山 PM_{2.5} 外来贡献分别占总浓度的 48.74% 和 30.67%,除本地贡献外,北京在京津冀区域主要受到河北中部和北部地区贡献较高,

分别为 14.21% 和 7.61%。唐山在京津冀范围内仅河北中部对其影响较大,为 8.68%。另外,两地受京津冀外围源影响同样显著,均在 14% 左右。分析两地污染日和清洁日的污染物传输变化显示(如图 4),污染日北京受外来源贡献提升了 6.09%,其中受北京北部地区(河北北部、唐山和秦皇岛地区)的污染贡献均有所降低,共降低了 10.52%,而受北京南部区域(河北中部、河北西南和东南地区)则有所上升,上升幅度为 9.65%。唐山地区外来源贡献从清洁日的 20.36% 在污染日大幅提升到了 47.72%,外来源中唐山西南部地区(北京和河北中、南部地区)贡献提升显著(7.76%→22.78%)。另外,在污染时段,京津冀外围区域对两地贡献均呈现上升趋势。综合来看,北京和唐山的外来污染源均主要受到邻近局地、西北通道和西南通道这三方面的污染传输,在污染日间,两地均呈现出本地源贡献降低、西南通道城市污染贡献蹿升的变化趋势,具有较一致的协同性。不同点在于,唐山受本地排放负荷较大的影响,本地源贡献显著高于北京,但其在污染日受外来传输影响程度也高于北京。这一传输贡献情况与相关京津冀跨市域输送分析结果相近,同时符合文献[27~29]对于京津冀地区冬季潜在源分析的结果。

对北京和唐山污染物来源解析结果显示(图 5 和图 6),2018 年 1 月北京 PM_{2.5} 污染浓度贡献最大

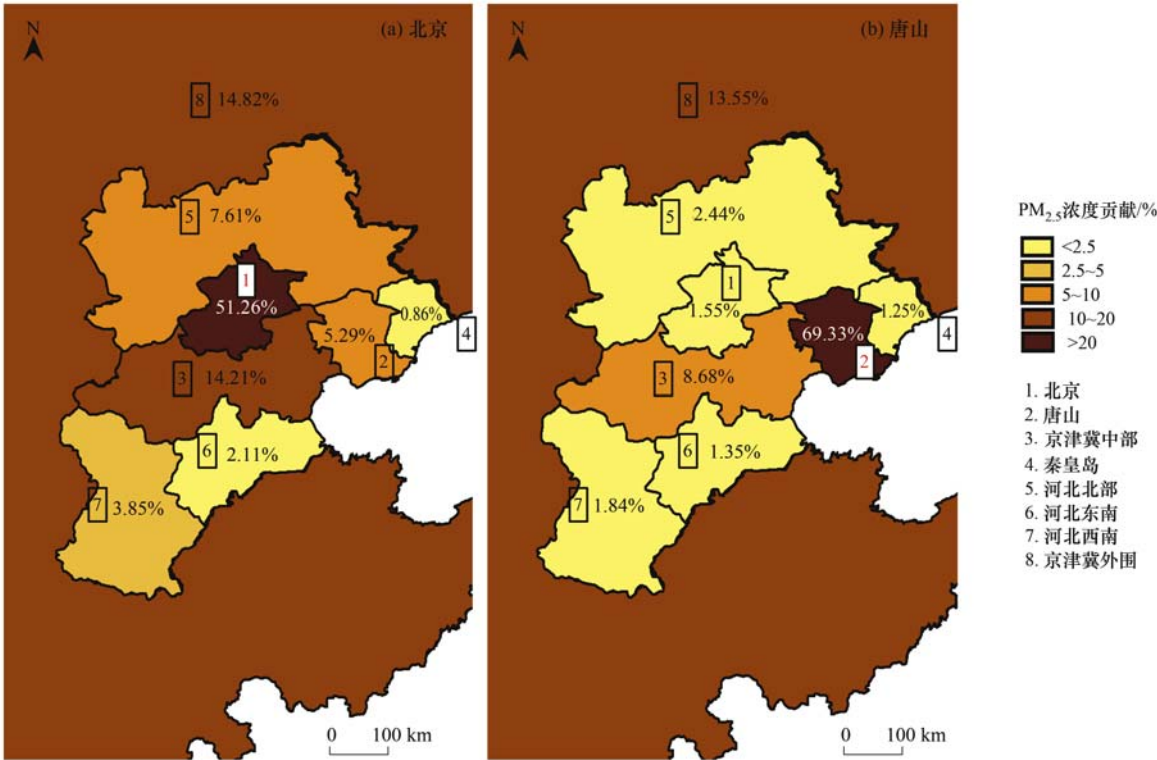


图 3 PM_{2.5} 区域传输贡献分布

Fig. 3 Contributions of different cities and regions to PM_{2.5} concentration in Beijing and Tangshan

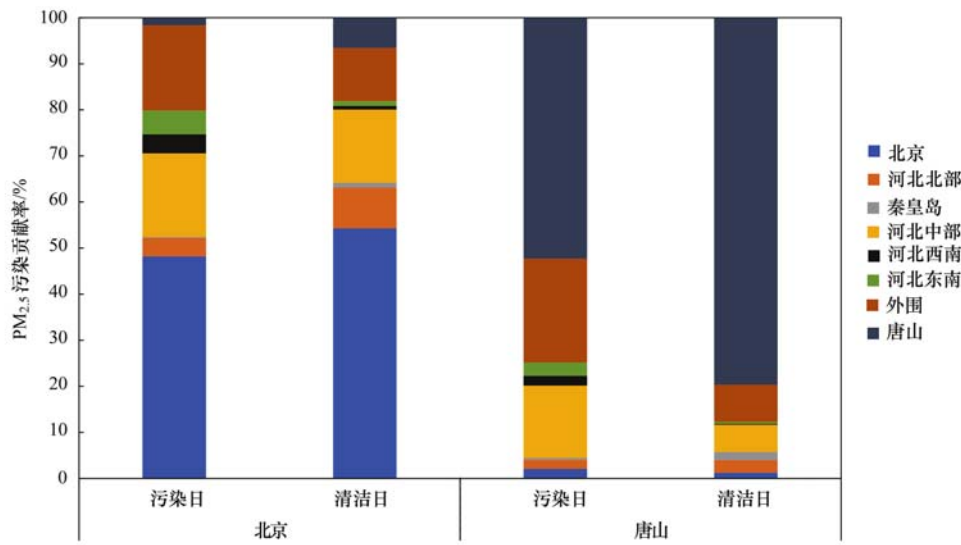


图 4 污染日与清洁日区域传输贡献对比

Fig. 4 Comparison of contribution by regional transmission, between pollution and clean periods

的污染源为移动源,占比达到了 38.7%,其次为扬尘源和居民源,分别占比 27.8% 和 14.0%,而工业源占比仅为 11.1%. 唐山市则以扬尘源和工业源为主,二者均为 26.0% 左右,其次为移动源,占比也达到了 23.7%. 进一步对 $PM_{2.5}$ 及其主要组分的本地源和外来源分别解析污染浓度贡献可知,北京市一次颗粒物 (PPM) 仍主要由移动源与扬尘源的本地贡献为主,而 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 的外来源贡献则高于本地源,分别为 54.5% 和 63.1%, SO_4^{2-} 外来源中工业源占比显著,达到了总量的 35.7%. 唐山市 PPM 贡献来源与北京相近,而 SO_4^{2-} 则以本地工业源贡献

为主,达到了 52.5%. NO_3^- 中工业本地贡献和传输贡献均高于北京,工业总贡献约为北京的 2 倍. 两地 NH_4^+ 均主要受本地人畜氨排放影响,总体浓度基数较小. 分析结果表明,工业源由于平均排放高度较高,因此较易受气象活动影响,从工业密集地区向第三产业地区传输,而移动源、扬尘源以及大部分氨源均为近地面排放,因此多为本地源贡献.

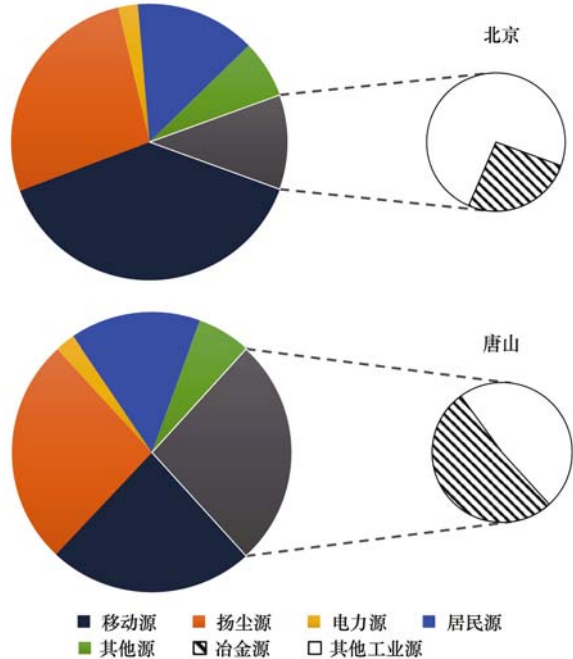


图 5 北京与唐山 $PM_{2.5}$ 来源解析结果

Fig. 5 Source apportionment results of $PM_{2.5}$ in Beijing and Tangshan

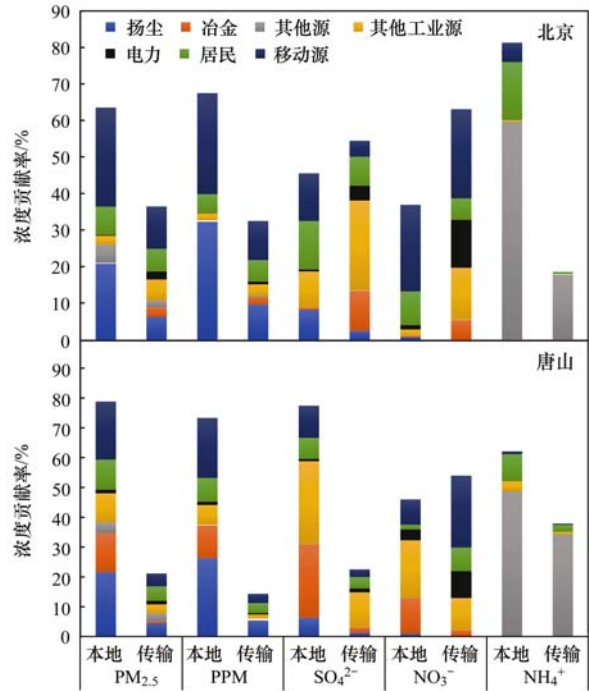


图 6 北京与唐山 $PM_{2.5}$ 及其主要组分来源解析结果

Fig. 6 Source apportionment results of $PM_{2.5}$ and its main species in Beijing and Tangshan

2.3 “行动计划”前后冬季 $PM_{2.5}$ 污染状况对比分析
通过对比 2013 年和 2018 年 1 月的污染状况,对于研究“行动计划”实行前后京津冀地区冬季

PM_{2.5} 的污染变化十分具有代表性. 本研究结合过往对 2013 ~ 2017 年北京和唐山区域传输与来源解析的相关研究成果(如表 2 和表 3)进行了比对分析.

从区域传输的变化情况来看,北京和唐山的本地源贡献显著下降,受到京津冀区域传输和域外传输的贡献占比则有所提升,以北京为例,自 2013 年的 72%、2014 年的 69.3% 和 2015 年的 77% 到 2018 年低于 50%,这既是“行动计划”开展以来,本地污染源调控减排的工作成果,同时也是由于 2018 年冬季的气象条件对于污染的扩散稀释较为有利.

从来源解析的变化情况来看,北京冬季居民燃煤贡献显著降低 [25.9% (2014 年冬季)^[30] → 14.3% (2018 年冬季)],工业源贡献占比呈逐年下降的趋势,2015、2016 和 2017 年冬季分别为 27%、25%、22%,到本研究中 2018 年仅为 10%. 而移动源的权重则逐渐提高 [31% (2013 年) → 45% (2017 年)],到本研究中 2018 年冬季接近 40%. 这也导致北京 NO₃⁻/SO₄²⁻ 在近几年也呈逐年上涨的趋势 [1.01 (2016 年) → 1.52 (2017 年)^[8] → 2.02 (2018 年)]. 对于唐山而言,不同于“行动计划”前期工业源尤其是冶金源的主导性贡献 [工业源占比 33.4% (2013 年),冶金源占比 26.7% (2014 年)],随着工

业源的减排治理,冶金源的贡献占比显著降低,交通源和扬尘源同样成为了 PM_{2.5} 污染来源的重要组成部分,其 NO₃⁻/SO₄²⁻ 也有一定程度上涨 [0.7 (2016 年)^[34] → 1.51 (2018 年)].

总体来看,北京和唐山在 2013 ~ 2018 年经历了严格的散煤控制、电力源超低排放以及工业源减排,而对机动车和扬尘的管控力度相对较小,因此两地的移动源贡献逐渐走向主导地位,PM_{2.5} 中主要二次无机组分也从 SO₄²⁻ 转向 NO₃⁻.

表 2 2013 ~ 2018 年冬季北京与唐山 PM_{2.5} 本地源贡献结果对比
Table 2 Change in PM_{2.5} local contribution ratios for Beijing and Tangshan during winter (2013-2018)

研究时段	空气质量模型	本地源占比/%		文献
		北京	唐山	
2010 年	CAMx-PSAT	63.0	— ¹⁾	[31]
2013 年	—	64 ~ 72	—	[26]
2014 年冬季	CMAQ-ISAM	69.3	—	[32]
2014 年冬季	CAMx-SMOKE	52.3	—	[30]
2015 年冬季	CAMx-PSAT	77.1	75.0	[33]
2016 年冬季	CAMx-PSAT	—	73.1	[34]
2017 年冬季	CMAQ-ISAM	52.9	—	[35]
2017 年	CMAQ-ISAM	49.7	60.0	[16]
2018 年	CAMx-PSAT	51.3	69.3	本研究

1) “—”表示文章中没有相关数据

表 3 2013 ~ 2018 年冬季北京与唐山 PM_{2.5} 来源解析结果对比
Table 3 Changes in PM_{2.5} source contribution ratios for Beijing and Tangshan during winter (2013-2018)

研究时段	空气质量模型	北京		唐山		文献
		工业源/%	移动源/%	工业源/%	移动源/%	
2013 年	— ¹⁾	18.0	31.0	—	—	[26]
2013 年	PMF-CMB-CMAQ	—	—	33.4	15.2	[36]
2014 年冬季	CAMx-SMOKE	13.8	26.3	—	—	[30]
2015 年冬季	CAMx-PSAT	3.4 (冶金)	—	26.7 (冶金)	—	[37]
2015 年	CAMx-PSAT (meic)	27.0	10.0	—	—	[38]
2016 年	CAMx-PSAT (meic)	25.0	14.0	—	—	[38]
2016 年秋冬季	CMAQ-ISAM	26.5	35.4	—	—	[39]
2017 年	CAMx-PSAT (meic)	22.0	19.0	—	—	[38]
2017 年冬季	PMF	—	—	11.2	10.9	[40]
2017 年	—	12.0	45.0	—	—	[26]
2018 年冬季	CAMx-PSAT	11.1	38.7	26.5	23.7	本研究

1) “—”表示文章中没有相关数据

2.4 “行动计划”前后气象影响分析

气象条件的年际差异对 PM_{2.5} 污染程度同样具有显著的影响,尤其在气象相对较为静稳的供暖季. 为了进一步研究气象变化带来的污染贡献影响,本研究将 2013 年 1 月和 2018 年 1 月 PM_{2.5} 及其主要组分的污染浓度削减分为 4 类因素:①本地排放贡献变化 (Δlocal-emiss); ②外来排放贡献变化 (Δregional-emiss); ③气象变化对于本地的影响 (Δlocal-met); ④气象变化对于区域传输的影响 (Δregional-met), 计算结果如图 7 所示. 结果显示,

污染源减排对改善空气质量有显著的积极作用,同时相比于 2013 年,2018 年的气象因素对污染贡献浓度的降低更为有利. 排放量变化 (Δlocal-emiss + Δregional-emiss) 与气象条件变化 (Δlocal-met + Δregional-met) 对北京和唐山的 PM_{2.5} 减排贡献占比分别为 42%、58% 和 47%、53%,气象条件对两地的空气质量的改善均占据了较为主导地位. 二次组分更易在气象传输过程中发生化学转化,极易受到恶劣气象条件的影响. 在本研究中 2013 年与 2018 年的气象条件影响差异造成的 SNA 污染贡献浓度

变化超过了 50%。有研究显示^[41], 相对湿度的大幅提升会导致 SOR 和 NOR 的显著上涨, 在本研究范围内 2013 年北京和唐山的相对湿度分别为 60.6% 和 73.4%, 均大幅高于 2018 年(35.4% 和 44.2%), 此类气象因素的巨大差异, 造成了本研究中气象条件变化对污染贡献的显著影响。综合来看, 与 2013 年相比, 气象条件与减排成果均对颗粒物污染的改善产生了十分正面的影响。

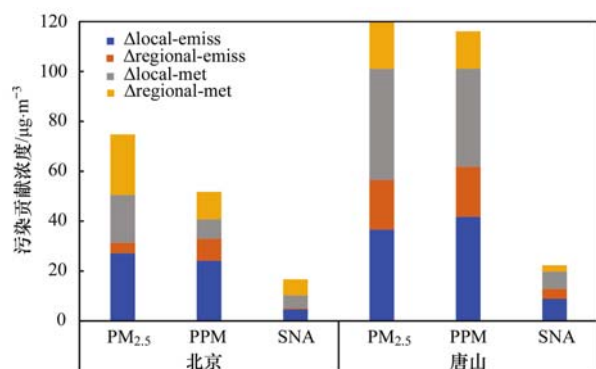


图 7 不同因素对 2013 年和 2018 年北京与唐山 PM_{2.5} 及其主要组分浓度下降的贡献影响

Fig. 7 Contributions of different factors to the decrease in PM_{2.5} concentrations and associated species in Beijing and Tangshan between 2013 and 2018

3 结论

(1) 2018 年 1 月观测时段北京和唐山 PM_{2.5} 质量浓度为 $(51.04 \pm 41.53) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(57.60 \pm 23.96) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 两地 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 分别为 2.02 和 1.51。说明两地 WSIs 均受移动源主导。北京在污染时段 SNA 占比和二次转化活性显著提升, 且 SOR 上升幅度相比 NOR 更大, 伴随着 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 的下降, 表明工业源和燃烧源对北京的污染时段具有显著影响。与历史观测结果相比, 两地的 $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 均呈现上涨趋势。

(2) 北京和唐山 PM_{2.5} 外来贡献分别占总浓度的 48.74% 和 30.67%, 主要受到邻近局地、西北通道和西南通道这三方面的污染输送。在污染日时段, 两地受西南通道城市污染贡献分别上升 9.65% 和 15.02%。北京 PM_{2.5} 污染浓度贡献最大的是移动源(38.7%)和扬尘源(27.8%), 二次离子受区域输入影响较为明显, 唐山则为移动源和工业源, 一次颗粒物和 SO_4^{2-} 的本地贡献十分显著。相比于 2013 年, 两地受冶金和燃煤的硫氧化物的污染影响显著改善, 而以氮氧化物排放为主移动源以及部分工业源的污染问题日益突出。

(3) 比对分析 2013 与 2018 年同期排放因素与气象因素对 PM_{2.5} 浓度变化的影响表明, 本地排放变

化和传输气象变化是对 PM_{2.5} 浓度变化影响最大的两个部分, 均占到了 35% 左右。而对于二次粒子, 气象传输的影响超过了 50%, 2013 年较高的相对湿度(两地均超过 60%)是导致这一影响的主要因素之一。

参考文献:

- [1] Leoni C, Pokorný P, Hovorka J, *et al.* Source apportionment of aerosol particles at a European air pollution hot spot using particle number size distributions and chemical composition [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **234**: 145-154.
- [2] 杨雪玲, 王颖, 李博, 等. 河谷地形气象要素对污染物浓度的影响[J]. *环境科学研究*, 2018, **31**(1): 34-41.
Yang X L, Wang Y, Li B, *et al.* Influence of meteorological elements on pollutant concentration in River Valley Terrain [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2018, **31**(1): 34-41.
- [3] Leng C P, Duan J Y, Xu C, *et al.* Insights into a historic severe haze event in Shanghai: synoptic situation, boundary layer and pollutants [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(14): 9221-9234.
- [4] Zhang Y L, Zhu B, Gao J H, *et al.* The source apportionment of primary PM_{2.5} in an aerosol pollution event over Beijing-Tianjin-Hebei Region using WRF-Chem, China [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2017, **17**(12): 2966-2980.
- [5] 武卫玲, 薛文博, 王燕丽, 等. 《大气污染防治行动计划》实施的环境健康效果评估[J]. *环境科学*, 2019, **40**(7): 2961-2966.
Wu W L, Xue W B, Wang Y L, *et al.* Health benefit evaluation for air pollution prevention and control action plan in China [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(7): 2961-2966.
- [6] Zhang H F, Wang S X, Hao J M, *et al.* Air pollution and control action in Beijing [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2016, **112**: 1519-1527.
- [7] Li M G, Wang L L, Liu J D, *et al.* Exploring the regional pollution characteristics and meteorological formation mechanism of PM_{2.5} in North China during 2013-2017 [J]. *Environment International*, 2020, **134**, doi: 10.1016/j.envint.2019.105283.
- [8] Wang X Q, Wei W, Cheng S Y, *et al.* Characteristics of PM_{2.5} and SNA components and meteorological factors impact on air pollution through 2013-2017 in Beijing, China [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2019, **10**(6): 1976-1984.
- [9] Geng G N, Xiao Q Y, Zheng Y X, *et al.* Impact of China's air pollution prevention and control action plan on PM_{2.5} chemical composition over eastern China [J]. *Science China Earth Sciences*, 2019, **62**(12): 1872-1884.
- [10] Shao P Y, Tian H Z, Sun Y J, *et al.* Characterizing remarkable changes of severe haze events and chemical compositions in multi-size airborne particles (PM₁, PM_{2.5} and PM₁₀) from January 2013 to 2016-2017 winter in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **189**: 133-144.
- [11] Zhao L, Wang L T, Tan J H, *et al.* Changes of chemical composition and source apportionment of PM_{2.5} during 2013-2017 in urban Handan, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2019, **206**: 119-131.
- [12] Wang Y, Li Y, Qiao Z, *et al.* Inter-city air pollutant transport in The Beijing-Tianjin-Hebei urban agglomeration: comparison between the winters of 2012 and 2016 [J]. *Journal of Environmental Management*, 2019, **250**, doi: 10.1016/j.jenvman.2019.109520.

- [13] Cai S Y, Wang Y J, Zhao B, *et al.* The impact of the "Air Pollution Prevention and Control Action Plan" on PM_{2.5} concentrations in Jing-Jin-Ji region during 2012-2020 [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **580**: 197-209.
- [14] Gao J J, Wang K, Wang Y, *et al.* Temporal-spatial characteristics and source apportionment of PM_{2.5} as well as its associated chemical species in the Beijing-Tianjin-Hebei region of China[J]. *Environmental Pollution*, 2018, **233**: 714-724.
- [15] Li W J, Shao L Y, Wang W H, *et al.* Air quality improvement in response to intensified control strategies in Beijing during 2013-2019[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **744**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140776.
- [16] Dong Z X, Wang S X, Xing J, *et al.* Regional transport in Beijing-Tianjin-Hebei region and its changes during 2014-2017: the impacts of meteorology and emission reduction[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **737**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.139792.
- [17] Zhou Y, Cheng S Y, Liu L B, *et al.* A coupled MM5-CMAQ modeling system for assessing effects of restriction measures on PM₁₀ pollution in Olympic city of Beijing, China[J]. *Journal of Environmental Informatics*, 2012, **19**(2): 120-127.
- [18] Multi-resolution emission inventory for China[EB/OL]. <http://www.meicmodel.org/>, 2020-11-25.
- [19] Environmental Protection Agency. Guidance on the use of models and other analyses for demonstrating attainment of air quality goals for ozone, PM_{2.5}, and regional haze [R]. Research Triangle Park, NC: Office of Air Quality Planning and Standards, 2007.
- [20] Li X, Zhang Q, Zhang Y, *et al.* Attribution of PM_{2.5} exposure in Beijing-Tianjin-Hebei region to emissions: implication to control strategies[J]. *Science Bulletin*, 2017, **62**(13): 957-964.
- [21] 李欢, 唐贵谦, 张军科, 等. 2017~2018年北京大气PM_{2.5}中水溶性无机离子特征[J]. *环境科学*, 2020, **41**(10): 4364-4373.
- Li H, Tang G Q, Zhang J K, *et al.* Characteristics of water-soluble inorganic ions in PM_{2.5} in Beijing during 2017-2018[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(10): 4364-4373.
- [22] 张浩杰, 高健, 孙孝敏, 等. 唐山市2017年采暖期不同污染等级PM_{2.5}化学组分特征对比与来源分析[J]. *环境科学研究*, 2019, **32**(5): 776-786.
- Zhang H J, Gao J, Sun X M, *et al.* Comparison and analysis of PM_{2.5} chemical composition characteristics and source of different grade pollution in Tangshan city during 2017 heating period[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2019, **32**(5): 776-786.
- [23] 国家发展和改革委员会, 工业和信息化部, 财政部, 等. 关于印发《重点地区煤炭消费减量替代管理暂行办法》的通知[Z]. 2014.
- [24] 环境保护部, 北京市人民政府, 天津市人民政府, 等. 关于印发《京津冀大气污染防治强化措施(2016-2017年)》的通知[Z]. 2016.
- [25] 国家发展改革委, 环境保护部, 国家能源局. 《煤电节能减排升级与改造行动计划(2014-2020年)》的通知[Z]. 2014.
- [26] 科技与国际合作处. 联合国环境规划署发布《北京二十年大气污染治理历程与展望》评估报告[R]. 北京: 科技与国际合作处, 2019.
- [27] 李颜君, 安兴琴, 范广洲. 北京地区大气颗粒物输送路径及潜在源分析[J]. *中国环境科学*, 2019, **39**(3): 915-927.
- Li Y J, An X Q, Fan G Z. Transport pathway and potential source area of atmospheric particulates in Beijing[J]. *China Environmental Science*, 2019, **39**(3): 915-927.
- [28] Zhang H Y, Cheng S Y, Wang X Q, *et al.* Continuous monitoring, compositions analysis and the implication of regional transport for submicron and fine aerosols in Beijing, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **195**: 30-45.
- [29] 王郭臣, 王东启, 陈振楼. 北京冬季严重污染过程的PM_{2.5}污染特征和输送路径及潜在源区[J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(7): 1931-1937.
- Wang G C, Wang D Q, Chen Z L. Characteristics and transportation pathways and potential sources of a severe PM_{2.5} episodes during winter in Beijing [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(7): 1931-1937.
- [30] Zhang Y P, Li X, Nie T, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} pollution in the central six districts of Beijing, China[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2018, **174**: 661-669.
- [31] 薛文博, 付飞, 王金南, 等. 中国PM_{2.5}跨区域传输特征数值模拟研究[J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(6): 1361-1368.
- Xue W B, Fu F, Wang J N, *et al.* Numerical study on the characteristics of regional transport of PM_{2.5} in China[J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(6): 1361-1368.
- [32] Chang X, Wang S X, Zhao B, *et al.* Contributions of inter-city and regional transport to PM_{2.5} concentrations in the Beijing-Tianjin-Hebei region and its implications on regional joint air pollution control[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **660**: 1191-1200.
- [33] 王燕丽, 薛文博, 雷宇, 等. 京津冀区域PM_{2.5}污染相互输送特征[J]. *环境科学*, 2017, **38**(12): 4897-4904.
- Wang Y L, Xue W B, Lei Y, *et al.* Regional transport matrix study of PM_{2.5} in Jingjinji Region, 2015 [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(12): 4897-4904.
- [34] 张晗宇, 郎建奎, 温维, 等. 唐山PM_{2.5}污染特征及区域传输的贡献[J]. *北京工业大学学报*, 2017, **43**(8): 1252-1262.
- Zhang H Y, Lang J L, Wen W, *et al.* Pollution characteristics and regional transmission of PM_{2.5} in Tangshan[J]. *Journal of Beijing University of Technology*, 2017, **43**(8): 1252-1262.
- [35] 吴育杰. 基于WRF-CMAQ/ISAM模型的京津冀及周边地区PM_{2.5}来源解析研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2019.
- Wu Y J. Source apportionment of PM_{2.5} over the Beijing-Tianjin-Hebei and surrounding areas based the WRF-CMAQ/ISAM model [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2019.
- [36] 彭帆. 唐山市PM_{2.5}来源解析研究[D]. 北京: 北京工业大学, 2016.
- [37] Jia J, Cheng S Y, Yao S, *et al.* Emission characteristics and chemical components of size-segregated particulate matter in iron and steel industry[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **182**: 115-127.
- [38] Wen W, Ma X, Tang Y X, *et al.* The impacts of meteorology on source contributions of air pollution in winter in Beijing, 2015-2017 changes[J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2020, **11**(11): 1953-1962.
- [39] Yu S Y, Liu W J, Xu Y S, *et al.* Characteristics and oxidative potential of atmospheric PM_{2.5} in Beijing: source apportionment and seasonal variation[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **650**: 277-287.
- [40] 张浩杰. 唐山市PM_{2.5}污染特征与来源解析[D]. 济南: 山东大学, 2019.
- Zhang H J. Characteristics and source apportionment of PM_{2.5} pollution in Tangshan[D]. Jinan: Shandong University, 2019.
- [41] Chen D, Liu Z Q, Fast J, *et al.* Simulations of sulfate-nitrate-ammonium (SNA) aerosols during the extreme haze events over northern China in October 2014[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(16): 10707-10724.

CONTENTS

Spatiotemporal Distribution and Health Impacts of PM _{2.5} and O ₃ in Beijing, from 2014 to 2020	CHEN Jing, PENG Jin-long, XU Yan-sen (4071)
High-resolution Estimation of Spatio-temporal Variation in PM _{2.5} Concentrations in the Beijing-Tianjin-Hebei Region	YANG Xiao-hui, SONG Chun-jie, FAN Li-hang, <i>et al.</i> (4083)
Impacts of Anthropogenic Emission Reduction and Meteorological Conditions on PM _{2.5} Pollution in Typical Cities of Beijing-Tianjin-Hebei in Winter	SHAO Xuan-yi, WANG Xiao-qi, ZHONG Yi-sheng, <i>et al.</i> (4095)
Influence of Pollutant Transport from Both Sides of the Taihang Mountains on Cross-Valley Urban Aerosols	WANG Yan, GUO Wei, YAN Shi-ming, <i>et al.</i> (4104)
Variation Characteristics and Source Analysis of Carbonaceous Aerosols in Winter in Jiashan	ZHANG Ying-long, LI Li, WU Wei-chao, <i>et al.</i> (4116)
Simulation Analysis of the Impact of COVID-19 Pandemic Control on Air Quality in Henan Province based on Machine Learning Algorithm	WEI Yu, XU Qi-xiang, ZHAO Jin-shuai, <i>et al.</i> (4126)
Seasonal Variation, Source Identification, and Health Risk of PM _{2.5} -bound Metals in Xinxiang	LIU Huan-jia, JIA Meng-ke, LIU Yong-li, <i>et al.</i> (4140)
Distribution Characteristics and Seasonal Variations of Arsenic in Atmospheric Aerosols over the Yellow Sea and Bohai Sea	YUAN Shuai, WANG Yan, LIU Ru-hai, <i>et al.</i> (4151)
Extinction Characteristics of Aerosols and the Contribution of Pollution Sources to Light Extinction During Three Heavy Pollution Episodes in the Winter of 2020 in Tianjin	LI Li-wei, XIAO Zhi-mei, YANG Ning, <i>et al.</i> (4158)
Spatial Variation of Surface Ozone Concentration During the Warm Season and Its Meteorological Driving Factors in China	HE Chao, MU Hang, YANG Lu, <i>et al.</i> (4168)
Exploring Characteristics and Causes of Summer Ozone Pollution Based on Process Analysis in Wuhai	ZHANG Rui-xin, CHEN Qiang, XIA Jia-qi, <i>et al.</i> (4180)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Atmospheric VOCs in the Coastal Background of the Pearl River Delta	YUN Long, LI Cheng-liu, ZHANG Ming-di, <i>et al.</i> (4191)
Hydrochemical Characteristics and Factors of Surface Water and Groundwater in the Upper Yongding River Basin	KONG Xiao-le, YANG Yong-hui, CAO Bo, <i>et al.</i> (4202)
Temporal and Spatial Variations in Water Quality of Hanjiang River and Its Influencing Factors in Recent Years	CHENG Bing-fen, ZHANG Yuan, XIA Rui, <i>et al.</i> (4211)
Pollution Level, Distribution Characteristic, and Ecological Risk Assessment of Environmentally Persistent Pharmaceutical Pollutants in Surface Water of Jiangsu Province	ZHAO Mei-mei, FAN De-ling, GU Wen, <i>et al.</i> (4222)
Spatial and Temporal Distribution and Pollution Evaluation of Soluble Heavy Metals in Liujiang River Basin	ZHANG Wan-jun, XIN Cun-lin, YU Shi, <i>et al.</i> (4234)
Source Analysis and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Groundwater of Leizhou Peninsula	SHI Huan-huan, PAN Yu-jie, ZENG Min, <i>et al.</i> (4246)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Metal Elements in Groundwater of Longzici Spring Area	XIE Hao, LIANG Yong-ping, LI Jun, <i>et al.</i> (4257)
Seasonal Variation and Sources Identification of Dissolved Sulfate in a Typical Karst Subterranean Stream Basin Using Sulfur and Oxygen Isotopes	REN Kun, PAN Xiao-dong, LAN Gan-jiang, <i>et al.</i> (4267)
Phosphorus Fractions and Quantitative Identification of Pollution Sources in Nanhai Wetland, Baotou	BAI Ya-hong, QIAN Chen-ge, YUAN Si-jing, <i>et al.</i> (4275)
Release Risk of Phosphorus by Sediments and Its Influencing Factors in Ponds and Ditches of a New Urban District Park	LI Ru-zhong, SONG Min, YANG Ji-wei (4287)
Effect of Hydraulic Residence Time on Removal Efficiency of Pollutants in Subsurface Flow Constructed Wetlands and Analysis of Denitrification Mechanism	QI Ran, ZHANG Ling, YANG Fan, <i>et al.</i> (4296)
Enhanced Removal of Pollutants in Constructed Wetlands with Manganese Sands	MA Quan, WANG Dong-lin, LIN Hui, <i>et al.</i> (4304)
Application Effect of Four Typical Submerged Macrophytes on Removing Cadmium from Polluted Sediment	TAO Li, WANG Pei-fang, YUAN Qiu-sheng, <i>et al.</i> (4311)
Structure of Aerobic Denitrification Bacterial Community in Response to Dissolved Organic Matter in Baiyangdian Lake During the Water Delivery Period	ZHOU Shi-lei, ZHANG Tian-na, CHEN Zhao-ying, <i>et al.</i> (4319)
Nitrogen and Phosphorus Leaching Characteristics and Adsorption Properties of Hardwood Biochar in Stormwater Runoff	MENG Yi-ke, WANG Yuan, WANG Chuan-yue (4332)
Indicator Function of Ragworm (<i>Nereididae</i>) on Sediment Microplastic in Haizhou Bay Intertidal Zone	WANG Jia-xuan, SONG Ke-xin, SUN Yi-xin, <i>et al.</i> (4341)
Antagonistic Effect and Mechanism of Nano Titanium Dioxide and Cadmium on the Growth of <i>Scenedesmus obliquus</i>	WANG Pu, ZHAO Li-hong, ZHU Xiao-shan (4350)
Mutual Influence Between Microbial Community, Wastewater Characteristics, and Antibiotic Resistance Genes During Spiramycin Production Wastewater Treatment	WU Cai-yun, LI Hui-li, QIN Cai-xia, <i>et al.</i> (4358)
Effect of Chelated Iron on Nitrogen Removal Efficiency and Microbial Community Structure in the Anaerobic Ferric Ammonium Oxidation	LIAO Hong-yan, SONG Cheng, WAN Liu-yang, <i>et al.</i> (4366)
Effects of Dissolved Oxygen on Nutrient Removal Performance and Microbial Community in Low Carbon/Nitrogen Municipal Wastewater Treatment Process	CHI Yu-lei, SHI Xuan, REN Tong, <i>et al.</i> (4374)
Shortening SRT of Intermittent Gradient Aeration to Realize Nitrogen and Phosphorus Removal in Short-range SNEDPR System	ZHANG Yu-jun, LI Dong, WANG Xin-xin, <i>et al.</i> (4383)
Characteristics of Partial Denitrification in Biofilm System	YU Li-fang, ZHANG Xing-xiu, ZHANG Qiong, <i>et al.</i> (4390)
Effect of Anaerobic Plug-flow on Nitrification Denitrifying Phosphorus Removal Aerobic Granular Sludge with Intermittent Aeration	LI Dong, CAO Si-yu, WANG Qi, <i>et al.</i> (4399)
Combining Different Aerobic/Anoxic Durations with Zoned Sludge Discharge to Optimize Short-cut Nitrification Denitrifying Phosphorus Removal Granules in Domestic Sewage	WANG Wen-qi, LI Dong, GAO Xin, <i>et al.</i> (4406)
Meta-analysis of the Effects of Metal Mining on Soil Heavy Metal Concentrations in Southwest China	ZHANG Jian-lin, QU Ming-kai, CHEN Jian, <i>et al.</i> (4414)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Soil Heavy Metals in Typical Watersheds of the Qinghai-Tibet Plateau	DU Hao-lin, WANG Ying, WANG Jin-song, <i>et al.</i> (4422)
Spatial Distribution Characteristics and Risk Assessment of Cadmium Pollution in Soil-crops system of an E-waste Dismantling Area	ZHANG Lu-yao, ZHAO Ke-li, FU Wei-jun (4432)
Characteristics of Modified Biochars and Their Immobilization Effect on Cu and Cd in Polluted Farmland Soil Around Smelter	WANG Xin-yu, MENG Hai-bo, SHEN Yu-jun, <i>et al.</i> (4441)
Combined Effects of Soil Amendment and Zinc Fertilizer on Accumulation and Transportation of Cadmium in Soil-Rice System	ZHOU Kun-hua, ZHOU Hang, WANG Zi-yu, <i>et al.</i> (4452)
Effects of Different Soil Conditioners on Rice Growth and Heavy Metal Uptake in Soil Contaminated with Copper and Cadmium	WEI Wei, LI Ping, LANG Man (4462)
Isolation and Identification of the Plant Endophyte R-13 and Its Effect on Cadmium Accumulation in <i>Solanum nigrum</i> L.	PANG Jie, LIU Yue-min, HUANG Yong-chun, <i>et al.</i> (4471)
Response of Soil Archaeal Community to Heavy Metal Pollution in Different Typical Regions	LI Yu-tong, YANG Shan, ZHANG Yi, <i>et al.</i> (4481)
High-throughput Sequencing Analysis of Soil Bacterial Community in the Grain for Green Project Areas of the Loess Plateau	LIU Xiao-hua, WEI Tian-xing (4489)
Experimental Influence of Food Waste Fermentation Broth on the Soil Quality in a Loess Hilly Area	SHAO Li-ming, REN Jun-da, LÜ Fan, <i>et al.</i> (4500)
Stability of Soil Aggregates at Different Altitudes in Qinling Mountains and Its Coupling Relationship with Soil Enzyme Activities	MA Huan-fei, HU Han, LI Yi, <i>et al.</i> (4510)
Reactivation of Passivated Biochar/Nanoscale Zero-Valent Iron by an Electroactive Microorganism for Cooperative Hexavalent Chromium Removal and Mechanisms	LIAO Cong-jian, ZHAO Xiao-lei, LIU Kai, <i>et al.</i> (4520)
Influence of Precipitation Change on Soil Respiration in Desert Grassland	HAO Lian-yi, ZHANG Li-hua, XIE Zhong-kui, <i>et al.</i> (4527)
Effects of Nitrogen Fertilizer Application Times and Nitrification Inhibitor on N ₂ O Emission from Potted Maize	FU Pei-jiao, JI Heng-kuan, HE Qiu-xiang, <i>et al.</i> (4538)
Gaseous Nitrogen Emission from Soil After Application of NH ₄ ⁺ -N Loaded Biochar	MA Xiao-gang, HE Jian-qiao, CHEN Yu-lan, <i>et al.</i> (4548)
Effects of Microplastics Addition on Soil Organic Carbon Mineralization in Citrus Orchard	ZHANG Xiu-ling, YAN Zi-wei, WANG Feng, <i>et al.</i> (4558)
Dynamic Material Flow Analysis of Perfluorooctane Sulfonate in China; 1985-2019	WANG Jia-yu, CHEN Jing-wen, TANG Wei-hao, <i>et al.</i> (4566)