

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第2期

Vol.35 No.2

2014

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

我国环境空气中颗粒物达标统计要求研究	王帅,丁俊男,王瑞斌,李健军,孟晓艳,杨彬,林宏 (401)
北京城区 PM _{2.5} 中致癌重金属季节变化特征及其来源分析	陶俊,张仁健,段菁春,荆俊山,朱李华,陈忠明,赵岳,曹军骥 (411)
北京地区冬春 PM _{2.5} 和 PM ₁₀ 污染水平时空分布及其与气象条件的关系	赵晨曦,王云琦,王玉杰,张会兰,赵冰清 (418)
北京市 PM _{2.5} 可吸入颗粒物反演及其时空分布分析	王艳慧,肖瑶 (428)
杭州市春季大气超细颗粒物粒径谱分布特征	谢小芳,孙在,杨文俊 (436)
春节期间南京市大气气溶胶粒径分布特征	王红磊,朱彬,沈利娟,刘晓慧,张泽峰,杨洋 (442)
南京市大气颗粒物中有机碳和元素碳粒径分布特征	吴梦龙,郭照冰,刘凤玲,刘杰,卢霞,姜琳琳 (451)
忻州市环境空气 PM ₁₀ 中有机碳和元素碳污染特征分析	史美鲜,彭林,刘效峰,牟玲,白慧玲,刘凤娟,杨花 (458)
广州某工业区大气中 PCDD/Fs 含量水平及其季节性变化特征	青亮,苏原,苏青,张素坤,任明忠 (464)
燃煤电厂锅炉 PM _{2.5} 排放危害度评价模型建立及案例分析	史妍婷,杜谦,高建民,边昕,王知涛,董鹤鸣,韩强,曹阳 (470)
中国南海大气降水化学特征	肖红伟,龙爱民,谢露华,肖化云,刘丛强 (475)
临安本底站酸雨长期观测特征分析	李正泉,马浩,毛裕定,冯涛 (481)
北京城区大气氮湿沉降特征研究	贺成武,任玉芬,王效科,毛宇翔 (490)
烟雾箱与数值模拟研究苯和乙苯的臭氧生成潜势	贾龙,徐永福 (495)
祁连山老虎沟 12 号冰川积雪中飞灰颗粒物的特征	董志文,秦大河,秦翔,杜志恒,陈记祖,任贾文 (504)
生活垃圾填埋场作业面恶臭散发率研究	羌宁,王红玉,赵爱华,袁文祥,邵俊,陈檬 (513)
生物滴滤塔处理苯酚气体研究	何觉聪,黄倩茹,陈洲洋,叶纪宏,罗雨薇,魏在山 (520)
国 V 柴油机燃用丁醇-柴油混合燃料颗粒粒径分布特性试验研究	楼狄明,徐宁,范文佳,张涛 (526)
翻堆频率对猪粪条堆肥过程温室气体和氨气排放的影响	赵晨阳,李洪枚,魏源送,钟佳,郑嘉嘉,韩圣慧,万合峰 (533)
CuBr ₂ 分解缓释-膜催化对零价汞的氧化性能研究	胡林刚,瞿赞,晏乃强,郭永福,谢江坤,贾金平 (541)
浙闽沿海岸域总溶解态无机锡的分布及影响因素研究	张许州,任景玲,刘宗广,樊孝鹏,刘诚刚,吴莹 (547)
基于双向算法的湖库允许纳污负荷量计算及案例	贾海峰,郭羽 (555)
北京平原区第四系地下水污染风险评价	郭高轩,李宇,许亮,李志萍,杨庆,许苗娟 (562)
不同季节辽河口营养盐的河口混合行为	张晋华,于立霞,姚庆祯,田琳 (569)
太湖南运河入湖河口沉积物氮素分布特征	马久远,王国祥,李振国,张佳,周锋,魏宏农,欧媛 (577)
亚热带地区潜流人工湿地木本植物筛选与净化潜力评价	陈永华,吴晓芙,郝君,陈明利,朱光玉 (585)
潜流人工湿地基质结构与水力特性相关性研究	白少元,宋志鑫,丁彦礼,游少鸿,何珊 (592)
凤眼莲对铜绿微囊藻生长及藻毒素与营养盐释放的影响	周庆,韩士群,严少华,宋伟,刘国峰 (597)
不同预氧化剂对长江原水氯(胺)化 DBPs 生成潜能的影响	田富箱,徐斌,荣蓉,陈英英,张天阳,朱贺振 (605)
溴化十六烷基吡啶改性沸石对水中菲的吸附作用	李佳,林建伟,詹艳慧,陈祖梅,王鹏钧 (611)
四环素光催化降解特性与选择性研究	宋晨怡,尹大强 (619)
微生物电解系统生物阴极的硫酸盐还原特性研究	符诗雨,刘广立,骆海萍,张仁铎,章莹颖 (626)
市政污水 A/DAT-IAT 系统中溶解性有机物表征与生态安全	杨赛,周启星,华涛 (633)
膜-生物反应器处理高盐废水膜面污染物特性研究	李彬,王志刚,安莹,吴志超 (643)
臭氧-曝气生物滤池组合工艺处理石化二级出水的试验研究	刘明国,吴昌永,周岳溪,高祯,王佩超,杨琦,董德 (651)
厌氧生物法处理果胶废水的研究	陈兵兵,杨春平,黎想,代传花,彭蓝艳 (657)
氧氟沙星在碳纳米管上的吸附机制研究	赵兴兴,于水利,王哲 (663)
平菇菌糠对废水中铜离子的生物吸附性能	胡晓婧,戴婷婷,顾海东,金羽,曲娟娟 (669)
基于流态化作用的吸附反应动力学和穿透特征	王君,王瑶,黄星,袁益龙,陈瑞晖,周航,周丹丹 (678)
广州城市污泥中重金属形态特征及其生态风险评价	郭鹏然,雷永乾,蔡大川,张涛,吴锐,潘佳钊 (684)
中国农田土壤重金属富集状况及其空间分布研究	张小敏,张秀英,钟大洋,江洪 (692)
废旧电容器封存点土壤中的 PCBs 污染特征和健康风险评价	周玲莉,吴广龙,薛南冬,杨兵,李发生,丁琼,周丹丹,燕云仲,刘博,韩宝禄 (704)
深圳市表层土壤多环芳烃污染及空间分异研究	章迪,曹善平,孙建林,曾辉 (711)
洋河流域万全段重金属污染风险及控制对策	谭冰,王铁宇,朱朝云,李奇峰,徐笠,吕永龙 (719)
施用组配固化剂对盆栽土壤重金属交换态含量及在水稻中累积分布的影响	曾卉,周航,邱琼瑶,廖柏寒 (727)
螯合剂复配对实际重金属污染土壤洗脱效率影响及形态变化特征	尹雪,陈家军,吕策 (733)
<i>Pseudomonas</i> sp. QJX-1 的锰氧化特性研究	周娜娜,柏耀辉,梁金松,罗金明,刘锐平,胡承志,袁林江 (740)
$n(\text{NO}_3^- - \text{N})/n(\text{NO}_2^- - \text{N})$ 对混培养菌与纯培养菌同步脱氮除硫的影响	陈子爱,陈会娟,魏本平,刘刚金,邓良伟,吴力斌 (746)
杭州市空气微生物群落碳代谢特征研究	龚婵娟,许晶,方治国,楼秀芹,欧阳志云 (753)
鼠李糖脂逆胶束体系中纤维素酶的后萃研究	赵艳鸽,袁兴中,黄华军,崔凯龙,彭馨,彭子原,曾光明 (759)
黄海常见鱼类体内汞含量的种内和种间差异研究	朱艾嘉,许战洲,柳圭泽,邓丽杰,方宏达,黄良民 (764)
3 种 PAEs 对蚯蚓的毒性作用和组织酶活性影响的研究	王艳,马泽民,吴石金 (770)
新型保水剂应用于土壤-小白菜系统的环境安全评价	李希,贺纪正,郑袁明,郑明兰 (780)
黄河三角洲翅碱蓬湿地硫化氢和羧基硫排放动态研究	李新华,郭洪海,杨丽萍,朱振林,孙晓青 (786)
农田土壤 N ₂ O 产生的关键微生物过程及减排措施	朱永官,王晓辉,杨小茹,徐会娟,贾炎 (792)
《环境科学》征订启事 (691) 《环境科学》征稿简则 (800) 信息 (489,519,591,791)	

春节期间南京市大气气溶胶粒径分布特征

王红磊¹, 朱彬^{1*}, 沈利娟^{1,2}, 刘晓慧¹, 张泽锋¹, 杨洋¹

(1. 南京信息工程大学中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室, 南京 210044; 2. 嘉兴市环境保护监测站, 嘉兴 314001)

摘要: 为研究春节期间燃放烟花爆竹对城市大气气溶胶数浓度粒径谱分布的影响, 对 2012 年 1 月 19 ~ 31 日南京大气气溶胶数浓度、污染气体浓度和质量浓度进行了观测分析。结果表明, 烟花爆竹的燃放期间 10 ~ 20 nm 气溶胶浓度远低于非燃放期, 50 ~ 100、100 ~ 200 和 200 ~ 500 nm 数浓度有较大增加, 20 ~ 50 nm 和 0.5 ~ 10 μm 气溶胶数浓度变化不大。烟花爆竹的燃放对气溶胶数浓度谱影响较大, 非燃放期数浓度谱为双峰型分布; 在燃放期数浓度谱为单峰性分布, 且峰值向大粒径段偏移。烟花爆竹燃放期间质量浓度谱为双峰型分布, 对细粒子的质量浓度影响较大, 燃放期间 $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ 和 $\text{PM}_{1.0}/\text{PM}_{10}$ 的值可升高 10%。烟花爆竹的大量燃放对 1.0 ~ 2.1 μm 粒径段气溶胶密度影响最大, 对其他粒径段密度影响较小。

关键词: 春节; 燃放爆竹; 气溶胶; 数浓度; 质量浓度; 南京

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)02-0442-09

Size Distributions of Aerosol During the Spring Festival in Nanjing

WANG Hong-lei¹, ZHU Bin¹, SHEN Li-juan^{1,2}, LIU Xiao-hui¹, ZHANG Ze-feng¹, YANG Yang¹

(1. Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China; 2. Jiaxing Environmental Monitoring Station, Jiaxing 314001, China)

Abstract: In order to investigate the firework burning impacts on spectrum distribution of atmospheric aerosol during the Spring Festival in Nanjing, number concentration and mass concentration of aerosol as well as mass concentration of gas pollutants were measured during January 19-31, 2012. The results indicated that the concentration of aerosol between 10-20 nm decreased, aerosol concentration in the range of 50-100 nm, 100-200 nm and 200-500 nm increased during the firework burning period comparing to those during the non-burning period. However, there was no obvious variation for aerosol between 20-50 nm and 0.5-10 μm . The spectrum distribution of number concentration was bimodal during the non-burning period and unimodal during the burning period, with the peak value shifting to large diameter section. The mass concentration presented a bimodal distribution, the value of $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ and $\text{PM}_{1.0}/\text{PM}_{10}$ increased by 10% during the burning period. The firework burning events had big influence on the density of aerosol between 1.0-2.1 μm .

Key words: Spring Festival; firework burning; aerosol; number concentration; mass concentration; Nanjing

近年来, 针对短时间空气污染事件及其对人类健康影响的关注越来越多^[1~5]。烟花爆竹的集中燃放可产生大量 SO_2 、 NO_x 、CO、 O_3 、重金属离子、有机物以及可吸入细粒子, 可在短时间导致空气质量急剧恶化^[6~10], 并对人类健康造成长期影响^[11~13]。然而目前对烟花爆竹燃放烟雾的理化特性的研究相对较少。Mönkkönen 等^[14]对新德里 2002 年排灯节期间烟花爆竹大量燃放, 3 ~ 800 nm 气溶胶谱分布研究发现期间气溶胶几乎全部为积聚模态粒子; Agus 等^[15]发现在 2008 年英国利兹篝火节燃放烟花爆竹期间核模态和小粒径爱根核模态粒子浓度非常低, 较大粒径爱根核模态和积聚模态浓度非常高; Zhang 等^[4]在 2009 年上海春节期间也发现气溶胶数浓度多集中在 100 ~ 500 nm。印度排灯节期间, Kulshrestha 等^[16]发现 Ba、K、Al 和 Sr 分别上升了 1091、25、18 和 15 倍; Babu^[17]发现黑炭浓度增加了 3 倍以上; Ravindra 等^[18]发现 SO_2 、 NO_2 、 PM_{10} 、

TSP 增加了 2 ~ 10 倍。Wang 等^[19]发现北京 2006 年春节期一次组分 Ba、K、Sr、 Cl^- 、Pb、Mg 和二次组分 $\text{C}_5\text{H}_6\text{O}_4^{2-}$ 、 $\text{C}_3\text{H}_2\text{O}_4^{2-}$ 、 $\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$ 、 $\text{C}_4\text{H}_4\text{O}_4^{2-}$ 、 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 均比非燃放期增加了 5 倍。Fleischer 等^[20]和 Dyke 等^[21]认为燃放烟花可能产生包括致癌的多氯代二苯并-对-二噁英 (PCDDs) 和六氯代苯呋喃等 (PCDFs) 等有毒的有机物。

近年来, 我国针对气溶胶数浓度粒径分布及来源等方面开展了大量的研究, 段菁春等^[22]研究发现

收稿日期: 2013-06-01; 修订日期: 2013-07-22

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41275143); 公益性行业 (气象) 科研专项 (GYHY201206011); 江苏省高校自然科学基金研究重大基础研究项目 (12KJA170003); 江苏省“333”高层次人才培养工程项目; 江苏省“六大人才高峰”计划; 教育部留学回国人员科研启动基金项目; 中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室开放基金项目 (KDW1103); 江苏高校研究生创新计划项目 (CX12_0497); 江苏省江苏高校优势学科建设工程项目 (PAPD)

作者简介: 王红磊 (1988 ~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为大气环境与大气化学, E-mail: hongleiwang_2009@163.com

* 通讯联系人, E-mail: binzhu@nuist.edu.cn

广州灰霾期间颗粒物态 PAHs 存在明显的季节变化差异,且其来源存在显著的季节性特征;谭吉华等^[23]研究发现大气颗粒物、OC 和 EC 在积聚模态的大幅度增长是广州形成灰霾天气的重要原因。段菁春等^[24]发现北京不同功能区气溶胶的来源存在显著差异;于兴娜等^[25]发现雾霾天气期间气溶胶的散射反照率随光学厚度增大表现出增大趋势,但对波长变化表现不敏感。赵素平等^[26]研究发现兰州夏秋季 0.5 ~ 20 μm 气溶胶数浓度谱呈单峰分布,并且不同源和气象条件影响下的体积浓度谱分布差异较大。南京市作为长江三角洲重要城市之一,近年来针对城市大气气溶胶污染也进行了大量的观测研究^[27~30],但是对于燃放烟花爆竹对气溶胶数浓度粒径分布的影响的研究还很罕见。本研究使用南京市 2012 年春节前后 10 nm ~ 10 μm 气溶胶数浓度、污染气体浓度和质量浓度的观测数据,并结合气象要素数据,详细探讨了烟花爆竹的燃放对气溶胶粒径谱分布特性的影响,这在以往研究中较少涉及,以期为进一步认识烟花爆竹对大气环境影响机制提供依据。

1 材料与方法

1.1 观测点和实验实施

观测点位于南京信息工程大学气象楼(N32.207, E118.717)12 楼中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室,其东面 500 m 左右是宁六路,双向六车道。实验室东南方约 900 m 是南京龙王山风景区,海拔约为 100 m。观测点西侧为南京信息工程大学校园主体,北侧为盘城镇住宅区和农田,没有明显的污染排放源。

EMS 污染气体监测系统和 WPS 位于气象楼 12 楼实验室,海拔 62 m,观测时间为 2012 年 1 月 19 日 09:30 ~ 2012 年 2 月 1 日 00:00。安德森采样器位于气象楼 12 楼外接阳台,海拔 62 m,观测时间为 2012 年 1 月 21 ~ 28 日,采样时间为 09:00 ~ 次日 08:30。 β 射线测尘仪放置在 12 楼楼顶,进气口海拔 67 m,观测时间为 2012 年 1 月 19 日 ~ 2 月 1 日。

1.2 仪器和分析方法

气溶胶数浓度观测仪器使用美国 MSP 公司生产的宽范围颗粒粒径谱仪(WPS),测量直径在 0.01 ~ 10 μm 之间的气溶胶粒子数浓度。仪器主要由静电分级器(DMA)、凝结核计数器(CPC)和激光颗粒物分光计(LPS)3 部分组成,前两者的测量范围为 0.01 ~ 0.5 μm ,后者为 0.35 ~ 10 μm 。由于测量原

理的不同,因此在其交叉测量范围内(0.35 ~ 0.5 μm)的观测值也有所差异。观测中使用的时间分辨率为 5 min,即 5 min 内仪器扫描 0.01 ~ 10 μm 粒径范围并测量出气溶胶粒子的个数。根据观测的实施情况,由于 WPS 适应的环境湿度为 0 ~ 90%、非冷凝,经数据处理后剔除无效数据。

污染气体的观测采用美国 Thermo Scientific 公司的 EMS 系统(包括 42i 化学发光 NO-NO₂-NO_x 分析仪、49i 紫外发光 O₃ 分析仪、43i 脉冲荧光 SO₂ 分析仪和 48i 气体滤光相关法 CO 分析仪)。EMS 系统采用的是传统的点式监测方法,分别采用化学发光法、紫外发光法、脉冲荧光法和气体滤波相关红外吸收法测量大气中 NO_x、O₃、SO₂ 和 CO 的浓度,该方法对仪器内部温度的依赖性较强。这些仪器均通过零气校准和标准气体校准,均符合美国 EPA 的技术规格(Environmental Protection Agency, <http://www.epa.gov/ttn/amtic/criteria.html>)。

质量浓度的观测使用 Andersen-II 型 9 级撞击采样器,观测使用特氟隆滤膜,得到每一级的质量浓度。采样前后均将滤膜进行恒温恒湿处理后称重,称重使用瑞士 Mettler Toledo MX5 型微量天平,每次称量前用标准砝码进行仪器校准。采样前后滤膜的重量差即为采集的颗粒物重量。PM_{1.0} 浓度的观测使用 FH62C14 型 β 射线测尘仪,仪器采用 C-14 密封发射源来感知堆积在移动滤带上的尘粒,由美国热电公司生产,时间分辨率为 0.5 h,该仪器使用前已标定,符合美国 EPA 的技术规格(<http://www.epa.gov/ttn/amtic/criteria.html>)。

2 结果与讨论

2.1 春节期间烟花爆竹燃放对数浓度的影响

气溶胶的粒径分布特征决定了它们在大气中的滞留时间以及物理、化学特性,通过对气溶胶颗粒物的数浓度谱和化学组成等的研究可以确定气溶胶颗粒物的来源信息。在本文中将观测到的 10 nm ~ 10 μm 粒径范围的气溶胶分为 7 个粒径段进行讨论:10 ~ 30 nm(核模态),30 ~ 50 nm 和 50 ~ 100 nm(爱根核模态),100 ~ 200 nm、200 ~ 500 nm 和 0.5 ~ 1.0 μm (积聚模态),1 ~ 10 μm (粗模态)。

Zhang 等^[4]在上海研究发现春节烟花爆竹燃放期间 100 ~ 500 nm 气溶胶数浓度有明显的升高;Agus 等^[15]研究发现,烟花爆竹的燃放可以产生大量的积聚模态粒子;Rissler 等^[31]也发现在亚马逊雨林旱季生物质燃烧也会出现积聚模态粒子浓度的

剧升现象. 因此,本研究依据 100 ~ 500 nm 的积聚模态粒子浓度变化将观测期间分为 1 月 19 日 09:00 ~ 1 月 21 日 08:00 降雪前未燃放烟花爆竹期(简称降雪前), 1 月 21 日 10:00 ~ 1 月 22 日 02:00 为持续降雪阶段未观测气溶胶数浓度, 1 月 22 日 15:00 ~ 1 月 24 日 12:00 为除夕烟花爆竹集中燃放期, 1 月 24 日 12:00 ~ 1 月 28 日 02:00 为春节假期烟花爆竹零星燃放期, 1 月 28 日 02:00 ~ 1 月 31 日 24:00 为烟花爆竹燃放后.

由图 1(a)可发现降雪对 0.5 ~ 10 μm 气溶胶粒子有显著的清除作用, 0.5 ~ 1.0 μm 和 1.0 ~ 10 μm 平均数浓度降雪前分别为 126 cm^{-3} 和 7

cm^{-3} ,降雪后分别为 47 cm^{-3} 和 2 cm^{-3} ,可见降雪过程对 0.5 ~ 1.0 μm 和 1.0 ~ 10 μm 气溶胶的清除作用几乎相同. 烟花爆竹的燃放对该 0.5 ~ 10 μm 气溶胶数浓度贡献较少, 0.5 ~ 1.0 μm 和 1.0 ~ 10 μm 数浓度在除夕集中燃放期分别为 28 cm^{-3} 和 1 cm^{-3} ,在零星燃放期分别为 68 cm^{-3} 和 3 cm^{-3} ,在燃放后分别为 46 cm^{-3} 和 2 cm^{-3} . 由于粗粒子主要来自机械过程,因此在观测期间粗粒子数浓度变化除与降水过程有关外,还与风速、相对湿度等气象要素有关,由表 1 可知在燃放后虽然风速较大,但是相对湿度也较大,造成粗粒子数浓度比零星燃放期要低.

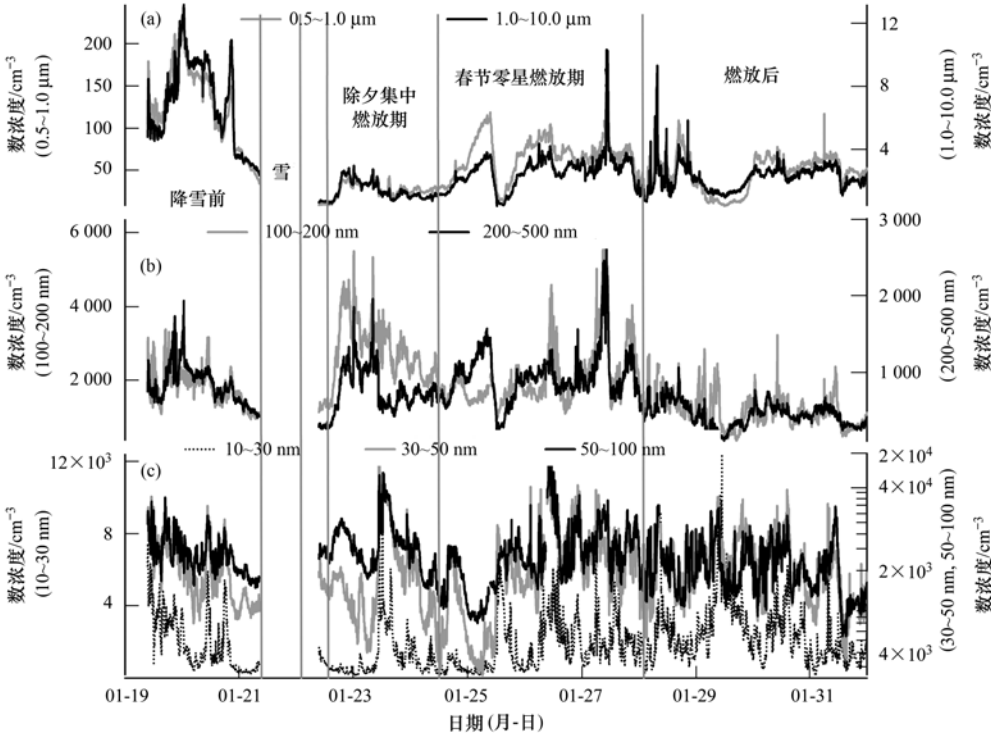


图 1 2012 年 1 月 19 日 ~ 2 月 1 日不同粒径段气溶胶数浓度时间变化

Fig. 1 Temporal variations of number concentration in different size segments of aerosol on Jan. 19-Feb. 1, 2012

表 1 观测期间风速和相对湿度

Table 1 Wind speed and RH during the period of observation in Nanjing

项目	时间	最大值	最小值	中值	标准偏差	平均值
风速/ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	降雪前	4.50	1.62	2.94	0.64	2.86
	除夕	3.28	0.09	1.07	0.67	1.21
	零星燃放	3.95	0.28	1.40	0.76	1.58
	燃放后	4.77	0.45	2.53	0.99	2.49
相对湿度/%	降雪前	87.00	49.22	68.83	9.13	69.04
	除夕	82.00	31.68	63.57	14.44	60.18
	零星燃放	83.87	13.58	48.77	18.60	48.19
	燃放后	81.00	42.45	71.00	14.23	68.24

由图 1(b)可发现烟花爆竹的燃放使得 100 ~ 500 nm 积聚模态粒子的浓度在很短的时间内有大幅度的

增加,在除夕夜短短 3 ~ 4 h 内数浓度即可增加 3 ~ 4 倍, 1 月 22 日 14:00 能见度为 14.64 km,到 20:00 仅

为 4.89 km,能见度在 6 h 内下降了 9.75 km. 因此烟花爆竹的大量燃放可能形成灰霾,并使能见度下降,从而对大气环境和交通造成影响. 100 ~ 200 nm 和 200 ~ 500 nm 数浓度在降雪前分别为 $1\,827\text{ cm}^{-3}$ 和 829 cm^{-3} ,除夕集中燃放期分别为 $2\,934\text{ cm}^{-3}$ 和 791 cm^{-3} ,零星燃放期分别为 $2\,107\text{ cm}^{-3}$ 和 959 cm^{-3} ,燃放后分别为 $1\,172\text{ cm}^{-3}$ 和 443 cm^{-3} .

由图 1(c) 可发现降雪和烟花爆竹的燃放对 10 ~ 100 nm 气溶胶影响相对较小, 10 ~ 30、30 ~ 50 和 50 ~ 100 nm 气溶胶数浓度在降雪前分别为 $1\,922$ 、 $2\,270$ 和 $2\,821\text{ cm}^{-3}$,在除夕集中燃放期分别为 $1\,201$ 、 $2\,353$ 和 $3\,864\text{ cm}^{-3}$,在零星燃放期分别为 $1\,711$ 、 $2\,589$ 和 $3\,103\text{ cm}^{-3}$,在燃放后分别为 $2\,398$ 、 $2\,385$ 和 $2\,235\text{ cm}^{-3}$. 可发现烟花燃放期 10 ~ 30 nm 气溶胶浓度低于非燃放期, 30 ~ 50 nm 数浓度基本没有变化, 50 ~ 100 nm 在集中燃放期较高而在零星燃放期增加较少,由上文分析可知烟花爆竹燃放可产生大量积聚模态粒子,其对核模态粒子的碰并清除作用使得燃放期间超细粒子浓度降低. 此外,烟花爆竹燃放时释放大量的 NO_x 、 SO_2 和 CO 等污染前体气体,加速了超细颗粒的增长过程,这也是造成 10 ~ 30 nm 浓度降低的一个原因.

由图 2 也可明显看出烟花爆竹燃放期间 50 ~ 300 nm 数浓度和污染气体浓度大于非燃放期. 图 2(a) 中可发现在除夕集中燃放期中 100 ~ 200 nm 数浓度全天均较高,而 40 ~ 100 nm 数浓度与气体的变化基本一致,在 00:00 ~ 04:00 和 10:00 ~ 16:00 浓

度明显增加,说明烟花爆竹的燃放也会释放大量的爱根核模态粒子,但是爱根核模态粒子在大气中停留时间较短,容易被积聚模态粒子碰并清除. 由图 2 可发现,在夜晚气溶胶数浓度分布和非燃放期间基本相似,但是在白天烟花爆竹的零星燃放对气溶胶数浓度和气体浓度的影响还十分显著. NO_2 、CO、 O_3 和 SO_2 在除夕集中燃放期的最大浓度分别为 34.24×10^{-9} 、 2.969×10^{-6} 、 22.80×10^{-9} 和 51.12×10^{-9} ,在零星燃放期分别为 27.66×10^{-9} 、 2.119×10^{-6} 、 41.34×10^{-9} 和 44.84×10^{-9} ,在降雪前分别为 28.70×10^{-9} 、 2.180×10^{-6} 、 33.10×10^{-9} 和 26.89×10^{-9} ,在燃放后分别为 28.50×10^{-9} 、 2.060×10^{-6} 、 27.90×10^{-9} 和 28.19×10^{-9} ,结合图 2 可发现烟花爆竹的燃放对 SO_2 的影响最大,对 CO、 NO_2 和 O_3 的影响次之. O_3 和 NO_2 、CO、 SO_2 在除夕集中燃放期为正相关,而在降雪前、零星燃放期和燃放后均为负相关(其中在零星燃放期和 SO_2 为正相关),这表明烟花爆竹的大量燃放期间 O_3 不一定是由 NO_x 、CO 和 SO_2 等前体气体产生而是通过其他途径. Van Kamp 等^[13] 提出的烟花爆竹燃放时产生的大量波长在 240 nm 以下的亮光,这些辐射可以将 O_2 解离为 O,进而使 $\text{O} + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3$ 得以发生. NO_2 、CO、 SO_2 在 4 个时期均互相为正相关,说明这 3 种气体的来源基本相似.

为了了解烟花爆竹的大量燃放对气溶胶数浓度分布的影响,本研究将 1 月 22 日 19:00 ~ 23 日 04:00 定义为燃放期,1 月 19 ~ 21 日和 1 月 23 日 ~

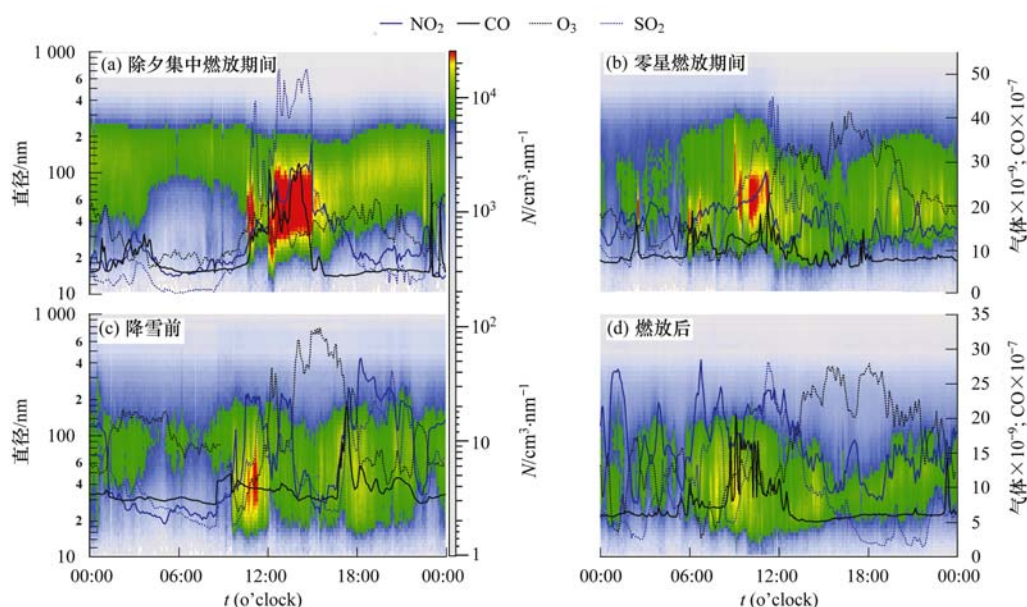


图 2 观测期间 4 个时期平均数浓度时间序列和污染气体时间变化

Fig. 2 Time series of number concentration and time variations of pollution gas concentration during the four observation periods

2月1日的19:00~次日04:00分别定义为燃放前和燃放后,以及给出了2011年12月1日~2012年2月28日相应时间段的气溶胶数浓度变化作为对比,结合图2分析可知在夜晚气溶胶人为源较少,并且夜晚不受光化学过程等的影响,而在除夕夜是烟花爆竹大量集中燃放的时间段,而在非除夕夜该时间段很少有烟花爆竹的大量燃放。由图3可发现烟花燃放前、后和冬季的数浓度谱均为双峰型分布,峰值分别位于40 nm和70 nm,由于1月有多次连续降水过程,因此燃放前、后的数浓度的值要比冬季平均值低,且两个峰值的峰形不明显。而在燃放期气溶胶数浓度谱为单峰性分布,峰值向大粒子段移动,出现在100 nm左右,最大值可达 $15\,097\text{ cm}^{-3}\cdot\text{nm}^{-1}$ 。由图3可发现燃放期50~300 nm气溶胶数浓度急剧升高,10~50 nm数浓度却低于其他时段,原因已在上文分析。

2.2 春节期间烟花爆竹燃放对质量浓度的影响

2.2.1 气溶胶质量浓度谱和 $\text{PM}_{1.0}$ 时间变化

图4(a)中2011年冬季数据为2011年12月在南京采集的5次晴天无污染状况下的平均值,每次连续采集72 h。由图4(a)可知南京市冬季质量浓度谱为三峰型分布,峰值分别位于0.6、5.8和10 μm 。1月23~27日春节燃放期平均质量浓度谱为双峰型分布,峰值位于0.6 μm 和10 μm ; 1月22日

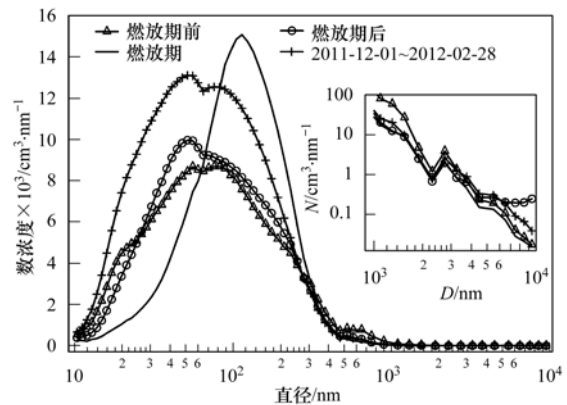


图3 燃放期前、中、后和2011年冬季数浓度谱分布

Fig. 3 Spectrum distributions of number concentration before, during and after the firework burning period and in winter, 2011

除夕和1月20~21日春节前的质量浓度谱谱型一致,为双峰型分布峰值位于0.2 μm 和5.8 μm 。并且在除夕0.2 μm 质量浓度最大,可达 $109.3\text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\mu\text{m})^{-1}$ 。由图4(b)可发现在除夕集中燃放期,2~3 h内 $\text{PM}_{1.0}$ 的浓度就可增加3~4倍,且整个烟花爆竹燃放期 $\text{PM}_{1.0}$ 的浓度均较高,多在 $100\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上。 $\text{PM}_{1.0}$ 在降雪前、降雪期间、除夕集中燃放期、零星燃放期和燃放后的平均浓度分别为92.8、45.6、82.0、94.2和64.4 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,最大浓度分别为207、120、141、223和152 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,中值浓度分别为88、37.5、78.5、94和61 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。在1月

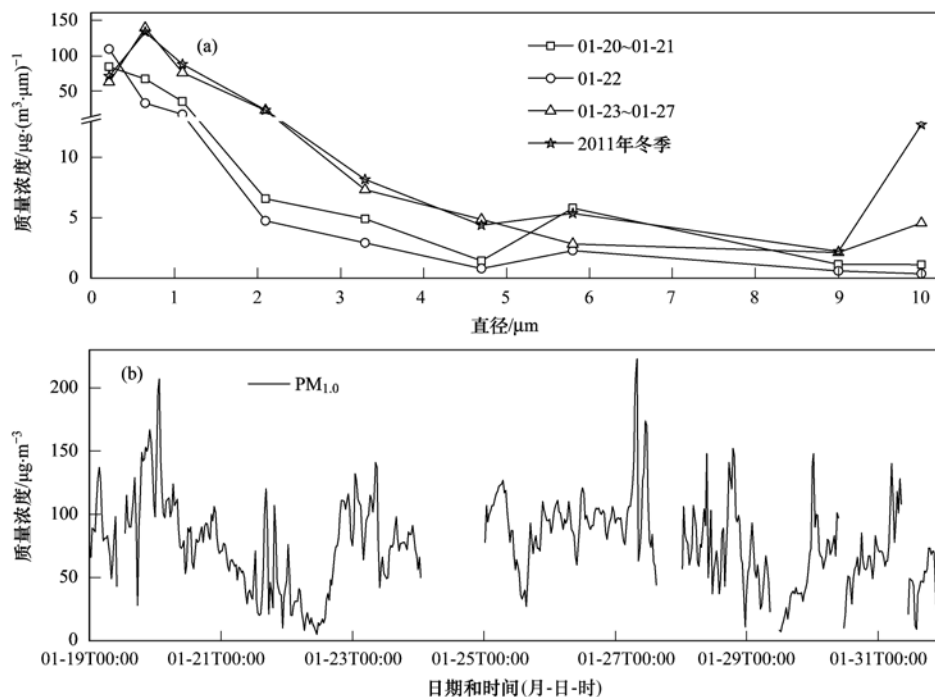


图4 观测期间质量浓度谱和 $\text{PM}_{1.0}$ 时间变化

Fig. 4 Spectrum distributions of mass concentration and time variations of $\text{PM}_{1.0}$ mass concentration during the observation period

22 日 15:00 ~ 1 月 23 日 04:00 $PM_{1.0}$ 的平均值, 最大值和中值浓度分别为 87.5 、 132 和 $91 \mu g \cdot m^{-3}$ 。在降雪前南京几乎一直处于灰霾笼罩之下, 因此 $PM_{1.0}$ 的浓度较高, 而在降雪期间其浓度有明显下降。降雪之后由于烟花爆竹的大量燃放 $PM_{1.0}$ 的浓度在短时间内迅速增加, 之后一直维持在较高浓度。春节假期结束之后工厂和汽车尾气排放逐渐增多, 且该时期内无持续较强的降水过程, 因此在燃放后 $PM_{1.0}$ 的浓度仍然相对较高。

2.2.2 气溶胶粒子密度

本研究虽然可以通过膜采样得到相应的质量浓度, 但是每天仅有一组数据。通过 β 射线测尘仪也只能得到 $PM_{1.0}$ 的时间分辨率为 $0.5 h$ 的质量浓度数据, 因此需要通过现有数据进行质量浓度的换算, 即得到与气溶胶数浓度相对应的气溶胶质量浓度观测数据。首先需要计算气溶胶的密度, 可通过以下公式获得:

$$\rho = \frac{M_{PM_x}}{V_w}$$

式中, $M_{PM_x} (\mu g \cdot m^{-3})$ 是 PM_x 的日平均质量浓度, 通过 9 级碰撞采样器获得; $V_w (\mu m^3 \cdot cm^{-3})$ 是对应粒径范围内气溶胶体积浓度, 通过 WPS 测量得到 (WPS 是假设气溶胶粒子密度为 $1 g \cdot cm^{-3}$ 的球形测得各粒径内气溶胶数浓度, 然后再换算成体积浓度)。因此 $\rho (g \cdot cm^{-3})$ 是由日平均质量浓度除以日平均体积浓度计算得到的日平均密度。

本研究根据采样器的粒径分割尺度, 分别计算了 $10 nm \sim 1.1 \mu m$ 、 $1.1 \sim 2.1 \mu m$ 、 $2.1 \sim 10 \mu m$ 和 $10 nm \sim 10 \mu m$ 粒径段内的 ρ 。由图 5 可发现不同粒径段的气溶胶日平均密度多在 $2.0 \sim 4.0 g \cdot cm^{-3}$ 之间。本研究计算结果比 Zhang 等^[4] 在上海使用环保

部所公布的质量浓度换算的 PM_{10} 的日均密度 ($1.5 \sim 2.0 g \cdot cm^{-3}$), Hänel 等^[32] 在 Mainz 所计算的干气溶胶的密度 ($1.8 \sim 3.0 g \cdot cm^{-3}$), Pitz 等^[33] 在德国爱尔福特所计算的城市气溶胶密度 ($1.0 \sim 2.5 g \cdot cm^{-3}$) 和 Morawska 等^[34] 在澳大利亚昆士兰夏季高湿度条件下测得密度 ($1.2 \sim 1.8 g \cdot cm^{-3}$) 都要高。尤其是 1 月 24 ~ 26 日 $1.1 \sim 2.1 \mu m$ 气溶胶日平均密度分别高达 8.9 、 7.3 和 $8.3 g \cdot cm^{-3}$, 误差较大, 主要因为 WPS 对气溶胶粗粒子的测量效率较低, 因此得到的粗粒子的体积浓度值较低, 造成该粒径段体积浓度存在较大不确定性。此外, 由图 1 可知观测期间出现的连续降水过程对粗粒子的清除作用较大, 因此观测期间 WPS 测量到的粗粒子的浓度非常低; 而由图 4 可发现 23 ~ 27 日 $1.1 \sim 2.1 \mu m$ 气溶胶质量浓度较大, 因此该粒径段换算出的气溶胶密度非常大。这说明通过不同仪器测量结果进行的分段精细化计算由于仪器测量原理及测量精确度的影响会造成不同程度的误差。加之采样点位于南京北郊, 靠近宁六高速公路, 地面扬尘较多, 颗粒物中密度较大如 SiO_2 、 Al_2O_3 、 Fe_2O_3 、 CaO 等地壳成分较多, 高健等^[35] 在上海和北京的观测也证实地面扬尘可能会使得气溶胶粒子密度增大偏高, Hänel 等^[32] 的研究也表明城市郊区气溶胶密度相对偏大。加之采样点位于工业区, 周边南京钢铁厂、华能电厂等排放的气溶胶粒子密度也相对较大, 樊曙先等^[36] 的研究也表明南京江北工业区气溶胶中 Pb、Zn、Mg 和 Si 等元素含量要远大于市区, 这也可能是造成南京气溶胶密度整体偏大原因之一。

1 月 22 日除夕烟花爆竹集中燃放期气溶胶 $10 nm \sim 1.1 \mu m$ 的密度最大, 为 $2.64 g \cdot cm^{-3}$; 是 $1.1 \sim 2.1 \mu m$ ($2.02 g \cdot cm^{-3}$) 的 1.34 倍, 是 $2.1 \sim 10 \mu m$ ($1.56 g \cdot cm^{-3}$) 1.69 倍。而其它时间段中 $10 nm \sim 1.1 \mu m$ 的密度最小, 介于 $2.8 \sim 3.4 g \cdot cm^{-3}$ 之间, 仅是 $1.1 \sim 2.1 \mu m$ ($4.5 \sim 9.0 g \cdot cm^{-3}$) 的 0.45 ; 是 $2.1 \sim 10 \mu m$ ($2.5 \sim 4.8 g \cdot cm^{-3}$) 的 0.82 。烟花爆竹燃放可产生大量的重金属离子, 且产生的颗粒物多集中在 $1 \mu m$ 以下, 因此造成除夕 $10 nm \sim 1.1 \mu m$ 粒径段粒子密度急剧升高, 而 $1.1 \sim 2.1 \mu m$ 粒径段密度变化不大。23 ~ 27 日烟花爆竹燃放密集程度相对 22 日已经减弱很多, 此外气溶胶大粒子一方面碰并吸附了大量的粒子, 另一方面还吸附了空气中因烟花爆竹燃放释放的污染气体和重金属离子等, 因此造成 $1.1 \sim 2.1 \mu m$ 粒径段密度最大。

由图 6(a) 可发现通过换算的日平均密度然后

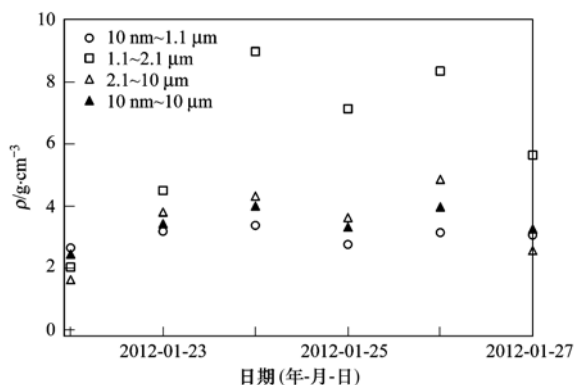


图 5 2012 年 1 月不同粒径段气溶胶日平均密度

Fig. 5 Scatter plot of daily averaged apparent aerosol particle density ρ of different size segments in January, 2012

再用 WPS 观测到的气溶胶的体积浓度换算出的 $PM_{1.0}$ 的质量浓度与实测值的相关性较高, 相关系数可达 0.73, 说明换算出的质量浓度数据基本可以反映真实质量浓度变化. 图 6(b) 给出了换算值相对误差图, 我们假设 β 射线测尘仪测量的数据为真值, WPS 换算出的质量浓度为测量值, 计算得到 WPS 换算出的质量浓度的相对误差. 由图 6(b) 可

发现相对误差 10% 以内的占总数的 30.46%, 相对误差在 10% ~ 20% 占总数的 23.86%, 相对误差在 20% ~ 30% 占总数的 24.37%, 相对误差在 30% ~ 40% 占总数的 14.72%, 相对误差大于 40% 仅占总数的 6.59%. 相对误差在 30% 以内的数据占总数据的 78.78%, 因此说明通过 WPS 换算出的质量浓度相对来说比较准确.

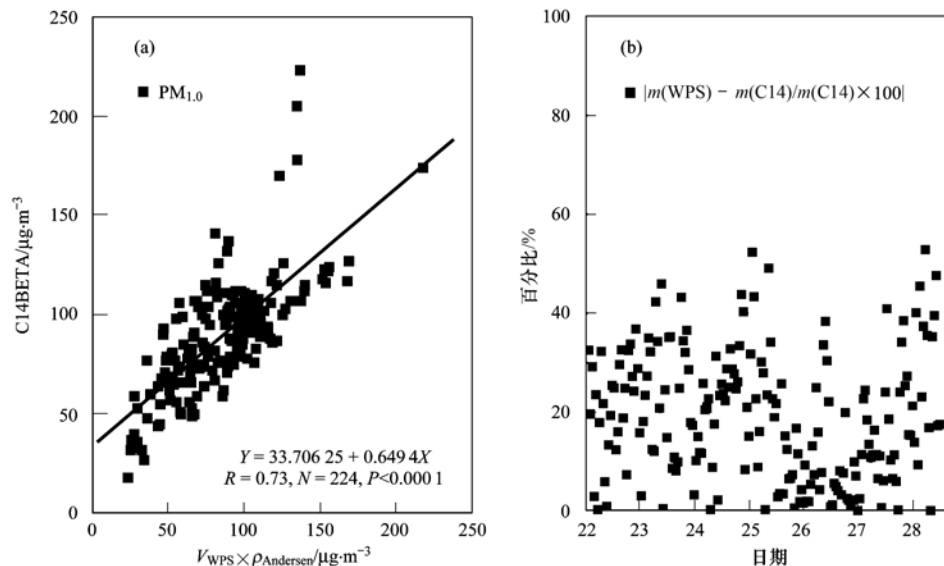


图 6 $PM_{1.0}$ 换算值与实测值相关性和相对误差

Fig. 6 Correlation and relative error between calculated values of $PM_{1.0}$ and the observation values

由图 7(a) 可发现燃放期 $PM_{1.0}$ 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 的质量浓度因为烟花爆竹的大量燃放而在短时间内急剧上升, 在 22 日 19:00 和 23 日 01:00 出现明显的峰值, 由于春节假期一直存在烟花爆竹燃放的现象, 因此浓度均较高. 烟花爆竹的燃放造成 $PM_{1.0}$ 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 的质量浓度在短时间内急剧升高, 但对

城市大气环境的长远影响较小. 由图 7(b) 可较为清晰的看到烟花爆竹对大气气溶胶质量浓度的影响, 1 月 23 日 11:00 和 1 月 24 日 11:00 $PM_{1.0}/PM_{10}$ 和 $PM_{1.0}/PM_{2.5}$ 的值各出现明显的下降, 由上文分析可知烟花爆竹的燃放直接释放的主要是 $< 1 \mu m$ 的粒子, 因此烟花爆竹的直接影响时间较短, 在燃放结

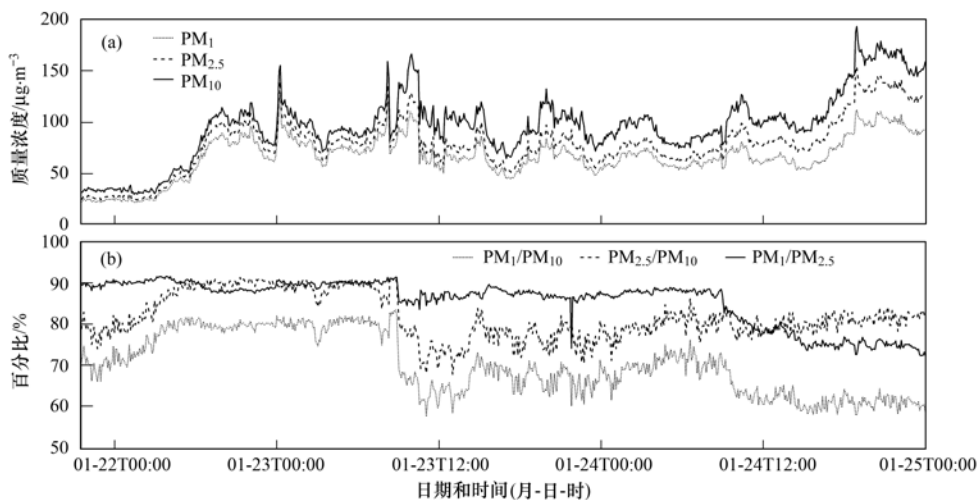


图 7 2012 年 1 月 22 ~ 25 日 PM_1 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 的质量浓度换算值及其比值的百分比时间变化

Fig. 7 Temporal variations of calculated values of PM_1 , $PM_{2.5}$ and PM_{10} mass concentration and their ratios on Jan. 22-25, 2012

束几小时内就消散. 但是由图 7(b) 可发现 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 的值除了在 23 日中午有一明显下降外, 此后一直处于缓慢上升趋势, 主要是因为 $1\ \mu m$ 以下粒子增长所造成, 即烟花爆竹燃放的间接影响持续的时间较长, 对 $PM_{2.5}$ 的影响较大. 由图 7(b) 可发现燃放期 $PM_{1.0}$ 和 $PM_{2.5}$ 在 PM_{10} 中的比例明显上升, 但是在春节燃放烟花时 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 和 $PM_{1.0}/PM_{10}$ 的值均升高了 10% 左右, 分别达到 90% 和 80%. $PM_{1.0}$ 在 $PM_{2.5}$ 中的比例受烟花爆竹的影响较小, 主要是烟花爆竹造成细粒子增加, 使得 $PM_{1.0}$ 和 $PM_{2.5}$ 同时增加.

3 结论

(1) 烟花爆竹燃放期间 10 ~ 20 nm 气溶胶浓度远低于非燃放期, 20 ~ 50 nm 数浓度基本没有变化, 50 ~ 100 nm 在集中燃放期较高而在零星燃放期增加较少, 100 ~ 200 nm 和 200 ~ 500 nm 数浓度有较大增加, 0.5 ~ 10 μm 气溶胶数浓度几乎没有变化.

(2) 烟花爆竹燃放对气溶胶数浓度谱影响较大, 非燃放期数浓度谱分布为双峰型分布, 峰值位于 40 nm 和 70 nm; 在燃放期中数浓度谱为单峰性分布, 峰值向大粒径段偏移出现在 100 nm, 数浓度最大值可达到 $15\ 097\ cm^{-3}\cdot nm^{-1}$.

(3) 烟花爆竹燃放期间质量浓度谱为双峰型分布, $PM_{1.0}$ 的质量浓度在降雪前、降雪期间、除夕集中燃放期、零星燃放期和燃放后的平均浓度分别为 92.8、45.6、82.0、94.2 和 $64.4\ \mu g\cdot m^{-3}$.

(4) 烟花爆竹的大量燃放使得气溶胶粒子密度增大, 对 1.0 ~ 2.1 μm 粒径段密度影响最大, 对其他粒径段密度影响较小. 烟花爆竹的燃放使得气溶胶质量浓度在短时间内急剧上升, 对细粒子的质量浓度影响较大, 燃放期间 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 和 $PM_{1.0}/PM_{10}$ 的值可升高 10%.

参考文献:

- [1] Katsouyanni K, Touloumi G, Spix C, *et al.* Short-term effects of ambient sulphur dioxide and particulate matter on mortality in 12 European cities: results from time series data from the APHEA project. *Air pollution and health: a european approach* [J]. *British Medical Journal*, 1997, **314**(7095): 1658-1663.
- [2] Schwartz J. Air pollution and hospital admissions for respiratory disease [J]. *Epidemiology*, 1996, **7**(1): 20-28.
- [3] Pope C, Burnett R, Thun M, *et al.* Lung cancer, cardiopulmonary mortality and long-term exposure to fine particulate air pollution [J]. *Journal of the American Medical Association*, 2002, **287**(9): 1132-1141.
- [4] Zhang M, Wang X, Chen J, *et al.* Physical characterization of aerosol particles during the Chinese New Year's firework events [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(39): 5191-5198.
- [5] Yorifuji T, Kashima S, Tsuda T, *et al.* Long-term exposure to traffic-related air pollution and mortality in Shizuoka, Japan [J]. *Occupational and Environmental Medicine*, 2010, **67**(2): 111-117.
- [6] Drewnick F, Hings S S, Curtius J, *et al.* Measurement of fine particulate and gas-phase species during the New Year's fireworks 2005 in Mainz, Germany [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(23): 4316-4327.
- [7] Stein S W, Turpin B J, Cai X P, *et al.* Measurements of relative humidity-dependent bounce and density for atmospheric particles using the DMA-Impactor technique [J]. *Atmospheric Environment*, 1994, **28**(10): 1739-1746.
- [8] Vecchi R, Bernardoni V, Cricchio D, *et al.* The impact of fireworks on airborne particles [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(6): 1121-1132.
- [9] Shi Y, Zhang N, Gao J, *et al.* Effect of fireworks display on perchlorate in air aerosols during the Spring Festival [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(6): 1323-1327.
- [10] Attri A K, Kumar U, Jain V K. Microclimate: formation of ozone by fireworks [J]. *Nature*, 2001, **411**(6841): 1015.
- [11] Witsaman R J, Comstock R D, Smith G A. Pediatric fireworks-related injuries in the United States; 1990-2003 [J]. *Pediatrics*, 2006, **118**(1): 296-303.
- [12] Ravindra, Mittal A K, Van Grieken R. Health risk assessment of urban suspended particulate matter with special reference to polycyclic aromatic hydrocarbons: A review [J]. *Reviews on Environmental Health*, 2001, **16**(3): 169-189.
- [13] Van Kamp I, Van Der Velden P G, Stellato R K, *et al.* Physical and mental health shortly after a disaster: first results from the Enschede firework disaster study [J]. *The European Journal of Public Health*, 2006, **16**(3): 252-258.
- [14] Mönkkönen P, Koponen I K, Lehtinen K E J, *et al.* Death of nucleation and Aitken mode particles: observations at extreme atmospheric conditions and their theoretical explanation [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2004, **35**(6): 781-787.
- [15] Agus E L, Lingard J J N, Tomlin A S. Suppression of nucleation mode particles by biomass burning in an urban environment: a case study [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2008, **10**(8): 979-988.
- [16] Kulshrestha U C, Nageswara Rao T, Azhagavel S, *et al.* Emissions and accumulation of metals in the atmosphere due to crackers and sparkles during Diwali festival in India [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**(27): 4421-4425.
- [17] Babu S S, Moorthy K K. Anthropogenic impact on aerosol black carbon mass concentration at a tropical coastal station: a case study [J]. *Current Science*, 2001, **81**(9): 1208-1214.
- [18] Ravindra K, Mor S, Kaushik C P. Short-term variation in air quality associated with firework events: A case study [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2003, **5**(2): 260-264.
- [19] Wang Y, Zhuang G, Xu C, *et al.* The air pollution caused by the burning of fireworks during the lantern festival in Beijing

- [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(2): 417-431.
- [20] Fleischer O, Wichmann H, Lorenz W. Release of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans by setting off fireworks [J]. *Chemosphere*, 1999, **39**(6): 925-932.
- [21] Dyke P, Coleman P, James R. Dioxins in ambient air, bonfire night 1994[J]. *Chemosphere*, 1997, **34**(5-7): 1191-1201.
- [22] 段菁春, 谭吉华, 盛国英, 等. 广州灰霾期间颗粒态 PAHs 的污染特征及来源[J]. *环境科学*, 2009, **30**(6): 1574-1579.
- [23] 谭吉华, 段菁春, 赵金平, 等. 广州市灰霾期间大气颗粒物中有机碳和元素碳的粒径分布[J]. *环境化学*, 2009, **28**(2): 267-271.
- [24] 段菁春, 李兴华, 谭吉华, 等. 北京冬季大气颗粒物数浓度的粒径分布特征及来源[J]. *环境科学研究*, 2009, **22**(10): 1134-1140.
- [25] 于兴娜, 李新妹, 登增然登, 等. 北京雾霾天气期间气溶胶光学特性[J]. *环境科学*, 2012, **33**(4): 1057-1062.
- [26] 赵素平, 余晔, 陈晋北, 等. 兰州市夏秋季颗粒物谱分布特征研究[J]. *环境科学*, 2012, **33**(3): 687-693.
- [27] 王红磊, 朱彬, 沈利娟, 等. 南京市夏季大气气溶胶新粒子生成事件分析[J]. *环境科学*, 2012, **33**(3): 701-710.
- [28] 樊曙先, 黄红丽, 顾凯华, 等. 雾过程对大气气溶胶 PM₁₀ 中多环芳烃粒径分布的影响[J]. *高等学校化学学报*, 2010, **31**(12): 2375-2382.
- [29] 王飞, 朱彬, 康汉青, 等. APS-SMPS-WPS 对南京夏季气溶胶数浓度的对比观测[J]. *中国环境科学*, 2011, **31**(9): 1416-1423.
- [30] 尚倩, 李子华, 杨军, 等. 南京冬季大气气溶胶粒子谱分布及其对能见度的影响[J]. *环境科学*, 2011, **32**(9): 2750-2760.
- [31] Rissler J, Vestin A, Swietlicki E, *et al.* Size distribution and hygroscopic properties of aerosol particles from dry-season biomass burning in Amazonia [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2006, **6**(2): 471-491.
- [32] Hänel G, Thudium J. Mean bulk densities of samples of dry atmospheric aerosol-particles e summary of measured data [J]. *Pure and Applied Geophysics*, 1977, **115**(4): 799-803.
- [33] Pitz M, Cyrus J, Karg E, *et al.* Variability of apparent particle density of an urban aerosol [J]. *Environmental Science and Technology*, 2003, **37**(19): 4336-4342.
- [34] Morawska L, Johnson G, Ristovski Z, *et al.* Relation between particle mass and number for submicrometer airborne particles [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(13): 1983-1990.
- [35] 高健, 周杨, 王进, 等. WPSTM-TEOMTM-MOUDITM 的对比及大气气溶胶密度研究[J]. *环境科学*, 2007, **28**(9): 1929-1934.
- [36] 樊曙先, 樊建凌, 郑有飞, 等. 南京市市区与郊区大气 PM_{2.5} 中元素含量的对比分析[J]. *中国环境科学*, 2005, **25**(2): 146-150.

CONTENTS

Form of the Particulate Matter Ambient Air Standards in China	WANG Shuai, DING Jun-nan, WANG Rui-bin, <i>et al.</i> (401)
Seasonal Variation of Carcinogenic Heavy Metals in PM _{2.5} and Source Analysis in Beijing	TAO Jun, ZHANG Ren-jian, DUAN Jing-chun, <i>et al.</i> (411)
Temporal and Spatial Distribution of PM _{2.5} and PM ₁₀ Pollution Status and the Correlation of Particulate Matters and Meteorological Factors During Winter and Spring in Beijing	ZHAO Chen-xi, WANG Yun-qi, WANG Yu-jie, <i>et al.</i> (418)
Inversion and Spatial-Temporal Distribution Analysis on PM _{5.0} Inhalable Particulate in Beijing	WANG Yan-hui, XIAO Yao (428)
Characterization of Ultrafine Particle Size Distribution in the Urban Atmosphere of Hangzhou in Spring	XIE Xiao-fang, SUN Zai, YANG Wen-jun (436)
Size Distributions of Aerosol During the Spring Festival in Nanjing	WANG Hong-lei, ZHU Bin, SHEN Li-juan, <i>et al.</i> (442)
Size Distributions of Organic Carbon and Elemental Carbon in Nanjing Aerosol Particles	WU Meng-long, GUO Zhao-bing, LIU Feng-ling, <i>et al.</i> (451)
Characterization of Organic and Elemental Carbon in PM ₁₀ in Xinzhou City	SHI Mei-xian, PENG Lin, LIU Xiao-feng, <i>et al.</i> (458)
Seasonal Variation of Concentrations and Distribution Characteristics of PCDD/Fs in Atmosphere of an Industrial Area, Guangzhou	QING Xian, SU Yuan, SU Qing, <i>et al.</i> (464)
Hazard Evaluation Modeling of Particulate Matters Emitted by Coal-Fired Boilers and Case Analysis	SHI Yan-ting, DU Qian, GAO Jian-min, <i>et al.</i> (470)
Chemical Characteristics of Precipitation in South China Sea	XIAO Hong-wei, LONG Ai-min, XIE Lu-hua, <i>et al.</i> (475)
Analysis of Acid Rain Characteristics of Lin'an Regional Background Station Using Long-term Observation Data	LI Zheng-quan, MA Hao, MAO Yu-ding, <i>et al.</i> (481)
Characteristics of Atmospheric Nitrogen Wet Deposition in Beijing Urban Area	HE Cheng-wu, REN Yu-fen, WANG Xiao-ke, <i>et al.</i> (490)
Studies of Ozone Formation Potentials for Benzene and Ethylbenzene Using a Smog Chamber and Model Simulation	JIA Long, XU Yong-fu (495)
Characteristics of Fly Ash Particles Deposition in the Snowpack of Laohugou Glacier No. 12 in Western Qilian Mountains, China	DONG Zhi-wen, QIN Da-he, QIN Xiang, <i>et al.</i> (504)
Odor Emission Rate of Municipal Solid Waste from Landfill Working Area	QIANG Ning, WANG Hong-yu, ZHAO Ai-hua, <i>et al.</i> (513)
Gaseous Phenol Removal in a Bio-Trickling Filter	HE Jue-cong, HUANG Qian-ru, CHEN Zhou-yang, <i>et al.</i> (520)
Particulate Distribution Characteristics of Chinese Phrase V Diesel Engine Based on Butanol-Diesel Blends	LOU Di-ming, XU Ning, FAN Wen-jia, <i>et al.</i> (526)
Effects of Turning Frequency on Emission of Greenhouse Gas and Ammonia During Swine Manure Windrow Composting	ZHAO Chen-yang, LI Hong-mei, WEI Yuan-song, <i>et al.</i> (533)
Oxidation of Mercury by CuBr ₂ Decomposition Under Controlled-Release Membrane Catalysis Condition	HU Lin-gang, QU Zan, YAN Nai-qiang, <i>et al.</i> (541)
Distributions and Influencing Factors of Total Dissolved Inorganic Antimony in the Coastal Area of Zhejiang and Fujian	ZHANG Xu-zhou, REN Jing-ling, LIU Zong-guang, <i>et al.</i> (547)
Calculation of Allowable Pollution Loads for Lake and Reservoir Based on Bi-direction Algorithm and Its Case Study	JIA Hai-feng, GUO Yu (555)
Risk Assessment of Quaternary Groundwater Contamination in Beijing Plain	GUO Gao-xuan, LI Yu, XU Liang, <i>et al.</i> (562)
Mixing Behavior of Nutrients in Different Seasons at Liaohe Estuary	ZHANG Jin-hua, YU Li-xia, YAO Qing-zhen, <i>et al.</i> (569)
Distribution of Nitrogen in the Sediment of Taige South River Estuary	MA Jiu-yuan, WANG Guo-xiang, LI Zhen-guo, <i>et al.</i> (577)
Selection and Purification Potential Evaluation of Woody Plant in Vertical Flow Constructed Wetlands in the Subtropical Area	CHEN Yong-hua, WU Xiao-fu, HAO Jun, <i>et al.</i> (585)
Correlation of Substrate Structure and Hydraulic Characteristics in Subsurface Flow Constructed Wetlands	BAI Shao-yuan, SONG Zhi-xin, DING Yan-li, <i>et al.</i> (592)
Impacts of <i>Eichhornia crassipes</i> (Mart.) Solms Stress on the Growth Characteristics, Microcystins and Nutrients Release of <i>Microcystis aeruginosa</i>	ZHOU Qing, HAN Shi-qun, YAN Shao-hua, <i>et al.</i> (597)
Effects of Different Pre-oxidants on DBPs Formation Potential by Chlorination and Chloramination of Yangtze River Raw Water	TIAN Fu-xiang, XU Bin, RONG Rong, <i>et al.</i> (605)
Adsorption of Phenanthrene from Aqueous Solution on Cetylpyridinium Bromide (CPB)-Modified Zeolite	LI Jia, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (611)
Characteristics and Selectivity of Photocatalytic-Degradation of Tetracycline Hydrochloride	SONG Chen-yi, YIN Da-qiang (619)
Characterization of Biocatalysed Sulfate Reduction in a Cathode of Microbial Electrolysis System	FU Shi-yu, LIU Guang-li, LUO Hai-ping, <i>et al.</i> (626)
Characteristics of Dissolved Organic Matter in A/DAT-IAT System for Municipal Wastewater Treatment Based on Ecological Safety	YANG Sai, ZHOU Qi-xing, HUA Tao (633)
Membrane Surface Fouling Properties in MBRs for High-Salinity Wastewater Treatment	LI Bin, WANG Zhi-wei, AN Ying, <i>et al.</i> (643)
Treatment of Petrochemical Secondary Effluent by Ozone-biological Aerated Filter	LIU Ming-guo, WU Chang-yong, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i> (651)
Treatment of Pectin Wastewater by Anaerobic Biological Process	CHEN Bing-bing, YANG Chun-ping, LI Xiang, <i>et al.</i> (657)
Sorption Mechanism of Ofloxacin by Carbon Nanotubes	ZHAO Xing-xing, YU Shui-li, WANG Zhe (663)
Biosorption Characteristics of Cu ²⁺ by Spent Substrate of <i>Pleurotus</i> Oyster	HU Xiao-jing, ZANG Ting-ting, GU Hai-dong, <i>et al.</i> (669)
Adsorption Dynamics and Breakthrough Characteristics Based on the Fluidization Condition	WANG Jun, WANG Yao, HUANG Xing, <i>et al.</i> (678)
Characteristics of Speciation and Evaluation of Ecological Risk of Heavy Metals in Sewage Sludge of Guangzhou	GUO Peng-ran, LEI Yong-qian, CAI Da-chuan, <i>et al.</i> (684)
Spatial Distribution and Accumulation of Heavy Metal in Arable Land Soil of China	ZHANG Xiao-min, ZHANG Xiu-ying, ZHONG Tai-yang, <i>et al.</i> (692)
Pollution Patterns and Health Risk Assessment for Polychlorinated Biphenyls in Soils from a Capacitor Storage Site	ZHOU Ling-li, WU Guang-long, XUE Nan-dong, <i>et al.</i> (704)
Occurrence and Spatial Differentiation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Soils from Shenzhen, China	ZHANG Di, CAO Shan-ping, SUN Jian-lin, <i>et al.</i> (711)
Risk Assessment and Countermeasures of Heavy Metals Pollution in Wanquan Segment of Yanghe River	TAN Bing, WANG Tie-yu, ZHU Zhao-yun, <i>et al.</i> (719)
Effects of Group Matching Curing Agent on Exchangeable Pb, Cd, Zn Contents in the Potted Soils and their Accumulation in Rice Plants	ZENG Hui, ZHOU Hang, QIU Qiong-yao, <i>et al.</i> (727)
Impact of Compound Chelants on Removal of Heavy Metals and Characteristics of Morphologic Change in Soil from Heavy Metals Contaminated Sites	YIN Xue, CHEN Jia-jun, LÜ Ce (733)
Characterization of Manganese Oxidation by <i>Pseudomonas</i> sp. QJX-1	ZHOU Na-na, BAI Yao-hui, LIANG Jin-song, <i>et al.</i> (740)
Effects of the Ratio of NO ₃ ⁻ -N to NO ₂ ⁻ -N on the Removal of Sulfide and Nitrogen by Mixed Culture and Pure Culture	CHEN Zi-ai, CHEN Hui-juan, WEI Ben-ping, <i>et al.</i> (746)
Carbon Metabolic Characteristics of Airborne Microbes in Hangzhou	GONG Chan-juan, XU Jing, FANG Zhi-guo, <i>et al.</i> (753)
Study on the Backward Extraction of Cellulase in Rhammopolipid Reverse Micelles	ZHAO Yan-ge, YUAN Xing-zhong, HUANG Hua-jun, <i>et al.</i> (759)
Inner- and Inter-Species Differences of Mercury Concentration in Common Fishes from the Yellow Sea	ZHU Ai-jia, XU Zhan-zhou, LIU Gui-ze, <i>et al.</i> (764)
Study on the Effect of Enzymatic Activity and Acute Toxicity of Three PAEs on <i>Eisenia foetida</i>	WANG Yan, MA Ze-min, WU Shi-jin (770)
Environmental Safety Assessment on the New Super Absorbent Polymers Applied into a Soil-Chinese Cabbage System	LI Xi, HE Ji-zheng, ZHENG Yuan-ming, <i>et al.</i> (780)
Study on Dynamics of Hydrogen Sulfide and Carbonyl Sulfide Emission Fluxes from <i>Suaeda salsa</i> Marsh in the Yellow River Estuary	LI Xin-hua, GUO Hong-hai, YANG Li-ping, <i>et al.</i> (786)
Key Microbial Processes in Nitrous Oxide Emissions of Agricultural Soil and Mitigation Strategies	ZHU Yong-guan, WANG Xiao-hui, YANG Xiao-ru, <i>et al.</i> (792)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2014年2月15日 35卷 第2期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 2 Feb. 15, 2014

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行