

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征

陈其永, 郜允兵, 倪润祥, 潘瑜春, 阎跃观, 杨晶, 刘孝阳, 顾晓鹤



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年9月

第43卷 第9期
Vol.43 No.9

目次

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征	陈其永, 郇允兵, 倪润祥, 潘瑜春, 阎跃观, 杨晶, 刘孝阳, 顾晓鹤(4413)
面向二/三维城市形态指标的PM _{2.5} 浓度调控模拟	李莎, 邹滨, 刘宁, 冯徽徽, 陈军, 张鸿辉(4425)
减排背景下成都大气PM _{2.5} 碳质组分特征	陈璐瑶, 于阳春, 黄小娟, 董贵明, 张军科(4438)
青岛秋冬季PM ₁ 中金属元素污染特征及健康风险评估	刘子杨, 张宜升, 张厚勇, 马子轸, 陶文鑫, 王娇, 薛莲, 彭倩倩, 杜金花, 赵娇娇, 彭亮, 孙英杰(4448)
港口地区大气PM _{2.5} 中多环芳烃污染特征及来源分析	王鹏程, 杨凌霄, 别淑君, 黄琦, 齐安安, 虞雄, 王滢铭, 徐鹏, 张天琪, 王文兴(4458)
天津市冬季道路颗粒物粒径分布及来源解析	张国涛, 殷宝辉, 白雯宇, 郭丽瑶, 王智宇, 张楠, 郑镇森, 张利文, 杨文, 韩斌, 白志鹏(4467)
北京市生物源一次气溶胶浓度变化特征及影响因素	梁林林, 刘畅, 刘旭艳, 徐婉筠, 张根, 程红兵, 刘雨思(4475)
北京市城区夏季VOCs变化特征分析与来源解析	孟祥来, 孙扬, 廖婷婷, 张琛, 张成影(4484)
东莞工业集中区夏季臭氧污染与非污染期间VOCs组分特征及其来源	周振, 肖林海, 费蕾蕾, 余纬, 林满, 黄筠筠, 张智胜, 陶俊(4497)
生活垃圾填埋场恶臭污染的时空变化与膜阻隔效果	何品晶, 李健晨, 吕凡, 章骅, 邵立明(4506)
不同年份太湖水域全氟化合物健康风险源解析对比	武婷, 孙善伟, 樊境朴, 鲁富蕾, 郭昌胜, 徐建(4513)
沱江流域典型及新兴全氟/多氟化合物的污染特征及来源解析	宋娇娇, 汪艺梅, 孙静, 方淑红(4522)
白洋淀不同类型水体表层沉积物重金属的赋存形态及风险	许梦雅, 张超, 单保庆, 刘操(4532)
喹诺酮类抗生素在城市典型水环境中的分配系数及其主要环境影响因子	剧泽佳, 付雨, 赵鑫宇, 陈慧, 宋圆梦, 赵波, 张纪媛, 卢梦洪, 崔建升, 张璐璐(4543)
石家庄地下水中喹诺酮类抗生素生态风险及其与环境因子的相关性	陈慧, 剧泽佳, 赵鑫宇, 付雨, 崔建升, 张璐璐(4556)
不同淹水环境下湖泊沉积物DOM的特征与来源	陈佳, 李忠武, 金昌盛, 文佳骏, 聂小东, 王磊(4566)
晋城市沁河流域秋季浮游植物群落结构特征及其与环境因子的关系	高梦蝶, 李艳粉, 李艳利, 孙昂, 田爽, 张春晖, 耿亚平, 李林霞(4576)
不同配置绿色屋顶径流水质特征及综合评价	章孙逊, 张守红, 闫婧, 王任重远, 杨航(4587)
紫外光化过硫酸盐降解磷酸氯喹	李阳, 许玻琨, 邓琳, 罗伟(4597)
微气泡臭氧氧化预处理实际制药废水去除SS和有机性能	刘春, 陈蕊, 张静, 杨旭, 陈晓轩, 郭延凯, 武明泽, 庞勃(4608)
废水排放对近海环境中抗生素抗性基因和微生物群落的影响	陈嘉瑜, 苏志国, 姚鹏城, 黄备, 张永明, 温东辉(4616)
生物炭和秸秆还田对微咸水滴灌棉田土壤真菌群落结构多样性的影响	郭晓雯, 陈静, 鲁晓宇, 李远, 陶一凡, 闵伟(4625)
有机物料投入对喀斯特地区土壤磷素赋存形态与含 $phoD$ 基因细菌群落的影响	夏鑫, 乔航, 孙琪, 刘坤平, 陈香碧, 何寻阳, 胡亚军, 苏以荣(4636)
煤矿矿区复垦植被类型对土壤微生物功能基因和酶活的影响	宁岳伟, 刘勇, 张红, 李君剑(4647)
生物炭施用对黄壤土壤养分及酶活性的影响	袁访, 李开钰, 杨慧, 邓承佳, 梁红, 宋理洪(4655)
黄河源区斑块化退化高寒草甸土壤细菌群落多样性变化	孙华方, 李希来, 金立群, 赵玉蓉, 李成一, 张静, 宋梓涵, 苏晓雪, 刘凯(4662)
模拟氮沉降对三江平原小叶章湿地土壤微生物碳源利用能力的影响	翁晓虹, 隋心, 李梦莎, 刘赢男, 张荣涛, 杨立宾(4674)
石家庄市土壤中喹诺酮类抗生素空间分布特征及其与微生物群落相关性	赵鑫宇, 剧泽佳, 陈慧, 付雨, 宋圆梦, 赵波, 张纪媛, 卢梦洪, 崔建升, 张璐璐(4684)
典型氧化还原环境中微塑料表面的微生物群落组成特征与构建机制	龚志伟, 马杰, 苏趋, 林亚楠, 董鑫磊, 周立昌, 王宗平, 郭刚(4697)
作物秸秆材料处理养殖废水中氮的周年去除效果及其对氮循环微生物丰度的影响	刘铭羽, 夏梦华, 蒋磊, 彭健, 陈坤, 赵聪芳, 李希, 孟岑, 曾睿, 王栋, 李裕元, 吴金水(4706)
不同外碳源对尾水极限脱氮性能及微生物群落结构的影响	王伟, 赵中原, 张鑫, 由志鹏, 黄子晋, 彭永臻(4717)
总氮提标改造工程的微生物群落结构分析	李海松, 王柯丹, 陈晓蕾, 阎登科, 许子聪, 胡培基(4727)
IFAS工艺处理南方低碳源污水的泥膜微生物互作规律分析	赫俊国, 江伟勋, 何卓义, 刘新平, 吴世华, 储昭瑞, 冯杰(4736)
黄土高原土地利用方式对微塑料丰度和形态分布的影响	郝永丽, 胡亚鲜, 白晓雄, 郭胜利(4748)
南方丘陵区土壤重金属含量、来源及潜在生态风险评价	王玉, 辛存林, 于爽, 薛红蕾, 曾鹏, 孙平安, 刘凡(4756)
兰州市耕地“五毒”重金属的风险评价与归因分析	张利瑞, 彭鑫波, 马延龙, 康乐, 张妍娥, 王泉灵, 张松林(4767)
石家庄市栾城区农田土壤重金属分布特征及作物风险评价	孟晓飞, 郭俊梅, 杨俊兴, 郑国砥, 陈同斌, 刘杰(4779)
典型城市土壤中重金属锑(Sb)的含量分布特征及风险评价	沈城, 叶文娟, 钱诗颖, 吴健, 朱旭东, 王敏(4791)
有色金属矿业城市典型村镇土壤重金属污染评价及来源解析	汪峰, 黄言欢, 李如忠, 吴鸿飞(4800)
柠檬酸及刈割强化象草修复镉污染土壤的效应	唐棋, 伍港繁, 辜娇峰, 周航, 曾鹏, 廖柏寒(4810)
稻田干湿过程甲基化效率变化与关键影响因素分析	张玥, 李令仪, 文炯, 曾希柏, 苏世鸣(4820)
外源茉莉酸对水稻幼苗根系砷积累及抗逆应答效应	李颜, 黄益宗, 保琼莉, 黄永春, 张盛楠(4831)
秸秆还田配施化肥对土壤养分及冬小麦产量的影响	宋佳杰, 徐郁阳, 白金泽, 于琦, 程伯豪, 冯永忠, 任广鑫(4839)
冬季绿肥对黄土高原旱作春玉米农田土壤温室气体排放的影响	张少宏, 王俊, 方震文, 付鑫(4848)
庞泉沟自然保护区土壤呼吸空间分异性影响因素探测	李晓敏, 严俊霞, 杜自强, 王琰(4858)
小型养殖塘水体中CH ₄ 、CO ₂ 和N ₂ O浓度的时空变化特征及影响因素	石婕, 张弥, 邱吉丽, 万梓文, 赵若男, 谢燕红, 陈明健, 赵佳玉, 肖薇, 刘寿东(4867)
丁基黄药对选矿区土壤吸附铅镉的影响	胡志浩, 郭朝晖, 冉洪珍, 肖细元, 彭驰, 李钰滢(4878)
秸秆生物炭吸附对乙酰氨基酚的机制及其位能分布特征	商岑尧, 顾若婷, 张强, 谢慧芳, 王冰玉(4888)
黄土高原地区生态脆弱性时空变化及其驱动因子分析	张良侠, 樊江文, 张海燕, 周德成(4902)
植物促生菌在重金属生物修复中的作用机制及应用	马莹, 王玥, 石孝均, 陈新平, 李振轮(4911)
《环境科学》征订启事(4512)	《环境科学》征稿简则(4735)
信息(4696, 4790, 4887)	

北京市生物源一次气溶胶数浓度变化特征及影响因素

梁林林¹, 刘畅¹, 刘旭艳^{2,3}, 徐婉筠¹, 张根¹, 程红兵¹, 刘雨思¹

(1. 中国气象科学研究院大气化学重点开放实验室和灾害天气国家重点实验室, 北京 100081; 2. 国家卫星气象中心, 北京 100081; 3. 国家环境保护大气复合污染来源与控制重点实验室, 北京 100084)

摘要: 生物源一次气溶胶(PBAP), 是大气颗粒物的重要组成部分, 不论微生物死活, 对空气质量和人类健康均会产生影响, 同时对大气化学以及气候变化都有重要影响。基于流式细胞仪分析技术, 结合碘化丙啶(PI)和SYBR(SYBR Green 1)双荧光探针, 对北京城区大气环境中死的和活的PBAP进行了识别和定量分析, 并探究气象因子和空气污染因子对其影响。结果发现, 北京城区死的和活的PBAP数浓度中值夏季(1.03×10^6 个 $\cdot$ m $^{-3}$ 和 7.43×10^5 个 $\cdot$ m $^{-3}$)高于冬季(7.34×10^5 个 $\cdot$ m $^{-3}$ 和 6.18×10^5 个 $\cdot$ m $^{-3}$), 且两者呈现明显的同步变化趋势。统计学结果分析发现, PBAP数浓度与气象条件和空气质量等环境影响因子相关性并不显著, 与温度和湿度呈现弱正相关关系, 与O₃、最大风速和日照时数呈现弱负相关关系。PBAP数浓度与细颗粒物PM_{2.5}浓度相关性较弱, 与粗颗粒物(PM_{2.5-10})浓度呈现明显的正相关关系。静稳天气和沙尘长距离传输都可以提升北京城区PBAP的数浓度水平。

关键词: 生物源一次气溶胶; 流式细胞仪; 荧光; 分子探针; 数浓度

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)09-4475-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202110194

Characteristics and Impact Factors of Number Concentration of Primary Biological Aerosol Particles in Beijing

LIANG Lin-lin¹, LIU Chang¹, LIU Xu-yan^{2,3}, XU Wan-yun¹, ZHANG Gen¹, CHENG Hong-bing¹, LIU Yu-si¹

(1. Key Laboratory for Atmospheric Chemistry & State Key Laboratory of Severe Weather, Chinese Academy of Meteorological Sciences, China Meteorological Administration, Beijing 100081, China; 2. National Satellite Meteorological Center, China Meteorological Administration, Beijing 100081, China; 3. State Environmental Protection Key Laboratory of Sources and Control of Air Pollution Complex, Beijing 100084, China)

Abstract: Primary biological aerosol particles (PBAP) are an important part of ambient aerosols. Both living and dead organisms not only influence human health and air quality but also play important roles in regulating certain atmospheric processes and affect the hydrological cycle and climate change. In this study, flow cytometry (FCM) was utilized in combination with the simultaneous use of permeant (SYBR Green I) and impermeant (propidium iodide, PI) nucleic acid fluorescent staining to detect and quantify the viable and dead airborne biological particles. At the same time, based on this method, the dead/viable PBAP in a Beijing urban area was detected and quantified. Moreover, the influence of environmental factors on the concentrations of primary biological aerosol particles was illuminated. The results showed that the media number concentration of dead and alive PBAP in the Beijing urban area during summer (1.03×10^6 m $^{-3}$ and 7.43×10^5 m $^{-3}$, respectively) were higher than those during winter (7.34×10^5 m $^{-3}$ and 6.18×10^5 m $^{-3}$, respectively). Statistical analysis showed that there was no significant correlation between PBAP number concentration and environmental factors, i. e., meteorological conditions and air quality, showing a weak positive correlation with temperature and humidity and weak negative correlations with O₃, maximum wind speed, and sunshine duration. The number concentration of PBAP was weakly correlated with the mass concentration of PM_{2.5} but positively correlated with that of coarse particulate matter (PM_{2.5-10}). Both stable weather and dust transport could increase the number concentration of PBAP in Beijing.

Key words: primary biological aerosol particle(PBAP); flow cytometry; fluorescence; molecular probes; number concentration

地球上的所有生命体及其生命活动都会主动或被动向大气圈释放气溶胶, 其中从生物源直接以颗粒物的形式排放到大气中的气溶胶, 如真菌、细菌、花粉、病毒和动植物碎屑等, 称为生物源一次气溶胶(primary biological aerosol particle, PBAP)。PBAP不仅包含可培养的生物学气溶胶(culturable bioaerosol), 以菌落总数(colony forming units, CFU)表示, 如细菌和真菌等可以在培养基生长的微生物, 还包括了“死的生物学气溶胶(dead bioaerosol)”, 如动、植物碎片和昆虫排泄物等^[1,2]。国外研究估算大气中粒径大于0.2 μm的气溶胶中PBAP占比高达25%, 同时提出过去几十年的研究可能严重低估了PBAP在大气颗粒物中的比例和重要性^[3~5]。近年来, 国内外科学家们越来越意识到大气环境中

PBAP的重要性, 叠加新冠肺炎疫情蔓延, 该研究领域俨然成为目前大气科学领域最活跃的研究热点和前沿之一^[2,6]。

PBAP传统的定量方法以菌落培养法为主。该方法依赖于微生物的可培养性, 具有很大的局限性: 仅部分微生物能够在采样培养基上生长, 并且操作复杂和培养时间长。此外, 该方法不适用于死亡微生物的相关研究, 但是已有研究证明死亡微生物的细胞组分仍能导致过敏或中毒, 具有重要的生物学及

收稿日期: 2021-10-26; 修订日期: 2022-01-13

基金项目: 北京市自然科学基金项目(8192055); 国家环境保护大气复合污染来源与控制重点实验室开放基金项目(SCAPC202001)

作者简介: 梁林林(1982~), 女, 博士, 副研究员, 主要研究方向为大气气溶胶, E-mail: lianglinlin@cma.gov.cn

健康意义. 流式细胞术 (flow cytometry, FCM) 常用于医学、生物和水体等液体样品中悬浮生物粒子的计数测定^[7~10], 但很少用于大气颗粒物的分析. FCM 通过逐个检测悬液中单细胞或其他生物粒子标记的荧光信号大小, 快速地进行定性、定量分析细胞或生物颗粒. 将 FCM 和荧光探针结合, 可以对大气中不同种类的 PBAP 进行快速识别和定量测定^[11~15], 并且统计学数据分析发现 FCM 的测试结果更精确可靠^[16]. 本研究基于 FCM 分析技术, 结合碘化丙啶 (propidium iodide, PI) 和 SYBR (SYBR Green I) 双荧光探针, 对北京城区大气环境中死的和活的 PBAP 进行识别和定量分析, 并进一步探究气象因子和空气污染因子对其影响.

1 材料与方法

1.1 液体 PBAP 样品采集

本研究采用旋涡式液体撞击式生物气溶胶采样系统 (BioSampler, SKC Inc., USA), 分别选取夏季 (7 月) 及冬季 (1 月) 典型的月份, 在中国气象科学研究院 14 层楼顶采样点进行液体生物气溶胶的采集. 将液体冲击瓶中加入 20 mL 121℃ 高压灭菌后的高纯水, 调节流速为 $12.5 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$, 连续采集 2 h (09:00 ~ 11:00), 每个样品的采样体积在 1.5 m^3 左右. 采样频率为 $1 \text{ 次} \cdot \text{d}^{-1}$, 最终获得有效生物气溶胶样品 48 个, 包含夏季 29 个及冬季样品 19 个. 将采集的液体样品加入甲醛溶液 (质量分数 1.85%) 以抑制微生物的代谢. 所有采集的液体样品均置于 -20°C 保存, 直到分析测试结束.

1.2 荧光分子探针及 FCM 测试分析

采用 SYBR Green I (Sigma Chemical Co.) 和碘化丙啶 (PI, Sigma Chemical Co.) 双核酸染料分子探针进行染色. SYBR Green I 可以穿透 PBAP 完整的细胞膜, 而 PI 只能穿透死亡 PBAP 结构受损的细胞膜. 当用 488 nm 激光激发时, SYBR Green I 和 PI 与核酸物质结合, 分别产生绿色 (最大波长为 521 nm) 和红色 (最大波长为 617 nm) 的荧光, 把活的和死的 PBAP 区分开来, 进行分别定量分析. SYBR Green I 试剂 (Sigma-Aldrich Co., 1:10 000, 体积比) 用超纯水稀释 1:100 (体积比) 储备溶液并储存在 -20°C . PI 溶液 ($1 \text{ mg} \cdot \text{mL}^{-1}$) 用超纯水稀释为 $1 \text{ mmol} \cdot \text{L}^{-1}$, 4°C 保存. 取 1 mL 采集的 PBAP 液体样品, 经过 $40 \mu\text{m}$ 的绢质滤膜过滤后分别加入 $10 \mu\text{L}$ SYBR 和 $10 \mu\text{L}$ PI 荧光染色剂, 摇匀在室温下避光染色适当时间. 每个样品设置一个空白对照, 使用移液枪分别吸取荧光染色后的样品和空白对照样品各 $200 \mu\text{L}$ 进行流式细胞仪 (美国 Becton Dickinson 公司

LSRFortessa 型) 测试分析, 以 $1.5 \mu\text{L} \cdot \text{s}^{-1}$ 速度进行分析计数, 每个样品耗时约 2 min. 与传统的菌落培养法相比 (5 ~ 7 d), 极大地缩短了 PBAP 的计数分析时间.

1.3 死的/活的 PBAP 识别和定量

通过对空白对照样品的测试确定荧光强度的基线设置, 设定原则为保证空白对照样品中的荧光颗粒物不超过总颗粒数的 1%. 染色后荧光强度超过基线的颗粒物认为是被荧光染色的 PBAP, 而荧光强度低于基线的颗粒物则认为没有被荧光染色的非生物气溶胶, 如黑炭气溶胶等, 并对两者进行分别计数. 图 1 分别给出了 2019 年 7 月 30 日采集的液体生物气溶胶样品的自然荧光, 及其分别与 SYBR 和 PI 染色的荧光特性. 经过 SYBR 染色之后, FL1 通道收集的荧光信号明显增强 [基线以上活的 PBAP 比例从 0.43% 增加到 3.88%, 图 1(a) 和 1(c)], 而 FL3 通道收集的荧光信号变化不明显 [基线以上死的 PBAP 比例仅从 0.25% 增加到 0.90%, 图 1(b) 和 1(d)]. 相反, 经 PI 染色之后, FL3 通道收集的荧光信号明显增强 [基线以上死的 PBAP 比例从 0.25% 显著增加到 15.4%, 图 1(f)], 而 FL1 通道收集的荧光信号变化不明显 [基线以上活的 PBAP 比例从 0.43% 仅增加到 0.50%, 图 1(e)]. 说明 PI 和 SYBR 可以对死的和活的 PBAP 进行很好地识别和分离. 因此, 本研究将以 SYBR + PI 复染液体 PBAP 样品, FL1 和 FL3 通道分别收集 SYBR 和 PI 荧光信号, 以前向角散射光 FSC-A 信号强度为横坐标, PI 或 SYBR 荧光信号强度为纵坐标, 基线以上为具有荧光效应的颗粒物, 即分别为死的和活的生物源一次颗粒物.

活的 PBAP 颗粒物数 ($N_{\text{活}}$) 和死的 PBAP 颗粒物数 ($N_{\text{死}}$) 的计算方法为:

$$N_{\text{死}} = N_{\text{PI}} - N_{\text{空白}} \quad (1)$$

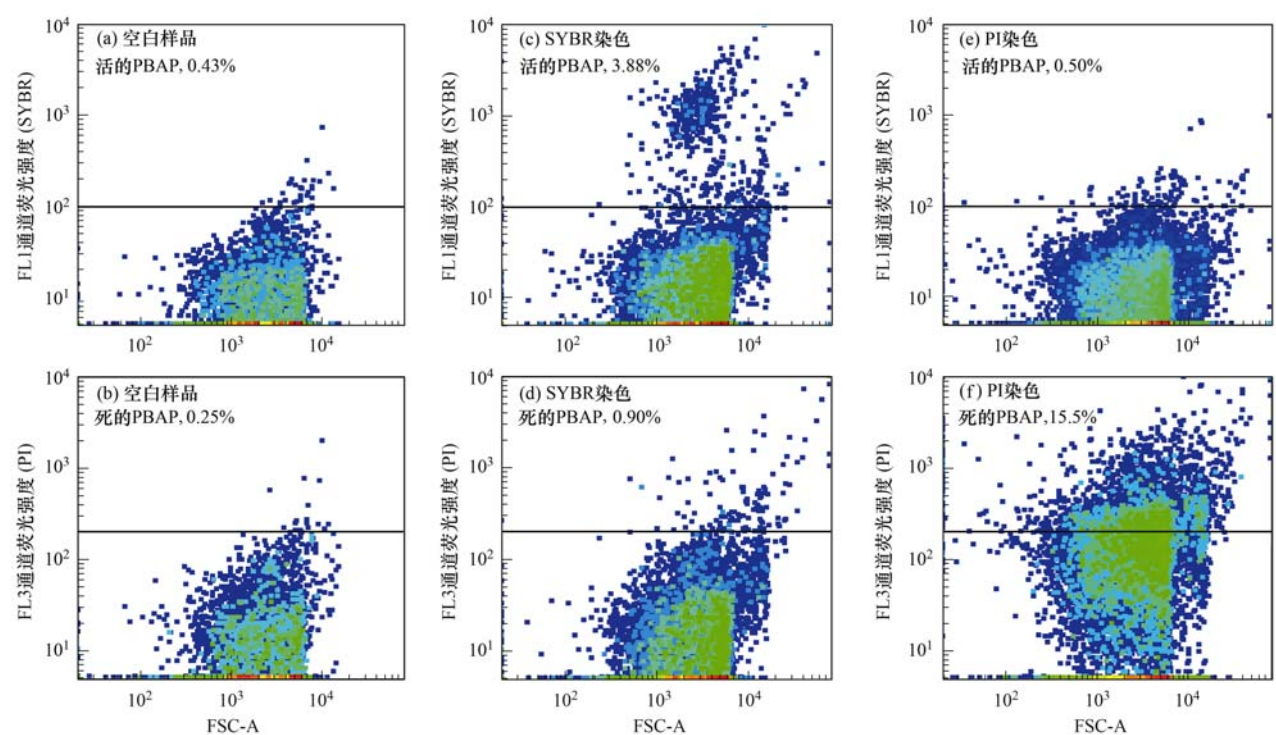
$$N_{\text{活}} = N_{\text{SYBR}} - N_{\text{空白}} \quad (2)$$

式中, $N_{\text{空白}}$ 为空白对照样品基线以上的颗粒物数; N_{SYBR} 和 N_{PI} 分别为 PBAP 样品经过 SYBR + PI 双荧光探针染色后, 基线以上具有 SYBR 或 PI 荧光信号颗粒物数量.

2 结果与讨论

2.1 北京城区 PBAP 数浓度变化特征

观测期间 SYBR + PI 荧光染色-FCM 计数死的和活的 PBAP 数浓度时间序列, 如图 2 所示. 结果显示, 整个观测期间, 死的和活的 PBAP 的数浓度呈现明显的同步变化趋势, 说明两者在大气环境具有相似的排放源. 夏季死的和活的 PBAP 数浓度中值



流式密度图由 FlowJo 软件制作,其中颜色深浅代表颗粒物数量的密度大小,即颜色越绿表示颗粒物数量越多;横坐标 FSC-A 为前向角散射光信号强度;0.43%、3.88%和0.50%表示基线以上活的PBAP占总颗粒物的比例;0.25%、0.90%和15.5%表示基线以上死的PBAP占总颗粒物的比例

图1 2019年7月30日PBAP样品的自然荧光特性及SYBR和PI染色后的荧光特性

Fig. 1 Natural fluorescence characteristics of primary biological aerosol particle sample collected on July 30, 2019 and its fluorescence characteristics after SYBR and PI staining

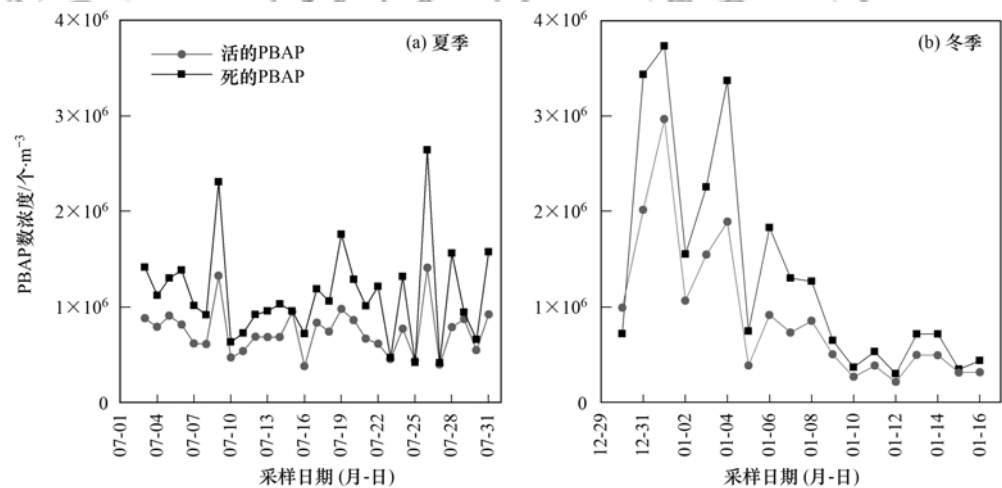


图2 北京城区活的和死的PBAP数浓度逐日变化特征

Fig. 2 Daily variation in number concentrations of dead and alive PBAP at the urban site in Beijing

(1.03×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$ 和 7.43×10^5 个 $\cdot\text{m}^{-3}$)均高于冬季(7.34×10^5 个 $\cdot\text{m}^{-3}$ 和 6.18×10^5 个 $\cdot\text{m}^{-3}$,见表1.然而,相对夏季,冬季PBAP数浓度逐日变化幅度较大,死的和活的PBAP最高值和最低值具有数量级差别(分别为12.4倍和13.7倍).整个观测期间,死的和活的PBAP数浓度最高值出现在冬季2020年1月1日,分别达到了 3.73×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$ 和 2.97×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$.由于冬季出现两次PBAP数

浓度激增现象,导致冬季死的和活的PBAP的数浓度平均值(1.35×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$ 和 9.09×10^5 个 $\cdot\text{m}^{-3}$),略高于夏季(1.14×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$ 和 7.47×10^5 个 $\cdot\text{m}^{-3}$),见表1.此外,冬季采暖的燃煤排放,如芳香族颗粒物和黑碳等,可能会对PBAP的荧光检测结果产生一定影响,导致冬季PBAP数浓度平均值较高.

北京夏季和冬季PBAP数浓度高于利用荧光试

剂 DAPI-荧光显微镜计数分析国内的西安($2.38 \times 10^5 \sim 6.77 \times 10^5$ 个 $\cdot\text{m}^{-3}$)^[17]和青岛城市地区($6.55 \times 10^5 \sim 9.00 \times 10^5$ 个 $\cdot\text{m}^{-3}$)^[18],也显著高于应用 SYTO-13 荧光探针-FCM 在美国亚特兰大地区春季观测的 PBAP 数浓度($9.28 \times 10^4 \sim 1.71 \times 10^6$ 个 $\cdot\text{m}^{-3}$)^[19].但是比使用 FCM 计数法在日本西南地区观测的远距离传输沙尘中 PBAP 数浓度结果低一个数量级($1.0 \times 10^6 \sim 1.6 \times 10^7$ 个 $\cdot\text{m}^{-3}$)^[16].一般夏季温度较高,气候也较为湿润,植被生长繁茂,适宜的温、湿度以及天然培养基为各类 PBAP 的萌发以及繁殖体的生长提供了良好环境,因此夏季微生物新陈代谢旺盛,导致 PBAP 浓度要高于冬季^[20].此外,在冬季中国北方地区的温度较低,大部分时间为冰冻季节,干燥寒冷的气候环境与植被凋落的贫营养条件,不利于微生物生长繁殖,环境中微生物的新陈代谢减弱,逐渐进入休眠期,所以导致大气中 PBAP 浓度较低.相似的大气环境 PBAP 季节变化特征,在国内外不同地区已有很多的相关报道^[21~26].

PBAP 数浓度不仅与时间、气候和地理位置有

关,其数量还与人为活动,如人口密度、活动情况以及大气污染状况有关.我国华北地区由于受弱高压系统控制在冬季经常处于整层静稳的高压中心,叠加周边地区大量高耗能产业和采暖期燃煤污染物排放,导致局地大气颗粒物浓度迅速累积^[27,28].大气环境中高浓度颗粒物数量为生物组分提供了更丰富的载体,导致本研究北京城区冬季 PBAP 数浓度平均值(死的和活的 PBAP 之和为 2.25×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$)高于夏季(1.88×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$).这一现象与越思瑶^[29]应用在线荧光生物气溶胶仪器在北京城区观测结果一致,发现冬季 PBAP 数浓度高于夏季.另外,由于夏季频繁湿沉降对大气颗粒物的冲刷作用,使得颗粒物载体数量下降,而且夏季太阳辐射强不利于微生物生长繁殖,从而导致夏季的 PBAP 数浓度处于较低水平.由于冬季华北地区采暖等人为源污染排放增强和不利气象条件的影响,冬季采样期间总颗粒物数平均浓度(1.15×10^7 个 $\cdot\text{m}^{-3}$)明显高于夏季(3.72×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$),导致夏季活的和死的 PBAP 占总颗粒数量的比例(21.7%和 31.8%)显著高于冬季(8.87%和 11.9%)(表 1).

表 1 夏季和冬季北京城区 PBAP 数浓度的平均值、标准偏差、最小值、最大值、中值及占总颗粒物数浓度的比例

Table 1 Mean, standard deviation, minimum, maximum, median values of PBAP, as well as proportion to total particles in Beijing urban area during summer and winter season

季节	项目	总颗粒物 /个 $\cdot\text{m}^{-3}$	活的 PBAP /个 $\cdot\text{m}^{-3}$	死的 PBAP /个 $\cdot\text{m}^{-3}$	活的 PBAP 比例/%	死的 PBAP 比例/%
夏季	均值	3.72×10^6	7.47×10^5	1.14×10^6	21.7	31.8
	标准偏差	1.49×10^6	2.39×10^5	4.98×10^5	6.64	10.6
	最小值	1.43×10^6	3.79×10^5	4.16×10^5	9.52	16.7
	最大值	7.79×10^6	1.41×10^6	2.64×10^6	37.4	59.8
	中值	3.52×10^6	7.43×10^5	1.03×10^6	22.0	30.1
冬季	均值	1.15×10^7	9.09×10^5	1.35×10^6	8.87	11.9
	标准偏差	5.91×10^6	7.28×10^5	1.10×10^6	7.68	7.91
	最小值	3.24×10^6	2.16×10^5	3.00×10^5	3.00	4.13
	最大值	2.66×10^7	2.97×10^6	3.73×10^6	30.6	33.9
	中值	1.10×10^7	6.18×10^5	7.34×10^5	5.5	8.45

2.2 气象条件对 PBAP 的影响

大气中 PBAP 的浓度水平不仅受排放源变化的影响^[30],也受气象条件和大气污染的影响^[31,32].北京城区夏季和冬季死的和活的 PBAP 数浓度与气象因子和空气质量参数时间序列见图 3.对夏季和冬季 PBAP 数浓度与气象条件(温度、湿度、风速、日照时数和降雨量)和大气污染($\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 SO_2 、 NO_2 和 O_3)的关系进行 Spearman 相关性分析,结果表明 PBAP 数浓度与气象条件和空气质量因子的相关性并不显著,与 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 NO_2 、温度和湿度呈现弱正相关关系,与 O_3 、最大风速和日照时数呈现弱负相关关系.

温度和相对湿度是影响空气中微生物生长的最

重要的两个气象因素.微生物生长繁殖的最适温度范围为($20 \sim 30^\circ\text{C}$),过高的温度会导致微生物细胞蛋白质变性、失水,从而使微生物失活. PBAP 的生存和释放均需要一定的湿度条件. 先前研究表明, PBAP 示踪物浓度最高值出现在相对湿度 70%^[22,26].一方面,因为在过高的湿度条件下, PBAP 与表面的粘附力加大,若没有足够的空气流动就不能使 PBAP 脱离排放源表面,导致大气中 PBAP 的浓度下降.另一方面,高湿度天气一般都伴随着下雨的气象条件,会导致空气中 PBAP 被雨水清除.本研究夏季当前夜 20:00~次日 08:00 降雨强度较弱时(降雨量 $<5\text{ mm}$),第二天的 PBAP 均出现显著上升,例如,7月8日夜里降雨 0.4 mm,第二

天 7 月 9 日 PBAP 数浓度升至 (3.63×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$), 但是 7 月 10 日降雨量达到了 27.2 mm, 湿沉降清除过程增强, 当天 PBAP 数浓度迅速降至 1.10×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$ [图 3(a)]. 这些研究结果与基于在线荧光生物气溶胶观测仪器的研究结果相似, 在降雨初期和后期的弱降雨期荧光生物气溶胶排放增强, 而在降雨后, 包括 PBAP 在内的所有大气颗粒物浓度均降低^[33,34].

风速既可以加速 PBAP 的释放也可以增强局地大气的稀释作用. 本研究 PBAP 数浓度和风速呈现弱的负相关性, 说明北京城区风速的大小对大气中 PBAP 主要以稀释作用为主, 在冬季大风天气, 大气 PBAP 的浓度明显下降 [图 3(b)]. 太阳辐射对大气中微生物的作用比较复杂, 光照能够激起某些 PBAP 的释放, 许多真菌的分生孢子在光照良好的

条件下生长较好, 但是过强日照辐射对真菌也具有损害作用^[35~36].

2.3 空气质量对北京城区 PBAP 的影响

除了气象条件, 空气中的微生物浓度也会受到空气质量影响, 近年来, 国内外研究开始关注空气质量与 PBAP 的相关关系^[37~41], 结果却不尽相同. 例如, Dong 等^[18]的研究发现霾污染和大雾天气均可以显著增加 PBAP 的数量; 但是高敏等^[42]的研究发现雾-霾污染程度同细菌和真菌气溶胶浓度之间没有明显相关性. 本研究中 PBAP 数浓度与细颗粒 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度相关性较弱, 但是与粗颗粒物 ($\text{PM}_{2.5-10}$) 浓度呈现显著的正相关关系 [夏季 $P < 0.01$, $R^2 = 0.53$; 冬季 $P < 0.01$, $R^2 = 0.39$, 图 4(a) 和 4(c)], 这与可培养微生物和分子示踪物研究方法的结果相似^[43~46]. Haas 等^[47]的研究发现细菌浓度与颗粒物, 尤其是粗颗粒物数浓度具有明显的相关性, 而不同种类的真菌与颗粒物数浓度相关关系不同. 有研究发现沙尘天气大气中 PBAP 浓度显著增加 ($P < 0.05$), 而且其粒径分布也发生明显变化, 从洁净天的双峰分布改变为粗粒径偏态分布, 最高峰值均出现在 $> 7.0 \mu\text{m}$ 的粒径^[48].

本研究中 PBAP 数浓度与 O_3 呈现弱负相关关系. 这可能是因为大气环境中 O_3 有一定的杀菌作用, 导致微生物的存活率降低, 影响了 PBAP 浓度水平^[41]. O_3 对微生物影响在不同地区则不尽相同, Adhikari 等^[49]基于 2 a 的观测发现, 几种类型的空气真菌和花粉与臭氧呈现正相关关系; 而 Sousa 等^[50]的研究应用线性相关分析发现 O_3 对大气中的花粉和真菌孢子浓度没有明显影响. 有研究表明, 空气污染程度的升高不仅会增加微生物浓度^[17,51], 而且还会对微生物的种群结构产生影响, 霾污染天气与清洁天气溶胶中微生物种群结构存在明显差异^[32,52].

在冬季观测期间出现两次 PBAP 数浓度激增现象, 分别在 2020 年 1 月 1 日 (6.70×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$) 和 2020 年 1 月 4 日 (5.26×10^6 个 $\cdot\text{m}^{-3}$), 表明有较强的 PBAP 来源. 利用全球同化数据驱动后向轨迹模型 (HYSPLIT) 计算观测站点 120 h 气团后向轨迹, 对 2019 年 12 月 30 日至 2020 年 1 月 5 日期间后向轨迹进行分析研究 (图 5). 从 2019 年 12 月 30 日至 2020 年 1 月 1 日, 到达北京地区的气团从洁净的北部和东北部逐步转换到污染严重的西南部, 风速也随之降低 [图 3(b) 和图 5]. 同时, 2020 年 1 月 1 日华北地区处于静稳天气条件, 大气层稳定度增加, 来自北京西南部空气污染严重的河北、山西、陕西等内陆城市地区的气团 (图 5), 携带大量的颗粒物载

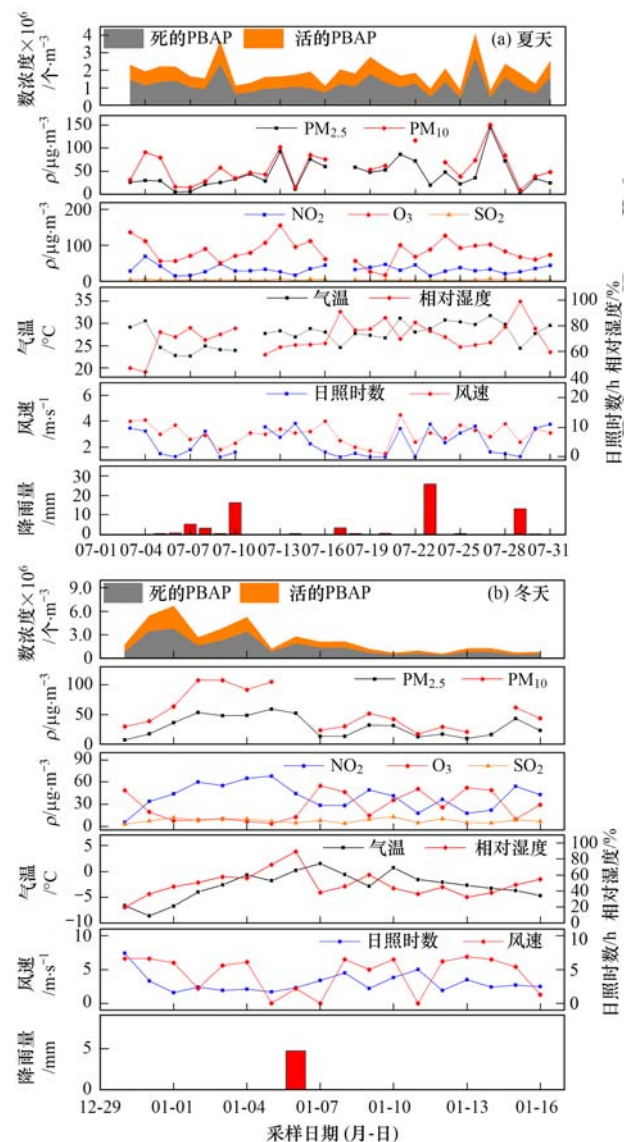


图 3 北京城区 PBAP 数浓度与空气污染因子和气象因子的时间序列

Fig. 3 Time series diagram of PBAP number concentration and air pollution and meteorological factors in the urban area in Beijing

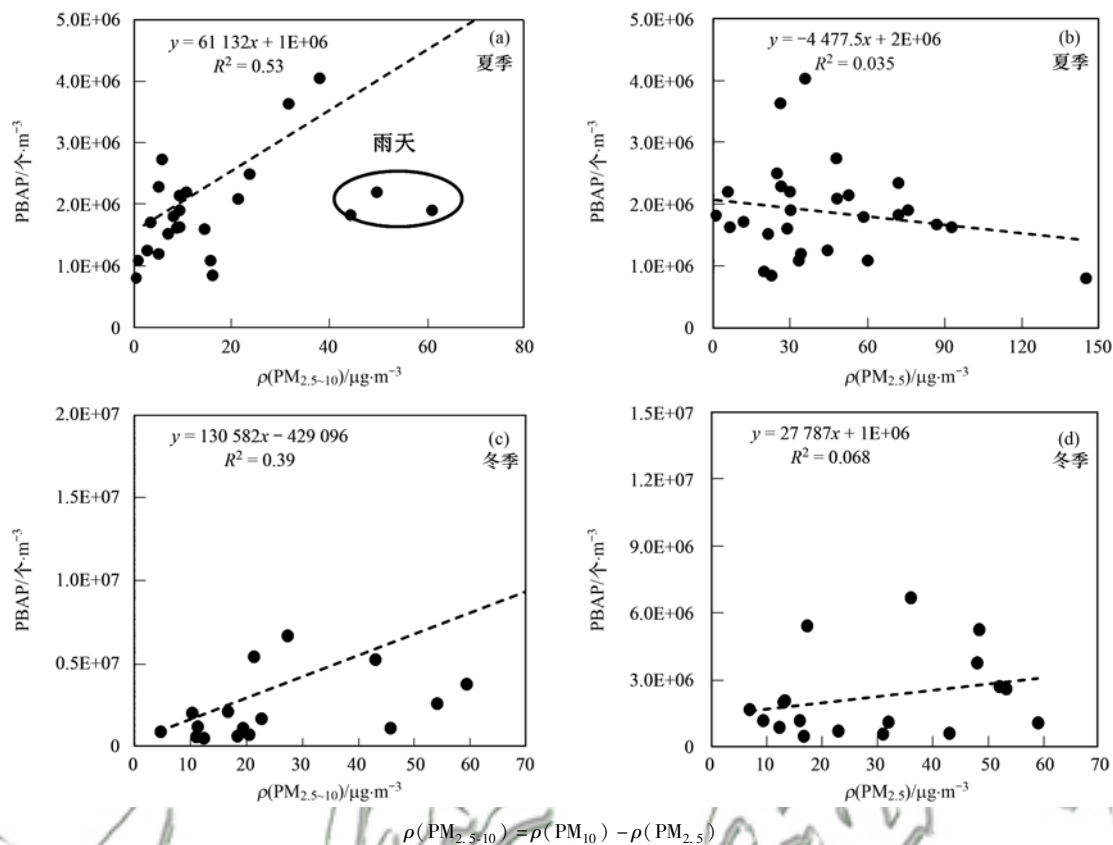


图4 PBAP数浓度与粗颗粒物($PM_{2.5-10}$)、细颗粒物($PM_{2.5}$)浓度的相关关系

Fig. 4 Correlation between the number concentration of PBAP and the mass concentration of coarse particulate matter ($PM_{2.5-10}$) and fine particulate matter ($PM_{2.5}$)

体及其负载的生物组分,在北京上空堆积,导致2020年1月1日北京地区PBAP浓度显著上升[图3(b)].此外,2019年12月30日至2020年1月3日期间,湿度上升,并且臭氧 O_3 的浓度保持在较低水平[图3(b)],大气环境适合生物组分生存和

繁殖。
不同于2020年1月1日的静稳天气,2020年1月4日的气团移动速度较快,72 h从蒙古和俄罗斯边境快速移动约3 000 km至北京上空,如图5所示。气团后向轨迹分析结果说明2020年1月4日激增

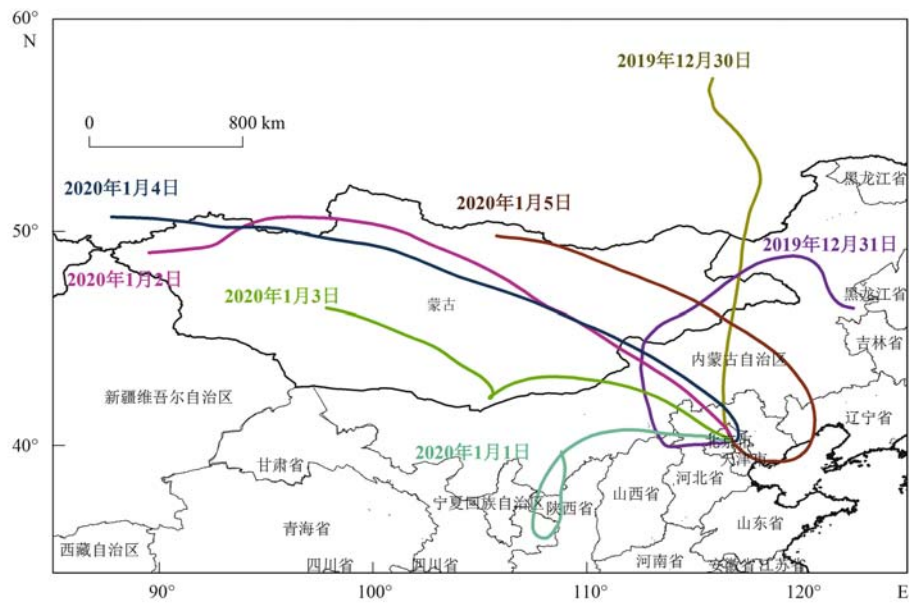


图5 2019年12月30日至2020年1月5日北京上空气团72 h后向轨迹分析

Fig. 5 Seventy-two hour back trajectories arriving at Beijing from December 30, 2019 to January 5, 2020

的 PBAP 可能主要来源于沙尘气溶胶长距离传输的贡献。闫威卓等^[53]的研究发现,北京在 2013 年和 2015 年冬季主导风向为北偏西风时生物气溶胶数浓度急剧升高 1 个数量级。沙尘大风天气 PBAP 浓度的增加,既有本地土壤扬尘增加的贡献,又有远距离传输沙尘中携带的大量外源微生物的贡献。在 2020 年 1 月 2~4 日期间,PM_{2.5} 和 PM₁₀ 之间的差值,即粗颗粒物 PM_{2.5-10} 浓度明显增加[图 3(b)], PM_{2.5}/PM₁₀ 从 0.57(2020 年 1 月 1 日)降至 0.45(2020 年 1 月 3 日)。以往研究发现沙尘天气显著增加大气中 PBAP 浓度,而且其粒径分布改变为粗粒径偏态分布^[48,54]。在此期间,湿度下降,日照时数上升,但是由于沙漠气团人为源污染排放较低,大气氧化程度较低,导致这期间北京地区 O₃ 仍保持在较低水平[图 3(b)]。

3 结论

(1)PI + SYBR 荧光探针和流式细胞仪分析技术可以对死的、活的 PBAP 进行快速识别和定量。

(2)北京城区死的和活的 PBAP 数浓度中值夏季(1.03×10^6 个·m⁻³ 和 7.43×10^5 个·m⁻³) 高于冬季(7.34×10^5 个·m⁻³ 和 6.18×10^5 个·m⁻³),且两者呈现明显的同步变化趋势。

(3)PBAP 数浓度与细颗粒 PM_{2.5} 浓度相关性较弱,但是与粗颗粒物(PM_{2.5-10}) 浓度呈现明显的正相关关系(夏季 $P < 0.01$, $R^2 = 0.53$; 冬季 $P < 0.01$, $R^2 = 0.39$)。

(4)冬季静稳天气大气层稳定度增加,北京西南部空气污染严重地区的暖湿气团,携带大量的颗粒物载体及其负载的生物组分传输至北京上空并累积,导致北京地区 PBAP 数浓度显著上升。而北偏西大风天气沙尘长距离传输也可以显著提升北京城区 PBAP 的数浓度水平。

致谢:感谢清华大学生物医学测试中心于彬老师对 BD LSRFortessa 多维高清流式细胞分析仪实验分析提供的技术指导和支持。

参考文献:

[1] Després V R, Alex Huffman J, Burrows S M, *et al.* Primary biological aerosol particles in the atmosphere: a review [J]. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology*, 2012, **64**(1), doi: 10.3402/tellusb.v64i0.15598.

[2] 郑云昊, 李菁, 陈灏轩, 等. 生物气溶胶的昨天、今天和明天[J]. *科学通报*, 2018, **63**(10): 878-894.

Zheng Y H, Li J, Chen H X, *et al.* Bioaerosol research: yesterday, today and tomorrow[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2018, **63**(10): 878-894.

[3] Fennelly M J, Sewell G, Prentice M B, *et al.* Review: the use of real-time fluorescence instrumentation to monitor ambient primary biological aerosol particles (PBAP) [J]. *Atmosphere*, 2018, **9**

(1), doi: 10.3390/atmos9010001.

[4] Jaenicke R. Abundance of cellular material and proteins in the atmosphere[J]. *Science*, 2005, **308**(5718): 73.

[5] Jaenicke R, Matthias-Maser S, Gruber S. Omnipresence of biological material in the atmosphere [J]. *Environmental Chemistry*, 2007, **4**(4): 217-220.

[6] 江桂斌. 快速发展的生物气溶胶学科[J]. *科学通报*, 2018, **63**(10): 875.

[7] Andrade L, Gonzalez A M, Araujo F V, *et al.* Flow cytometry assessment of bacterioplankton in tropical marine environments [J]. *Journal of Microbiological Methods*, 2003, **55**(3): 841-850.

[8] Barnaba F, Fiorani L, Palucci A, *et al.* First characterization of marine particles by laser scanning flow cytometry[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2006, **102**(1): 11-17.

[9] Foladori P, Bruni L, Tamburini S, *et al.* Direct quantification of bacterial biomass in influent, effluent and activated sludge of wastewater treatment plants by using flow cytometry[J]. *Water Research*, 2010, **44**(13): 3807-3818.

[10] Grégori G, Citterio S, Ghiani A, *et al.* Resolution of viable and membrane-compromised bacteria in freshwater and marine waters based on analytical flow cytometry and nucleic acid double staining[J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2001, **67**(10): 4662-4670.

[11] Chen P S, Li C S. Real-time monitoring for bioaerosols—flow cytometry[J]. *Analyst*, 2007, **132**(1): 14-16.

[12] Chen P S, Li C S. Sampling performance for bioaerosols by flow cytometry with fluorochrome [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2005, **39**(3): 231-237.

[13] Hernlem B J, Ravva S V. Application of flow cytometry and cell sorting to the bacterial analysis of environmental aerosol samples [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2007, **9**(12): 1317-1322.

[14] Liang L L, Engling G, Cheng Y, *et al.* Rapid detection and quantification of fungal spores in the urban atmosphere by flow cytometry[J]. *Journal of Aerosol Science*, 2013, **66**: 179-186.

[15] Prigione V, Lingua G, Marchisio V F. Development and use of flow cytometry for detection of airborne fungi [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2004, **70**(3): 1360-1365.

[16] Hara K, Zhang D Z. Bacterial abundance and viability in long-range transported dust [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **47**: 20-25.

[17] Xie Z S, Li Y P, Lu R, *et al.* Characteristics of total airborne microbes at various air quality levels [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2018, **116**: 57-65.

[18] Dong L J, Qi J H, Shao C C, *et al.* Concentration and size distribution of total airborne microbes in hazy and foggy weather [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **541**: 1011-1018.

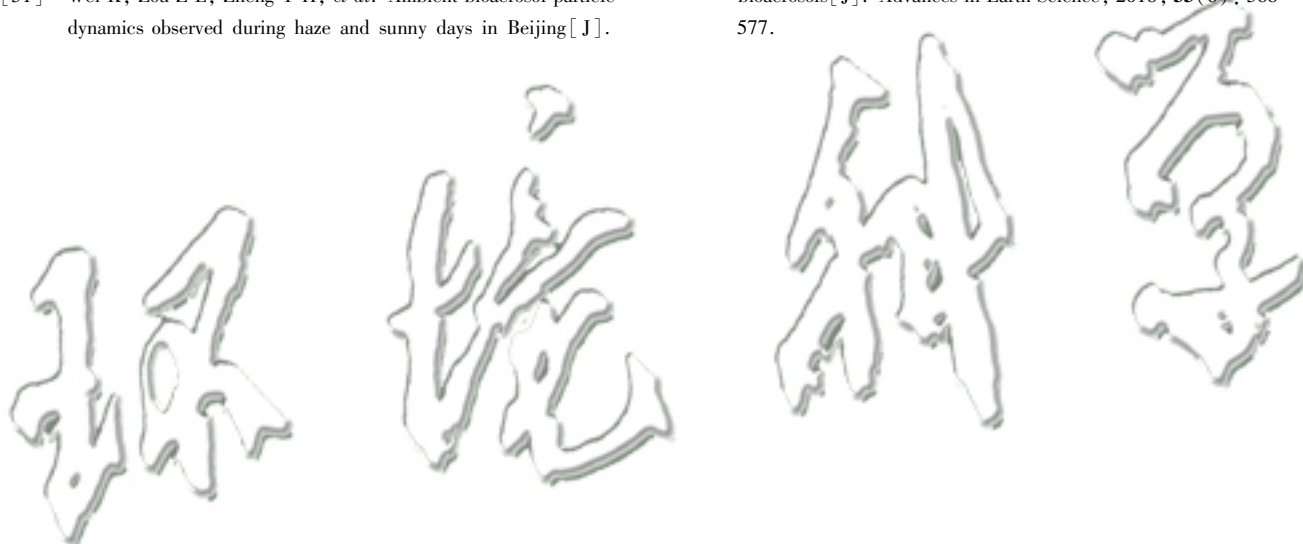
[19] Negron A, DeLeon-Rodriguez N, Waters S M, *et al.* Using flow cytometry and light-induced fluorescence to characterize the variability and characteristics of bioaerosols in springtime in Metro Atlanta, Georgia [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, **20**(3): 1817-1838.

[20] Toprak E, Schnaiter M. Fluorescent biological aerosol particles measured with the Waveband Integrated Bioaerosol Sensor WIBS-4: laboratory tests combined with a one year field study [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(1): 225-243.

[21] Mota L C, Gibbs S G, Green C F, *et al.* Characterization of seasonal indoor and outdoor bioaerosols in the arid environment of El Paso, Texas [J]. *Journal of Environmental Health*, 2008, **70**

- (10): 48-53.
- [22] Lau A P S, Lee A K Y, Chan C K, *et al.* Ergosterol as a biomarker for the quantification of the fungal biomass in atmospheric aerosols[J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(2): 249-259.
- [23] 胡利锋, 方治国, 欧阳志云, 等. 北京市室外空气真菌分布特征[J]. *环境科学*, 2005, **26**(5): 22-27.
Hu L F, Fang Z G, Ouyang Z Y, *et al.* Ecological distributions of airborne fungi in outdoor environments in Beijing, China[J]. *Environmental Science*, 2005, **26**(5): 22-27.
- [24] Yttri K, Dye C, Kiss G. Ambient aerosol concentrations of sugars and sugar-alcohols at four different sites in Norway [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2007, **7**(16): 4267-4279.
- [25] Liang L L, Engling G, Du Z Y, *et al.* Seasonal variations and source estimation of saccharides in atmospheric particulate matter in Beijing, China[J]. *Chemosphere*, 2016, **150**: 365-377.
- [26] Liang L L, Engling G, He K B, *et al.* Evaluation of fungal spore characteristics in Beijing, China, based on molecular tracer measurements[J]. *Environmental Research Letters*, 2013, **8**(1), doi: 10.1088/1748-9326/8/1/014005.
- [27] 张小曳, 孙俊英, 王亚强, 等. 我国雾-霾成因及其治理的思考[J]. *科学通报*, 2013, **58**(13): 1178-1187.
Zhang X Y, Sun J Y, Wang Y Q, *et al.* Factors contributing to haze and fog in China[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2013, **58**(13): 1178-1187.
- [28] Tan J H, Duan J C, Zhen N J, *et al.* Chemical characteristics and source of size-fractionated atmospheric particle in haze episode in Beijing[J]. *Atmospheric Research*, 2016, **167**: 24-33.
- [29] 越思瑶. 北京荧光生物气溶胶特征分析[D]. 北京: 中国科学院大学, 2017.
- [30] 李彦鹏, 马天峰, 杜胜利, 等. 大气生物气溶胶的源排放与源解析研究进展[J]. *地球科学与环境学报*, 2021, **43**(2): 315-331.
Li Y P, Ma T F, Du S L, *et al.* Review on source emission and source identification of bioaerosols in the atmosphere[J]. *Journal of Earth Sciences and Environment*, 2021, **43**(2): 315-331.
- [31] Jones A M, Harrison R M. The effects of meteorological factors on atmospheric bioaerosol concentrations—a review[J]. *Science of the Total Environment*, 2004, **326**(1-3): 151-180.
- [32] 张瑜, 李维林, 杨金水, 等. 重度霾污染时空气细菌群落特征及与关键环境因子的相关性[J]. *微生物学通报*, 2020, **47**(10): 3126-3140.
Zhang Y, Li W L, Yang J S, *et al.* Community characteristics of airborne bacteria in severe haze and its correlation with key environmental factors[J]. *Microbiology China*, 2020, **47**(10): 3126-3140.
- [33] Yue S Y, Ren H, Fan S Y, *et al.* Springtime precipitation effects on the abundance of fluorescent biological aerosol particles and HULIS in Beijing[J]. *Scientific Reports*, 2016, **6**, doi: 10.1038/srep29618.
- [34] Valsan A E, Ravikrishna R, Biju C V, *et al.* Fluorescent biological aerosol particle measurements at a tropical high-altitude site in southern India during the southwest monsoon season[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(15): 9805-9830.
- [35] Scherm H, Van Bruggen A H C. Concurrent spore release and infection of lettuce by *Bremia lactucae* during mornings with prolonged leaf wetness[J]. *Phytopathology*, 1995, **85**(5): 552-555.
- [36] Timmer L W, Solel Z, Gottwald T R, *et al.* Environmental factors affecting production, release, and field populations of conidia of *Alternaria alternata*, the cause of brown spot of citrus [J]. *Phytopathology*, 1998, **88**(11): 1218-1223.
- [37] 李彦鹏, 刘鹏霞, 谢铮胜, 等. 霾污染天气大气微生物气溶胶特性的研究进展[J]. *科学通报*, 2018, **63**(10): 940-953.
Li Y P, Liu P X, Xie Z S, *et al.* Recent research progress and perspective of characteristics of ambient bioaerosols during hazy pollution in China[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2018, **63**(10): 940-953.
- [38] 李婉欣, 路瑞, 谢铮胜, 等. 西安市秋冬季不同空气质量下可培养微生物气溶胶浓度和粒径分布[J]. *环境科学*, 2017, **38**(11): 4494-4500.
Li W X, Lu R, Xie Z S, *et al.* Concentration and size distribution characteristics of culturable bioaerosols at various air quality levels during fall and winter in Xi'an, China [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(11): 4494-4500.
- [39] 赵炜, 李杰, 谢慧娜, 等. 兰州市春季微生物气溶胶浓度、粒径及细菌群落结构分布特性[J]. *环境科学*, 2021, **42**(4): 1668-1678.
Zhao W, Li J, Xie H N, *et al.* Concentration and particle size distribution characteristics of microbial aerosol and bacterial community structure during spring in Lanzhou city, China[J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(4): 1668-1678.
- [40] 官静, 祁建华, 李鸿涛. 青岛近海生物气溶胶中总微生物的分布特征[J]. *环境科学*, 2019, **40**(8): 3477-3488.
Gong J, Qi J H, Li H T. Distribution of total microbes in atmospheric bioaerosols in the coastal region of Qingdao [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(8): 3477-3488.
- [41] 武利平, 毛怡心, 王友斌, 等. 北京一次空气重污染过程室内外微生物气溶胶的浓度变化及影响因素分析[J]. *现代预防医学*, 2019, **46**(5): 804-807, 826.
Wu L P, Mao Y X, Wang Y B, *et al.* Size distribution characteristics of cultivable bio-aerosols from indoor and outdoor air in relation to environmental factors during haze days [J]. *Modern Preventive Medicine*, 2019, **46**(5): 804-807, 826.
- [42] 高敏, 仇天雷, 贾瑞志, 等. 北京雾霾天气生物气溶胶浓度和粒径特征[J]. *环境科学*, 2014, **35**(12): 4415-4421.
Gao M, Qiu T L, Jia R Z, *et al.* Concentration and size distribution of bioaerosols at non-haze and haze days in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(12): 4415-4421.
- [43] 韩晨, 谢绵测, 祁建华, 等. 青岛市不同空气质量下可培养生物气溶胶分布特征及影响因素[J]. *环境科学研究*, 2016, **29**(9): 1264-1271.
Han C, Xie M C, Qi J H, *et al.* Size distribution characteristics of culturable bioaerosols in relation to air quality levels in Qingdao [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2016, **29**(9): 1264-1271.
- [44] Borens J, Dillner A M, Peccia J. Correlating bioaerosol load with PM_{2.5} and PM₁₀ concentrations: a comparison between natural desert and urban-fringe aerosols [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**(35): 6029-6041.
- [45] Zhang Z S, Engling G, Zhang L M, *et al.* Significant influence of fungi on coarse carbonaceous and potassium aerosols in a tropical rainforest [J]. *Environmental Research Letters*, 2015, **10**(3), doi: 10.1088/1748-9326/10/3/034015.
- [46] 杜睿, 周宇光. 北京及周边地区大气近地面层真菌气溶胶的变化特征[J]. *中国环境科学*, 2010, **30**(3): 296-301.
Du R, Zhou Y G. Variation characteristics of fungi aerosols in the near-surface atmospheric layer in Beijing and surrounding area [J]. *China Environmental Science*, 2010, **30**(3): 296-301.

- [47] Haas D, Galler H, Luxner J, *et al.* The concentrations of culturable microorganisms in relation to particulate matter in urban air[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **65**: 215-222.
- [48] 李鸿涛, 祁建华, 董立杰, 等. 沙尘天气对生物气溶胶中总微生物浓度及粒径分布的影响[J]. *环境科学*, 2017, **38**(8): 3169-3177.
- Li H T, Qi J H, Dong L J, *et al.* Influence of dust events on the concentration and size distribution of microorganisms in bioaerosols[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(8): 3169-3177.
- [49] Adhikari A, Reponen T, Grinshpun S A, *et al.* Correlation of ambient inhalable bioaerosols with particulate matter and ozone: a two-year study[J]. *Environmental Pollution*, 2006, **140**(1): 16-28.
- [50] Sousa S I V, Martins F G, Pereira M C, *et al.* Influence of atmospheric ozone, PM₁₀ and meteorological factors on the concentration of airborne pollen and fungal spores [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(32): 7452-7464.
- [51] Wei K, Zou Z L, Zheng Y H, *et al.* Ambient bioaerosol particle dynamics observed during haze and sunny days in Beijing[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **550**: 751-759.
- [52] 汪瑶, 祁建华, 张婷, 等. 青岛多种天气下生物气溶胶中细菌群落特征[J]. *中国海洋大学学报*, 2021, **51**(6): 88-98.
- Wang Y, Qi J H, Zhang T, *et al.* Bacterial community characteristics in different weather conditions of atmospheric bioaerosols in Qingdao[J]. *Periodical of Ocean University of China*, 2021, **51**(6): 88-98.
- [53] 闫威卓, 王步英, Montana O F, 等. 北偏西大风对北京冬季生物气溶胶的影响[J]. *环境科学*, 2017, **38**(9): 3561-3568.
- Yan W Z, Wang B Y, Montana O F, *et al.* Impact of gusty northwesterly winds on biological particles in winter in Beijing[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(9): 3561-3568.
- [54] 祁建华, 李孟哲, 高冬梅, 等. 沙尘天气对大气生物气溶胶中微生物浓度、特性和分布的影响[J]. *地球科学进展*, 2018, **33**(6): 568-577.
- Qi J H, Li M Z, Gao D M, *et al.* Impact of dust events on the concentration, property and distribution of atmospheric bioaerosols[J]. *Advances in Earth Science*, 2018, **33**(6): 568-577.



CONTENTS

Temporal and Spatial Variation Characteristics of Heavy Metal in Atmospheric Deposition in China from 2000 to 2018	CHEN Qi-yong, GAO Yun-bing, NI Run-xiang, <i>et al.</i> (4413)
Simulation of PM _{2.5} Concentration Based on Optimized Indexes of 2D/3D Urban Form	LI Sha, ZOU Bin, LIU Ning, <i>et al.</i> (4425)
Characteristics of Carbonaceous Species in PM _{2.5} in Chengdu Under the Background of Emission Reduction	CHEN Lu-yao, YU Yang-chun, HUANG Xiao-juan, <i>et al.</i> (4438)
Characteristics and Health Risk Assessment of Trace Elements in Atmospheric PM ₁ During Autumn and Winter in Qingdao	LIU Zi-yang, ZHANG Yi-sheng, ZHANG Hou-yong, <i>et al.</i> (4448)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Atmospheric PM _{2.5} -bound Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Port Area	WANG Peng-cheng, YANG Ling-xiao, BIE Shu-jun, <i>et al.</i> (4458)
Size Distribution and Source Apportionment of Road Particles During Winter in Tianjin	ZHANG Guo-tao, YIN Bao-hui, BAI Wen-yu, <i>et al.</i> (4467)
Characteristics and Impact Factors of Number Concentration of Primary Biological Aerosol Particles in Beijing	LIANG Lin-lin, LIU Chang, LIU Xu-yan, <i>et al.</i> (4475)
Characteristic Analysis and Source Apportionment of VOCs in Urban Areas of Beijing in Summer	MENG Xiang-lai, SUN Yang, LIAO Ting-ting, <i>et al.</i> (4484)
Characteristics and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds (VOCs) in a Typical Industrial Area in Dongguan During Periods of Ozone and Non-ozone Pollution in Summer	ZHOU Zhen, XIAO Lin-hai, FEI Lei-lei, <i>et al.</i> (4497)
Temporal and Spatial Variation in Odor Pollution and Membrane Barrier Effect in Municipal Solid Waste Landfill	HE Pin-jing, LI Jian-chen, LÜ Fan, <i>et al.</i> (4506)
Comparison of Health Risk from Sources of Perfluoroalkyl Substances in Taihu Lake for Different Years	WU Ting, SUN Shan-wei, FAN Jing-pu, <i>et al.</i> (4513)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Typical and Emerging Per- and Polyfluoroalkylated Substances in Tuojiang River Basin	SONG Jiao-jiao, WANG Yi-mei, SUN Jing, <i>et al.</i> (4522)
Speciation and Risk of Heavy Metals in Surface Sediments of Different Types of Water Bodies in Baiyangdian Lake	XU Meng-ya, ZHANG Chao, SHAN Bao-qing, <i>et al.</i> (4532)
Distribution Coefficient of QNs in Urban Typical Water and Its Main Environmental Influencing Factors	JU Ze-jia, FU Yu, ZHAO Xin-yu, <i>et al.</i> (4543)
Ecological Risk Assessment of Quinolones Antibiotics and the Correlation Analysis Between QNs and Physical-Chemical Parameters in Groundwater, Shijiazhuang City	CHEN Hui, JU Ze-jia, ZHAO Xin-yu, <i>et al.</i> (4556)
Characteristics and Sources of DOM in Lake Sediments Under Different Inundation Environments	CHEN Jia, LI Zhong-wu, JIN Chang-sheng, <i>et al.</i> (4566)
Characteristics of Phytoplankton Community Structure and Their Relationships with Environmental Factors in Autumn in Qinhe River Basin of Jincheng Region	GAO Meng-die, LI Yan-fen, LI Yan-li, <i>et al.</i> (4576)
Integrated Assessment of Runoff Quality from Green Roofs with Different Configurations	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, YAN Jing, <i>et al.</i> (4587)
Degradation of Chloroquine Phosphate by UV-activated Persulfate	LI Yang, XU Bo-hui, DENG Lin, <i>et al.</i> (4597)
Removal Performance of Suspended Solid (SS) and Organic Compounds in the Pre-treatment of Actual Pharmaceutical Wastewater by Microbubble Ozonation	LIU Chun, CHEN Rui, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (4608)
Effects of Wastewater Discharge on Antibiotic Resistance Genes and Microbial Community in a Coastal Area	CHEN Jia-yu, SU Zhi-guo, YAO Peng-cheng, <i>et al.</i> (4616)
Effects of Biochar and Straw Returning on Soil Fungal Community Structure Diversity in Cotton Field with Long-term Brackish Water Irrigation	GUO Xiao-wen, CHEN Jing, LU Xiao-yu, <i>et al.</i> (4625)
Effects of Organic Materials on Phosphorus Fractions and <i>phoD</i> -harboring Bacterial Community in Karst Soil	XIA Xin, QIAO Hang, SUN Qi, <i>et al.</i> (4636)
Effects of Different Vegetation Types on Soil Microbial Functional Genes and Enzyme Activities in Reclaimed Coal Mine	NING Yue-wei, LIU Yong, ZHANG Hong, <i>et al.</i> (4647)
Effects of Biochar Application on Yellow Soil Nutrients and Enzyme Activities	YUAN Fang, LI Kai-yu, YANG Hui, <i>et al.</i> (4655)
Changes in Soil Bacterial Community Diversity in Degraded Patches of Alpine Meadow in the Source Area of the Yellow River	SUN Hua-fang, LI Xi-lai, JIN Li-qun, <i>et al.</i> (4662)
Effects of Simulated Nitrogen Deposition on Soil Microbial Carbon Metabolism in <i>Calamagrostis angustifolia</i> Wetland in Sanjiang Plain	WENG Xiao-hong, SUI Xin, LI Meng-sha, <i>et al.</i> (4674)
Spatial Distribution of Quinolone Antibiotics and Its Correlation Relationship with Microbial Community in Soil of Shijiazhuang City	ZHAO Xin-yu, JU Ze-jia, CHEN Hui, <i>et al.</i> (4684)
Composition Characteristics and Construction Mechanism of Microbial Community on Microplastic Surface in Typical Redox Environments	GONG Zhi-wei, MA Jie, SU Qu, <i>et al.</i> (4697)
Annual Nitrogen Removal Efficiency and Change in Abundance of Nitrogen Cycling Microorganisms in Swine Wastewater Treated by Crop Straw Materials	LIU Ming-yu, XIA Meng-hua, JIANG Lei, <i>et al.</i> (4706)
Effects of External Carbon Sources on Ultimate Nitrogen Removal Performance and Microbial Community in Secondary Effluent Treating Process	WANG Wei, ZHAO Zhong-yuan, ZHANG Xin, <i>et al.</i> (4717)
Microbial Community Structure of Activated Sludge for Total Nitrogen Upgrading Project	LI Hai-song, WANG Ke-dan, CHEN Xiao-lei, <i>et al.</i> (4727)
Analysis of Microbial Interaction Law of Mud Membrane in IFAS Process for Treating Low Carbon Source Sewage in South China	HE Jun-guo, JIANG Wei-xun, HE Zhuo-yi, <i>et al.</i> (4736)
Abundances and Morphology Patterns of Microplastics Under Different Land Use Types on the Loess Plateau	HAO Yong-li, HU Ya-xian, BAI Xiao-xiong, <i>et al.</i> (4748)
Evaluation of Heavy Metal Content, Sources, and Potential Ecological Risk in Soils of Southern Hilly Areas	WANG Yu, XIN Cun-lin, YU Shi, <i>et al.</i> (4756)
Risk Assessment and Attribution Analysis of "Five Toxic" Heavy Metals in Cultivated Land in Lanzhou	ZHANG Li-rui, PENG Xin-bo, MA Yan-long, <i>et al.</i> (4767)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metal Pollution in Farmland Soils and Crops in Luancheng, Shijiazhuang City	MENG Xiao-fei, GUO Jun-mei, YANG Jun-xing, <i>et al.</i> (4779)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Antimony in Typical Urban Soil	SHEN Cheng, YE Wen-juan, QIAN Shi-ying, <i>et al.</i> (4791)
Contamination Assessment and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Typical Villages and Towns in a Nonferrous Metal Mining City	WANG Feng, HUANG Yan-huan, LI Ru-zhong, <i>et al.</i> (4800)
Effect of Citric Acid and Mowing on Enhancing the Remediation of Cadmium Contaminated Soil by Napier Grass (<i>Pennisetum purpureum</i> Schum)	TANG Qi, WU Gang-fan, GU Jiao-feng, <i>et al.</i> (4810)
Arsenic Methylation Efficiency Changes During Paddy Soil Drying and Its Key Influencing Factors Analysis	ZHANG Yue, LI Ling-yi, WEN Jiong, <i>et al.</i> (4820)
Effects of Exogenous Jasmonic Acid on Arsenic Accumulation and Response to Stress in Roots of Rice Seedlings	LI Yan, HUANG Yi-zong, BAO Qiong-li, <i>et al.</i> (4831)
Effects of Straw Returning and Fertilizer Application on Soil Nutrients and Winter Wheat Yield	SONG Jia-jie, XU Xi-yang, BAI Jin-ze, <i>et al.</i> (4839)
Effect of Winter Cover Cropping on Soil Greenhouse Gas Emissions in a Dryland Spring Maize Field on the Loess Plateau of China	ZHANG Shao-hong, WANG Jun, FANG Zhen-wen, <i>et al.</i> (4848)
Detection of Influencing Factors of Spatial Variability of Soil Respiration in Pangqiangou Nature Reserve	LI Xiao-min, YAN Jun-xia, DU Zi-qiang, <i>et al.</i> (4858)
Temporal and Spatial Variation Characteristics of Methane, Carbon Dioxide, and Nitrous Oxide Concentrations and the Influencing Factors in Small Aquaculture Pond	SHI Jie, ZHANG Mi, QIU Ji-li, <i>et al.</i> (4867)
Effect of Butyl Xanthate on Pb ²⁺ and Cd ²⁺ Adsorption by Soil Around a Dressing Plant	HU Zhi-hao, GUO Zhao-hui, RAN Hong-zhen, <i>et al.</i> (4878)
Sorption Mechanism and Site Energy Distribution of Acetaminophen on Straw-derived Biochar	SHANG Cen-yao, GU Ruo-ting, ZHANG Qiang, <i>et al.</i> (4888)
Spatial-temporal Variations and Their Driving Forces of the Ecological Vulnerability in the Loess Plateau	ZHANG Liang-xia, FAN Jiang-wen, ZHANG Hai-yan, <i>et al.</i> (4902)
Mechanism and Application of Plant Growth-Promoting Bacteria in Heavy Metal Bioremediation	MA Ying, WANG Yue, SHI Xiao-jun, <i>et al.</i> (4911)