

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第8期

Vol.37 No.8

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

中国地区二次有机气溶胶的时空分布特征和来源分析 陈卓,刘峻峰,陶玮,陶澍 (2815)

中国民用煤燃烧排放细颗粒物中重金属的清单 刘海彪,孔少飞,王伟,严沁 (2823)

基于长时间序列的北京 PM_{2.5}浓度日变化及气象条件影响分析 苗蕾,廖晓农,王迎春 (2836)

2004~2015年北京市清洁点臭氧浓度变化特征 程念亮,李云婷,张大伟,陈添,魏强,孙彤卉,王步英,富佳明,何乐为,程兵芬,皮帅,马立光,崔继宪,孟凡 (2847)

抗战胜利70周年大阅兵期间石家庄大气细颗粒物在线来源解析 周静博,李治国,路娜,徐曼,杨鹏,高康宁,王建国,靳伟 (2855)

成都平原大气颗粒物中无机水溶性离子污染特征 蒋燕,贺光艳,罗彬,陈建文,王斌,杜云松,杜明 (2863)

嘉兴市春季一次持续雾霾过程中气象条件与污染物变化特征分析 沈利娟,王红磊,李莉,吕升,袁婧,张孝寒,章国骏,王翡 (2871)

泉州市大气降尘中金属元素污染特征及来源解析 张棕巍,胡恭任,于瑞莲,刘贤荣,胡起超,王晓明 (2881)

城市室内灰尘重金属水平、影响因素及健康风险:以贵阳市为例 李晓燕,汪浪,张舒婷 (2889)

桂林市酸雨变化特征及来源分析 郭雅思,于爽,黎泳珊,孙平安,何若雪 (2897)

农田土壤施用系列新型氮肥后气态氮(NH₃和N₂O)减排效果比较:以夏玉米季为例 范会,姜姗姗,魏茨,蒋静艳 (2906)

青海南部高原积雪期与生长季高寒草甸土壤CO₂、CH₄和N₂O通量的观测 吴建国,周巧富 (2914)

三峡库区香溪河秋末至中冬CO₂和CH₄分压特征分析 张军伟,雷丹,肖尚斌,张成,穆晓辉,刘佳,李迎晨 (2924)

气候变化对于桥水库总磷与溶解氧的潜在影响分析 张晨,刘汉安,高学平,张文娜 (2932)

三峡库区小流域土地利用结构变化及其氮素输出控制效应:以兰陵溪小流域为例 吴东,黄志霖,肖文发,曾立雄,韩黎阳 (2940)

入湖河流水质对土地利用时空格局的响应研究:以洱海北部流域为例 项颂,庞燕,储昭升,胡小贞,孙莉,薛力强 (2947)

库湾营养盐循环对三峡库区营养盐运输的影响:以草堂河为例 王晓彤,罗光富,操满,王雨春,汪福顺,邓兵 (2957)

农田溪流人工深潭地貌格局暂态存储特征分析 李如忠,黄青飞,钱靖,殷晓曦,韦林 (2964)

农田排水沟渠水体-底泥中溶质氮分布特征试验研究 李强坤,胡亚伟,宋常吉,彭聪 (2973)

三峡库区典型消落带土壤微生物生物量碳、氮的变化特征及其影响因素探讨 柴雪思,雷利国,江长胜,黄哲,范志伟,郝庆菊 (2979)

重金属在河口区潮汐界面与盐度界面响应规律研究 刘静,郑丙辉,刘录三,马迎群,林岗璇,汪星,夏阳 (2989)

深圳地区全氟辛酸磺酸的环境多介质迁移和归趋行为研究 崔晓宇,张鸿,罗骥,张若冰 (3001)

柘林湾表层沉积物中有机氯农药的分布特征及生态风险评价 卫亚宁,潘佳钊,宋玉梅,郭鹏然,王毅 (3007)

北运河水体中荧光溶解性有机物空间分布特征及来源分析 陈永娟,胡玮璇,庞树江,王晓燕 (3017)

昌邑滨海湿地沉积物的放射性核素水平与环境指示意义 王启栋,宋金明,李学刚,袁华茂,李宁,曹磊 (3026)

甬醇对南山老龙洞地下水粪便污染的指示 廖昱,孙玉川,王尊波,梁作兵,张远瞩 (3034)

漳沱河冲洪积扇地下水中酞酸酯的污染现状与分布特征 昌盛,赵兴茹,刘琰,耿梦娇,乔翠琴 (3041)

雨季不同土地利用下表层岩溶泉中脂肪酸来源分析 张媚,孙玉川,谢正兰,余琴,赵瑞一,梁作兵 (3049)

Zn系LDHs覆膜改性人工湿地沸石基质除磷机制 张翔凌,黄华玲,郭露,陈巧珍,阮聪颖,冷玉洁 (3058)

Ce³⁺与Cu²⁺协同强化芬顿体系氧化苯酚的效能与机制研究 张剑桥,迟惠中,宋阳,罗从伟,江进,马军 (3067)

Pt/生物炭电极反应器处理水中腐殖酸的研究 丁文川,向星光,曾晓岚,厉晓宇,梁国强, M. M. Mian (3073)

石墨烯-TiO₂光催化剂复合板制备及其对五氯酚的催化降解 徐琪,周泽宇,王洪涛 (3079)

单偶氮染料AY17的光催化降解动力学及机制 阳海,魏宏庆,胡乐天,胡倩,阳立平,刘华杰,易翔,易兵 (3086)

硫自养反硝化处理高含氟光伏废水可行性 马航,朱强,朱亮,李祥,黄勇,魏凡凯,杨朋兵 (3094)

膜曝气-生物膜反应器生物强化处理阿特拉津废水运行性能 刘春,于长富,张静,陈晓轩,张磊,杨景亮 (3101)

ABR工艺ANAMMOX耦合短程硝化协同脱氮处理城市污水 吴鹏,张诗颖,宋吟玲,徐乐中,沈耀良,张婷 (3108)

活性污泥厌氧Fe(III)还原氨氧化现象初探 李祥,林兴,杨朋兵,黄勇,刘恒蔚 (3114)

低浓度氨氮废水单级自养脱氮EGSB反应器的快速启动 顾书军,方芳,李凯,刘勇,郭劲松,陈猷鹏,蒋甫阳 (3120)

超低溶解氧条件下的EBPR系统除磷性能 马娟,宋璐,俞小军,李璐,孙雷军,孙洪伟,李光银 (3128)

活性污泥表面性质对絮凝沉降性能与出水悬浮物的影响 何志江,赵媛,张源凯,王洪臣,齐鲁,尹训飞,张晓军 (3135)

山东省典型金矿区土壤重金属空间特征分析与环境风险评估 王菲,吴泉源,吕建树,董玉龙,曹文涛,康日斐,曹见飞 (3144)

电子垃圾拆解区土壤重金属空间异质性及分布特征 赵科理,傅伟军,叶正钱,戴巍 (3151)

我国18种不同理化性质的土壤对硒酸盐的吸附解吸作用研究 冯璞阳,李哲,者渝芸,黄杰,梁东丽 (3160)

流动搅动法研究针铁矿对亚砷酸盐的吸附特征 李鑫,杨军,饶伟,王代长,杜光辉,化党领,刘世亮,刘红恩 (3169)

聚羟基铝柱撑硅藻土的制备及其对水溶液中Cu²⁺、Zn²⁺的吸附特性 朱健,雷明婧,王平,张伟丽,陈仰 (3177)

新型污泥基吸附材料制备及其氨氮去除性能评价 王文东,刘荟,张银婷,杨生炯 (3186)

纳米复合水凝胶的制备及其对重金属离子的吸附 朱倩,李正魁,张一品,韩华杨,王浩 (3192)

鼠李糖脂与β-环糊精复合提取预测污染土壤中PAHs的生物有效性 张亚楠,杨兴伦,卞永荣,谷成刚,王芳,王代长,蒋新 (3201)

不同磷水平下丛枝菌根真菌对纳米氧化锌生物效应的影响 景新新,苏志忠,邢红恩,王发园,石兆勇,刘雪琴 (3208)

中美水生生物基准受试物种敏感性差异研究 王晓南,闫振广,余若祯,王婉华,陈丽红,刘征涛 (3216)

贫营养和痕量抗生素对质粒抗生素抗性适应度代价的影响 林文芳,陈胜,万堃,王春明,林惠荣,于鑫 (3224)

不同氨水平下间作对玉米土壤硝化势和氨氧化微生物数量的影响 吕玉,周龙,龙光强,汤利 (3229)

《环境科学》征订启事(3025) 《环境科学》征稿简则(3057) 信息(3072, 3085, 3143)

基于长时间序列的北京 $PM_{2.5}$ 浓度日变化及气象条件影响分析

苗蕾^{1,2}, 廖晓农^{2*}, 王迎春³

(1. 中国气象科学研究院, 北京 100081; 2. 中国气象局北京城市气象研究所, 北京 100089; 3. 北京市气象局, 北京 100089)

摘要: 基于 2005 ~ 2014 年北京宝联(城区)和上甸子大气成分本底站(郊区)监测结果得到了 $PM_{2.5}$ 质量浓度日变化特征, 并且讨论了气象条件的影响. 结果表明, 北京城区 $PM_{2.5}$ 质量浓度 10 年平均值的日变化呈双峰分布, 对应早晚出行高峰. 但是, 该特征在 2007 年以后才比较明显. 月际(季节)变化表现为单峰与双峰之间、日最大值在早高峰与晚高峰之间的转换. 一年中早峰值浓度在 5 ~ 8 月最高, 与地面风速小、相对湿度以及水汽压(空气绝对含水量)较高有关, 该季节晚高峰期间浓度变化相对较小主要受混合层较厚、地面风速大、降雨天气发生频繁的影响. 11 ~ 12 月和 1 ~ 2 月的 16:00 以后浓度明显升高, 混合层顶高度在 14:00 ~ 17:00 大幅度下降是重要的影响因素. 此外, 严重和重度污染日 09:00 以后污染加重, 与年平均值和中度污染日不同. 边界层偏南风对来自周边地区高架源的污染物输送是其重要的影响机制. $PM_{2.5}$ 质量浓度日变化幅度随污染加重而增大. 日最大风速和相对湿度日变化对浓度日变化幅度有影响, 而且午后地面出现 $4 \sim 6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 的偏南风也会加大日变化幅度. 北京郊区 $PM_{2.5}$ 质量浓度多年平均值日变化呈单峰分布, 日最大值超前于城区. 而且, 昼间的浓度在 5 ~ 7 月高于冬季. 本研究结果将有助于细化不利扩散条件下的污染减排方案.

关键词: $PM_{2.5}$ 质量浓度; 中度以上污染日; 日变化; 混合层顶高度; 水汽压; 风速; 南风输送

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)08-2836-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.2016.08.003

Diurnal Variation of $PM_{2.5}$ Mass Concentration in Beijing and Influence of Meteorological Factors Based on Long Term Date

MIAO Lei^{1,2}, LIAO Xiao-nong^{2*}, WANG Ying-chun³

(1. China Academy of Meteorological Science, Beijing 100081, China; 2. Institute of Urban Meteorology, China Meteorological Administration, Beijing 100089, China; 3. Beijing Meteorological Bureau, Beijing 100089, China)

Abstract: Diurnal variation of $PM_{2.5}$ mass concentration is analyzed based on data of BAOLIAN (representing urban area) and SAHNDIANZI BAP-Station (representing rural area) from 2005 to 2014. Furthermore, the influence of meteorological factors was also discussed. The results showed that 10-year-average diurnal variation of $PM_{2.5}$ mass concentration in urban area had a two-peak pattern being coincident with rush-hour. However, it became clear only after 2007. The monthly (including seasonal) variation presented the change from one-peak pattern to two-peak pattern with the max mass concentration appearing in the morning or late afternoon during rush hour. The mass concentration in the morning rush hour reached its maximum between May and August which was to some degree related with weak wind and high relative humidity as well as great water vapor pressure (indicating the absolute water content in the air). But the smaller variety of mass concentration in the late afternoon attributed to the thicker mixing layer, higher wind speed and more showers. By contraries, it went up greatly after 4 pm in Nov., Dec., Jan. and Feb.. One of the reasons was that the height of mixing layer top decreased sharply. Besides, in some severely and seriously polluted days, the $PM_{2.5}$ mass concentration increased after morning rush hour till afternoon which was different from the mean pattern and that in moderately polluted day. The main mechanism attributed to the aerosol from aerial source around brought by south wind to Beijing. The more severe the pollution was, the greater the daily concentration fluctuated. The range of $PM_{2.5}$ diurnal variation was determined by the max wind speed and daily change of relative humidity in a day. Besides, it also extended the diurnal variation of concentration when the south wind speed reached $4 \sim 6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ in the afternoon. In rural area, the mean diurnal variation of $PM_{2.5}$ mass concentration showed a one-peak pattern. And the time of concentration reaching its maximum was ahead of that of urban area. Moreover, the values in the day time during May and July were higher than that in winter. These results would be helpful to make policy for finer emission control when the atmosphere is in lower diffusivity situation.

Key words: $PM_{2.5}$ mass concentration; pollution day in moderate grade or over; diurnal variation; height of mixing layer top; water vapor pressure; wind speed; south wind transportation

收稿日期: 2015-12-27; 修订日期: 2016-03-08

基金项目: 国家科技支撑计划项目(2014BAC16B04); 国家级雾霾监测与预报团队建设项目

作者简介: 苗蕾(1992 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为环境气象, E-mail: miaolei620@126.com

* 通讯联系人, E-mail: cristinxn@126.com

PM_{2.5} 是空气动力学直径小于 2.5 μm 的颗粒物, 当其浓度较高时不仅导致能见度下降^[1-4], 而且由于 PM_{2.5} 可以直接通过呼吸道进入肺部并沉积, 因此对人类的健康构成了威胁. 2015 年 11 月底至 12 月北京市 2 次启动空气重污染红色预警, 采取了包括相关企业停产或限产、机动车 03:00 ~ 24:00 分单双号行驶等一系列减排措施. 如何科学、有效地遏制重污染事件进一步发展是目前社会普遍关注的焦点问题之一.

日变化是一种基本的时间演变特征, 揭示 PM_{2.5} 质量浓度在一日中的升降规律有助于解析排放源对于细颗粒物污染的贡献. 有研究表明, 大中城市 PM_{2.5} 质量浓度的日变化年平均值通常呈双峰分布, 多数情况下两个峰值浓度对应早晚出行高峰, 午后浓度较低^[5-29]. 但是, 峰值出现的时间、两个峰值的相对大小会有差异. 其中, 昼间的高峰最晚出现在正午^[12], 第二个峰值也可推后到凌晨^[16]. 有些研究发现早高峰期间浓度上升并不明显^[10], 日最大值与第二个峰值重叠^[6,10]; 而一些研究指出^[13,19,24-26], 早晨的浓度为一天中最高. 此外, PM_{2.5} 质量浓度夜间的变化趋势也有较大差别, 包括相对平稳^[10,21] 和明显下降^[8,12,16,23,25,26,30] 两种类型. 一些地区浓度的日变化曲线在 4 个季节相似^[5,15,16,21], 但是北京、珠三角、郑州等地却有季节性差异^[7,12,20,23,25]. 郑州市只有冬季为双峰分布, 其他 3 个季节均为单峰^[20]. 珠三角春夏季日变化规律性较差, 秋季为单峰分布, 谷值出现在 12:00, 20:00 浓度最高, 只有冬季有两个峰值^[22]. 对于北京地区日变化特征的多数研究结果表明, 季节性差异主要表现为峰值的前后移动、浓度是昼高夜低还是夜高昼低^[7,12,23]. 王京丽等^[23] 还发现 2001 年春季小风日 11:00 前后有一个峰值, 并认为与沙尘天气有关. Zhao 等^[28] 指出, 北京郊区的 PM_{2.5} 质量浓度日变化为一日单波, 最小值和最大值分别出现在 10:00 和 19:00, 与城区不同. 上述日变化的差异除了与城市排放有关外, 还受研究者的采样时间、资料的长度和采样地点的影响. 为了更全面地反映 PM_{2.5} 质量浓度日变化特征, 有必要开展基于长时间序列的分析得到具有统计意义的结果.

气象条件是影响空气污染的重要因素之一. PM_{2.5} 质量浓度与地面相对湿度和温度正相关, 与地面风速反相关^[5,6,13,16,19]. 然而, 董雪玲等^[30] 发现北京地区盛夏只有当相对湿度超过 70% 时, 浓度随湿度增大的特征才比较明显. 重庆市北碚的 PM_{2.5} 质

量浓度与相对湿度的相关性在冬季最强、夏季较弱. 目前, 相关性分析较多地采用计算 PM_{2.5} 质量浓度与气象要素序列的相关系数, 利用气象条件解释浓度日变化中的一些现象却比较少.

本文采用 2005 ~ 2014 年 PM_{2.5} 质量浓度监测结果并结合地面气象要素、风廓线雷达等多种观测资料, 分析了北京城区和郊区 PM_{2.5} 质量浓度多年平均分布以及年际和月际演变特征, 并且给出了中度、重度和严重这 3 个等级污染日细颗粒物浓度的平均日变化, 研究了混合层厚度、降水发生的频率、水汽压、边界层风的分布等对于早晚浓度峰值的季节性差异、严重和重度污染日早晨到午后污染持续加重等特殊现象的可能影响. 本研究结果有助于了解各个季节、不同程度污染日排放与气象条件叠加对于 PM_{2.5} 污染的作用, 以期制定重污染事件发生期间科学的、精细化的减排、限行方案将有所帮助.

1 材料与方法

选取了北京市气象局所属的、监测时间最长的两个大气成分测站(图 1)的小时值分析 PM_{2.5} 质量浓度的时间演变特征. 其中, 宝联站位于北京市海淀区(代表城区), 资料为 2005 年 1 月 1 日至 2014 年 12 月 31 日. 另一个测站为上甸子大气本底站, 其海拔高度 287 m, 位于北京市东北部的密云县, 代表北京较清洁地区的情况. 由于该测站 2005 年缺测较严重, 基于保持资料连续性的考虑剔除了其 2005 年的监测结果. 两个测站均采用美国 R&P 公司生产的 1400a TEOM 微量振荡天平环境颗粒物监测仪测量 PM_{2.5} 质量浓度. 本研究将 00:00 定为日

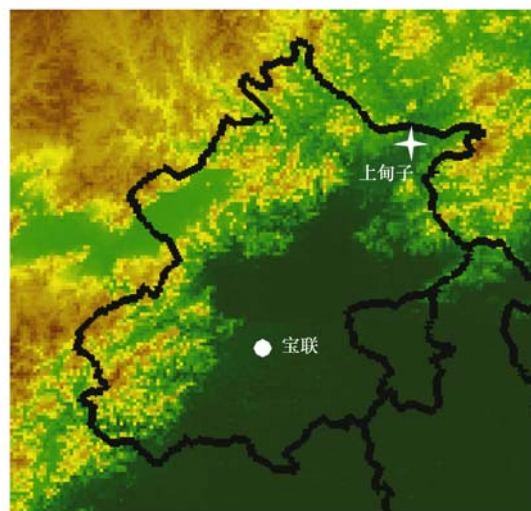


图 1 PM_{2.5} 测站位置示意

Fig. 1 Location of PM_{2.5} measurement stations

界,若某日小时浓度连续缺测超过 8 个时次,则剔除该日,否则对缺测时次进行插值处理. 普查表明,两个测站出现长时间连续缺测时前后时次的 $PM_{2.5}$ 小时浓度一般低于 $35 \mu g \cdot m^{-3}$,因此删除该日记录不会影响本文中重度以上污染日数的统计结果. 当小时浓度明显偏高并超过 2σ 时,若非沙尘日,则认为是奇异高值记为缺测,并采用与缺测时次相同的处理方法. 此外,由于春节期间集中燃放烟花爆竹会导致污染物浓度在短时间内陡升至每立方米几百甚至上千微克,从而影响 $PM_{2.5}$ 浓度日变化的正常分布,因此剔除了春节集中燃放日的记录.

本研究使用的地面气象资料来自北京海淀气象站的人工观测和自动站记录. 风廓线雷达也位于海淀气象站,它是一部频率为 1 290 MHz、探测高度 3 540 m 的边界层雷达,测风资料的垂直分辨率为 60 ~ 120 m,时间分辨率 6 min,本文使用了 2008 ~ 2014 年每小时的整点探测数据. 上述观测站点与宝联大气成分监测站之间的距离均在 80 km 之内,符合气象观测的空间代表性原则^[31]. 此外,本研究采用罗氏法计算混合层厚度^[32~34].

2 $PM_{2.5}$ 质量浓度日变化的长时间统计特征

2.1 城区

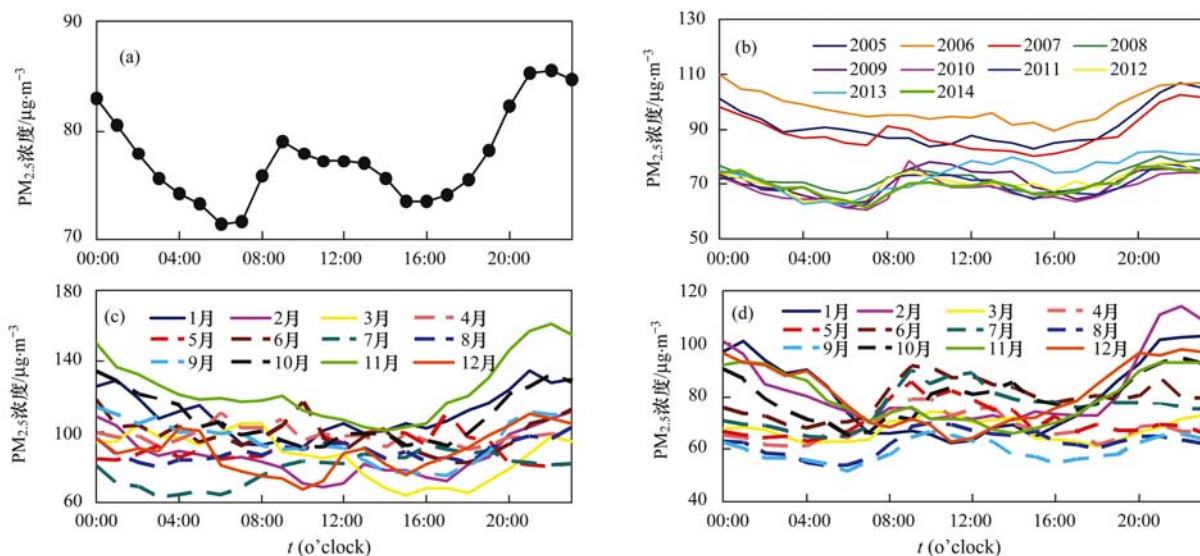
2.1.1 平均日变化

2005 ~ 2014 年宝联(城区) $PM_{2.5}$ 小时质量浓度平均值日变化呈双峰分布[图 2(a)]. 日最小值出现在 06:00 ~ 07:00,此后浓度升高并于 09:00 达到

峰值后降低,直到 15:00 出现另一个谷值. 15:00 以后浓度再次增加,22:00 达到日最大值,夜间浓度逐时减小,上述演变趋势符合人类排放的规律并且与国内外大城市以及利用北京地区早期监测资料得到的统计结果一致,但是日最大值和最小值出现的时间以及形态分布(如傍晚以后高值持续时间等)却不完全相同^[5,6,14,15,22,23,26~28,30],说明北京城区 $PM_{2.5}$ 浓度的日演变不仅具有自身的特点,而且随时间也在发生着变化,反映了不同城市以及同一城市不同年代排放源和气象条件存在着差异.

2.1.2 日变化的年际差异

北京城区 $PM_{2.5}$ 质量浓度日变化特征在 2007 年以后发生了较大的变化[图 2(b)]. 按照浓度水平可将近 10 年分为 2 个阶段: 2005 ~ 2007 年 $PM_{2.5}$ 小时浓度较高,其中 2006 年污染最重; 2008 ~ 2014 年浓度日变化曲线向下平移,即浓度整体降低,而且年际差异小. 上述两个阶段 $PM_{2.5}$ 质量浓度的日变化特征明显不同. 2005 ~ 2006 年,浓度夜高昼低,日变化主要为单波,10:00 ~ 13:00 浓度小幅升高,与上甸子多年平均值有些相似,日最小值出现在 15:00 ~ 16:00. 2007 年日变化特征发生了改变,08:00 出现小峰值,09:00 ~ 15:00 浓度降低. 2008 年以后双峰分布特征明显,早晨浓度升高的持续时间延长至 3 ~ 4 h. 而且,日最小值出现的时间也由午后变成早晨 06:00 ~ 07:00. 夜间浓度降低与人类活动减少有关,日最小值的改变则可能是北京地区冬季供暖由燃煤改为燃气从而减少了二氧化硫等一次污染物



(a) 2005 ~ 2014 年平均; (b) 逐年平均; (c) 2005 ~ 2006 年月平均; (d) 2007 ~ 2014 年月平均

图 2 宝联 $PM_{2.5}$ 质量浓度平均日变化

Fig. 2 Mean diurnal pattern of $PM_{2.5}$ mass concentration at BAOLIAN Station

排放的结果. 上述两个阶段日变化差异主要体现在是否有早峰值.

2.1.3 日变化的月平均分布

北京城区 $PM_{2.5}$ 浓度日变化存在明显的月际(季节)差异, 而且月平均分布随时间发生着变化 [图 2(c) 和 2(d)]. 2005 ~ 2006 年, 1 ~ 3 月和 10 ~ 12 月夜间 $PM_{2.5}$ 浓度高, 10:00 ~ 13:00 一般小幅上升. 06:00 ~ 09:00 浓度升高仅在 5 ~ 8 月相对明显. 日最大值通常出现在午夜之前, 而且冬季夜间的浓度高于夏季. 2007 ~ 2014 年, 11 月至次年 2 月以单峰为主, 从下午 14:00 ~ 15:00 开始浓度升高, 日最大值出现在 21:00 ~ 22:00, 06:00 ~ 09:00 变化相对较平缓, 浓度昼低夜高. 此外, 12 月和 1 月在 10:00 ~ 14:00 期间浓度小幅升高. 3 ~ 4 月早晨浓度上升并出现峰值, 而傍晚以后的高峰浓度却逐月降低, 早、晚两个峰值由持平转为前者更高. 5 ~ 8 月日最大值出现在早晨, 而傍晚到前半夜浓度的变化幅度一般较小. 9 ~ 10 月, 早峰值降低, 前半夜浓

度最高. 因此, $PM_{2.5}$ 浓度日变化特征的季节改变主要表现为单峰与双峰之间、浓度日最大值在早高峰与晚高峰之间的交替. 此外, 夜间的浓度在 11 月至次年 1 月期间最高、在 7 ~ 9 月最低; 昼间平均浓度在 5 ~ 7 月和 10 月较高、在隆冬较低. 上述分析表明, 近 10 年北京城区 $PM_{2.5}$ 质量浓度日变化始终存在月分布差异, 2007 ~ 2014 年的 3 ~ 10 月 06:00 ~ 09:00 浓度出现峰值、5 ~ 8 月甚至达到日最大值的特征明显, 也是与 2005 ~ 2006 年日变化的主要区别, 反映了近 10 年城市排放发生的变化对空气质量的影响, 但是在季节或月的时间尺度上仍然不能建立浓度日变化季节性转变与人类排放源之间严格的对应关系, 从而再次证明 $PM_{2.5}$ 浓度的日变化特征可能与气象条件存在着相关性.

2.1.4 $PM_{2.5}$ 质量浓度的日变化幅度

北京城区 $PM_{2.5}$ 浓度日变化幅度年平均值的年际差异较小, 污染较重的年份幅度略大. 秋、冬季 $PM_{2.5}$ 浓度一般较高, 浓度的日波动幅度也最大; 8

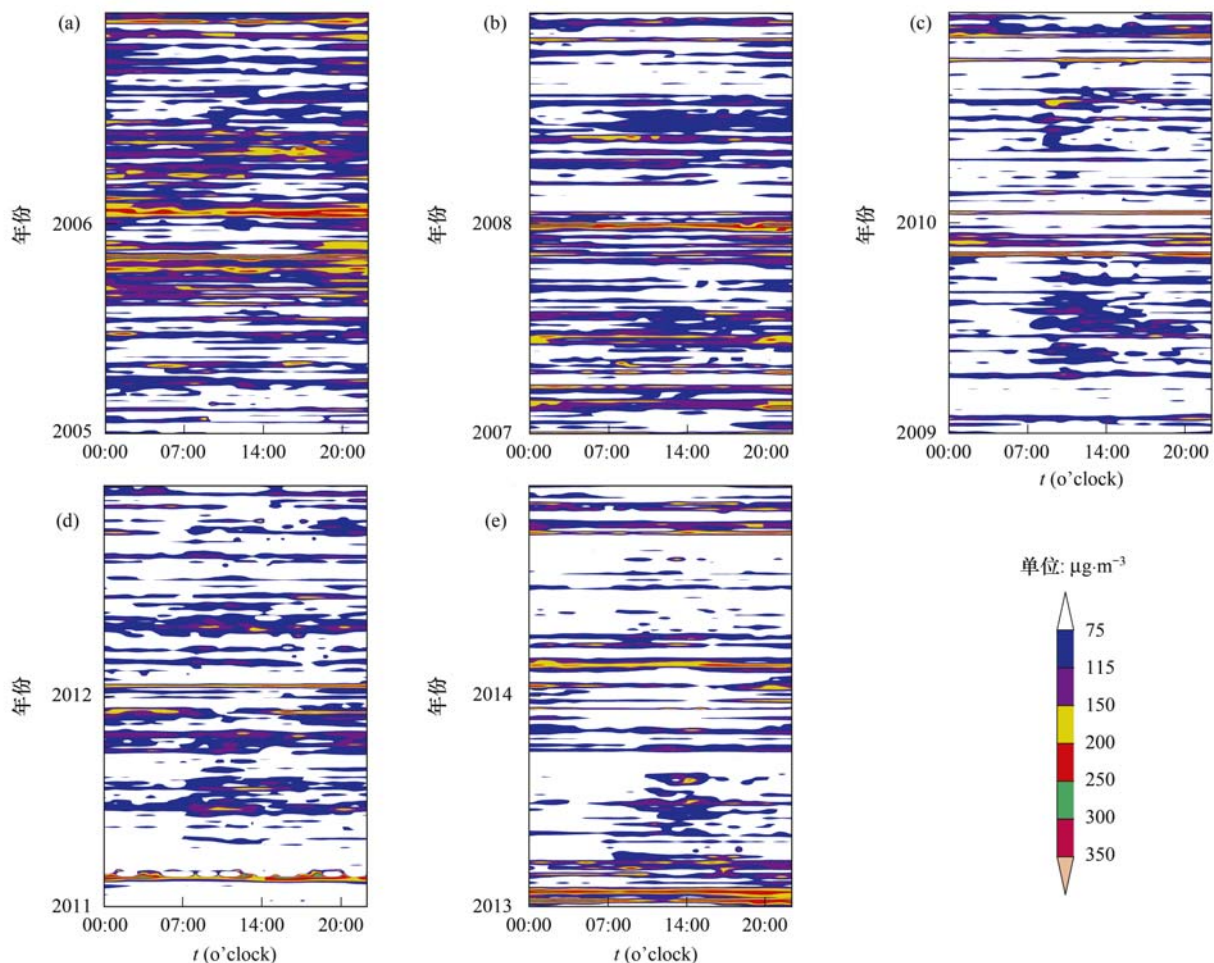


图 3 宝联 $PM_{2.5}$ 质量浓度日变化逐年分布

Fig. 3 Diurnal evolution of $PM_{2.5}$ mass concentration at BAOLIAN Station for every year

月的日变化最小;春季和夏初,有时昼间易出现浓度较高的时刻,入夜后迅速降低(图3).剔除春节后,PM_{2.5}浓度日变化小于100 μg·m⁻³的日数占比55.3%,100~200 μg·m⁻³占比36.1%,8.6%日变化幅度超过200 μg·m⁻³.近10年城区最大值为698 μg·m⁻³,出现在2005年4月28日,是冷空气活动带来沙尘天气导致浓度陡升后偏北大风又将其清除所致.2013年1月12日PM_{2.5}浓度的昼夜波动达到621 μg·m⁻³,是2008年以来的最高值,在近10年中排列第5位.污染物快速累积是日变化幅度达到较高水平的主要原因.

上述分析表明,北京城区PM_{2.5}浓度日变化的双峰分布特征在2007年以后才比较明显,与北京市机动车保有量增长同步,说明汽车尾气是影响日变化的重要污染源.然而,春夏季早峰值浓度高、晚高峰变化相对较平缓,冬季相反,这种相同季节不同时段、不同季节相同时段浓度演变的差异性需要借助气象条件的讨论作进一步的解释.

2.2 郊区

2006~2014年上甸子(郊区)平均PM_{2.5}小时浓度明显低于城区,日变化主要呈单峰分布[图4(a)],与城区不同.06:00浓度最低,较Zhao等^[28]得到的模型提前3 h,06:00~14:00持续增加,14:00~15:00浓度小幅下降后继续升高,并于19:00~20:00达到日最大值.上甸子PM_{2.5}浓度夜间的演变特征与宝联相似,差异主要体现在昼间[图2(a)和图4(a)].首先,06:00~09:00上甸子PM_{2.5}浓度升幅明显小于城区,说明早晨城区浓度升高与人类活动排放的关系密切;其次,09:00~14:00两个测站浓度变化方向相反.其中,宝联的演变比较符合混合层顶抬高、湍流活动加剧等日变化规律,上甸子则与该时段大气的扩散和稀释条件一般会有所改善不吻合;第三,上甸子浓度日最大值(也是傍晚以后的峰值浓度)出现的时间较宝联提前2 h.后面两个差异显然不能简单地从污染源排放、环境大气静稳条件等得到合理的解释,其影响机制值得进一步研究.

2006年和2007年是近9年中上甸子污染较重的时段,与城区相同.2008~2013年总体呈减轻的趋势,但是2014年有所加重[图4(b)].PM_{2.5}质量浓度日变化的年际差异明显小于城区,各年份的日变化形态相似,只是日最小值出现的时间不同.2006年、2008年和2014年的10:00~11:00浓度最低,其他年份最小值出现在06:00前后.

郊区PM_{2.5}浓度日变化同样有季节性差异[图4(c)].按照演变趋势可大致分为3类:①浓度的日波动很小,主要出现在春季的3~4月;②与图2(a)中平均值的演变特征相近,此类日分布在冬季最常见;③06:00以后浓度持续增大并在19:00~20:00达到最高后下降,而且昼间浓度高于夜间,此类日变化多出现在5~9月.此外,上甸子隆冬(12月和1月)的浓度最低,特别是昼间比较明显,与城区不同.

综上所述,北京郊区上甸子PM_{2.5}浓度日变化与城区的不同点主要体现在:日变化波形(呈单峰分布)、隆冬季节浓度最低、春季平均日变化幅度小.

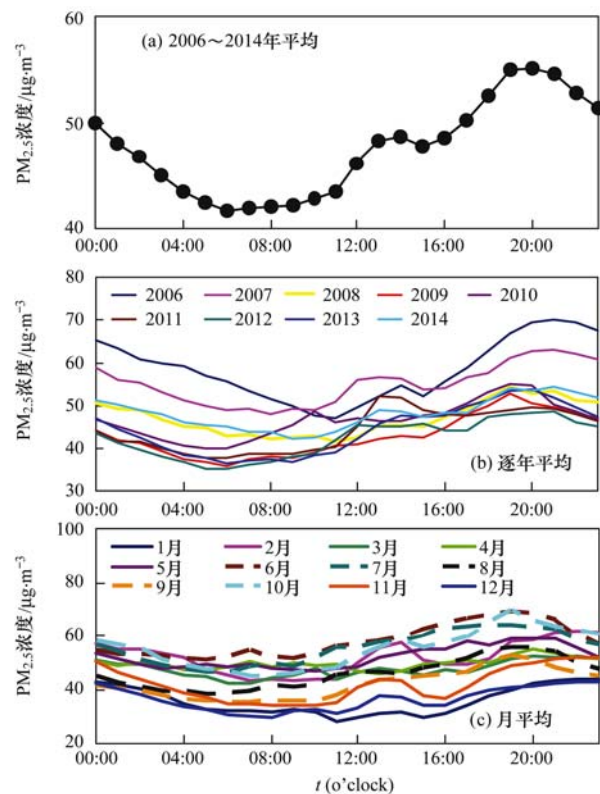


图4 上甸子PM_{2.5}质量浓度平均日变化

Fig. 4 Mean diurnal pattern of PM_{2.5} mass concentration at SHANGDIANZI Station

3 城区中度以上污染日PM_{2.5}质量浓度的日变化特征

3.1 污染日的划分及统计结果

按照我国环保部门的规定,当PM_{2.5}质量浓度日均值在116~150 μg·m⁻³时为中度污染日,在151~250 μg·m⁻³时为重度污染日,超过251 μg·m⁻³时为严重污染日.2005~2014年北京城区PM_{2.5}中度以上污染日数年平均59 d,即:每6 d左右就会出现一次较重的污染事件.其中,中度污染日占比53.2%,

重度污染日占 38.8%, 严重污染日占 8%。北京城区的污染程度近 2 年有所加重。一方面, 2013 ~ 2014 年严重污染日数持续增多, 其中 2014 年仅次于 2006 年, 为近 10 年的第二高值; 另一方面, 重污染日占比增大。2013 ~ 2014 年每年的重度和严重污染日总和所占的比例高达 62%, 超过了前几年的水平[图 5(a)]。

5 ~ 9 月以中度污染为主, 而 11 月至次年 2 月重度和严重污染日基本上超过 50%。其中, 严重污染发生的季节性最强, 近 10 年的 6 ~ 8 月没有出现严重污染日[图 5(b)]。除污染排放减少以外, 频繁发生的降雨以及对流天气产生时大气处于不稳定状态是导致夏季污染物通常不能够长时间累积达到严重污染水平的主要影响因素之一。2013 年 1 月和 2014 年 1 ~ 3 月以及 2014 年 10 月对于近 2 年污染程度加重的贡献较大[图 5(c) ~ 5(e)]。

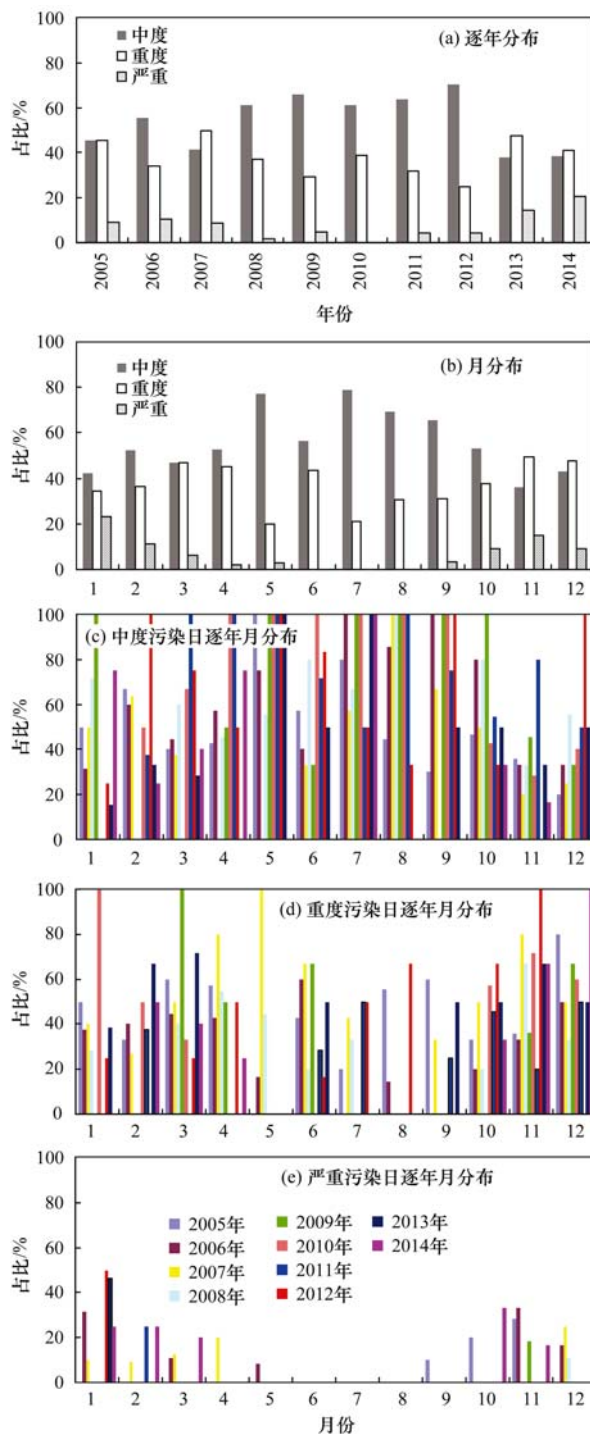
3.2 各等级污染日 PM_{2.5} 质量浓度的日变化特征

中度污染日 PM_{2.5} 平均小时浓度日变化呈双峰分布[图 6(a)], 07:00 ~ 10:00 出现浓度峰值在 2007 年以后比较明显, 其演变特征与多年平均值相似。因此, 中度污染日 PM_{2.5} 浓度日变化代表了北京城区的基本演变特征。该等级污染日浓度平均日变化幅度为 20 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 其中早高峰期增长 17 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 晚高峰期为 20 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

重度污染日浓度的日变化呈 3 峰分布, 2007 年之前和之后差别较小[图 6(b)]。其日变化曲线的特殊性在于 12:00 ~ 13:00 浓度小幅增加并有一个与早高峰数值相近的小峰值。从逐日浓度分布可以看到, 高的小时浓度从早晨一直持续到午后的特征在近 2 年比较突出。重度污染日 PM_{2.5} 小时浓度平均日变化幅度为 35 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 早高峰期上升 15 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 傍晚以后为 32 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 大于中度污染日, 并且更具有冬季的日变化特征。

尽管严重污染日浓度日变化也是一日双波, 但是 09:00 ~ 14:00 污染在小幅波动中加重[图 6(c)], 与平均值和中度污染日明显不同。此外, 2007 年以后日变化的形态基本没有改变, 只是平均浓度有所降低。严重污染日浓度平均日变化幅度为 41 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 呈现污染越重日变化幅度越大的特点。2007 ~ 2014 年严重污染日 07:00 ~ 14:00 平均升高达到 32 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 与晚高峰期间的增幅(38 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 相当, 对达到严重污染水平有重要贡献。

综上所述, 由于各等级污染日集中出现的季节不同使得其 PM_{2.5} 质量浓度平均日变化趋势发生了



(a) 逐年分布; (b) 月分布; (c) 中度污染日逐年月分布; (d) 重度污染日逐年月分布; (e) 严重污染日逐年月分布

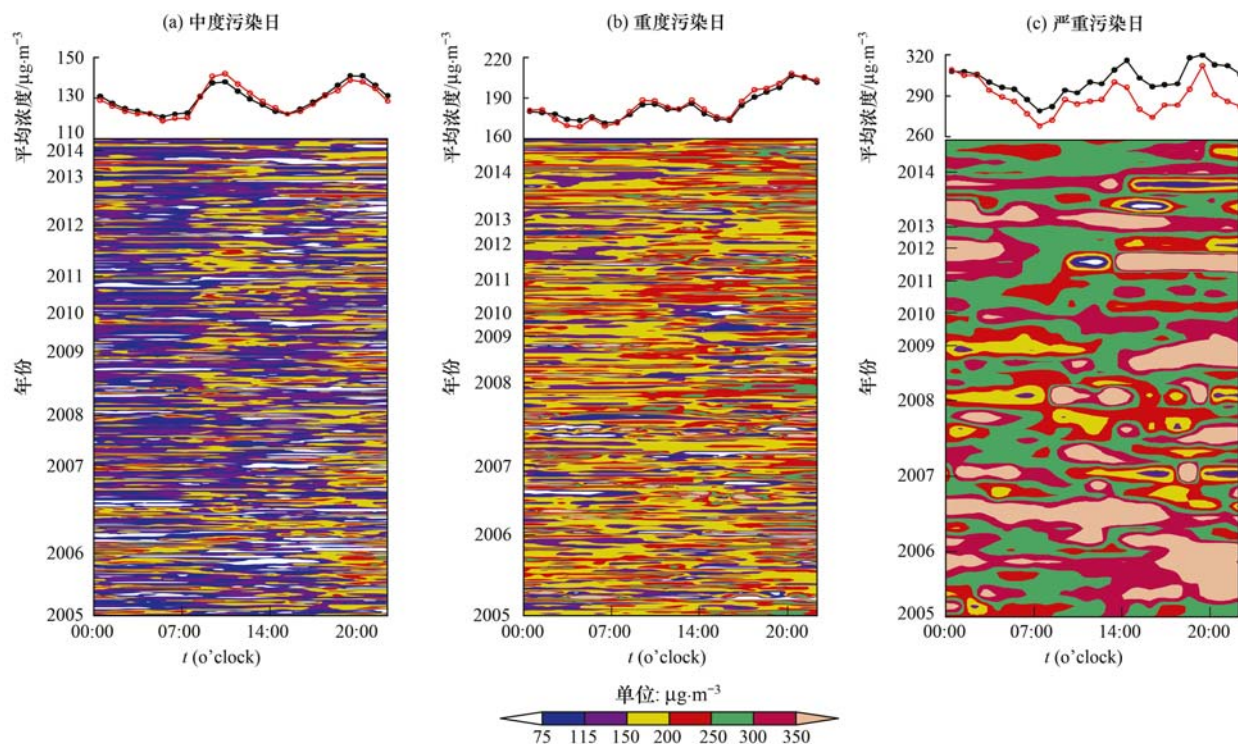
图 5 各等级污染日数占比

Fig. 5 Percent of days at each pollution grade

变化, 其中导致严重和重度污染日早高峰之后污染加重的机制是一个值得研究的问题。

4 讨论

针对 2007 ~ 2014 年期间城区 PM_{2.5} 质量浓度日变化在 5 ~ 8 月(春夏季, 下同)与 1 ~ 2 月和 11 ~ 12



黑色曲线为 2005 ~ 2014 年平均, 红色曲线 2007 ~ 2014 年平均

图 6 2005 ~ 2014 年宝联中度以上污染日 $PM_{2.5}$ 质量浓度

Fig. 6 $PM_{2.5}$ mass concentration of polluted days in moderate grade or over at BAOLIAN Station of 2005-2014

月(冬季,下同)的差异以及重度和严重污染日 09:00 以后演变特征的特殊性,本节利用气象资料观测讨论其影响机制。

晚高峰期间 $PM_{2.5}$ 质量浓度的季节性差异与混合层厚度的日变化、地面风以及降水天气有关。春夏季 14:00 ~ 17:00 混合层厚度变化不大,维持在 1 300 m 左右,而冬季 17:00 已降低到 900 m,两个季节 17:00 ~ 20:00 平均混合层厚度差 240 m [图 7 (a)],因此除排放量较少外,环境大气容积较大是春夏季晚高峰 $PM_{2.5}$ 浓度升高不明显的一个关键原因。此外,春夏季 17:00 ~ 19:00 地面平均风速大于冬季,并且超过 $2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ [图 7 (b)],这是北京地区春夏季受大尺度天气系统影响偏南风通常在午后到傍晚增大的结果,晚高峰期间空气的水平流动性更大影响了污染物的累积。而且,春夏季午后到傍晚是北京地区雷阵雨等强对流天气的多发时段,2007 ~ 2014 年的 14:00 ~ 20:00 降水量超过 0.1 mm 的有量降水发生的统计概率为 13.2%,冬季仅 3.5%,湿沉降以及对流天气发生时环境大气不稳定产生的强烈上升运动使得污染物得到有效稀释。根据已有研究成果^[16,19],气温高有利于二次气溶胶粒子生成。冬季日最高气温一般出现在 15:00 前后^[37],因此该季节从 14:00 ~ 15:00 开始直到 21:00 ~ 22:00

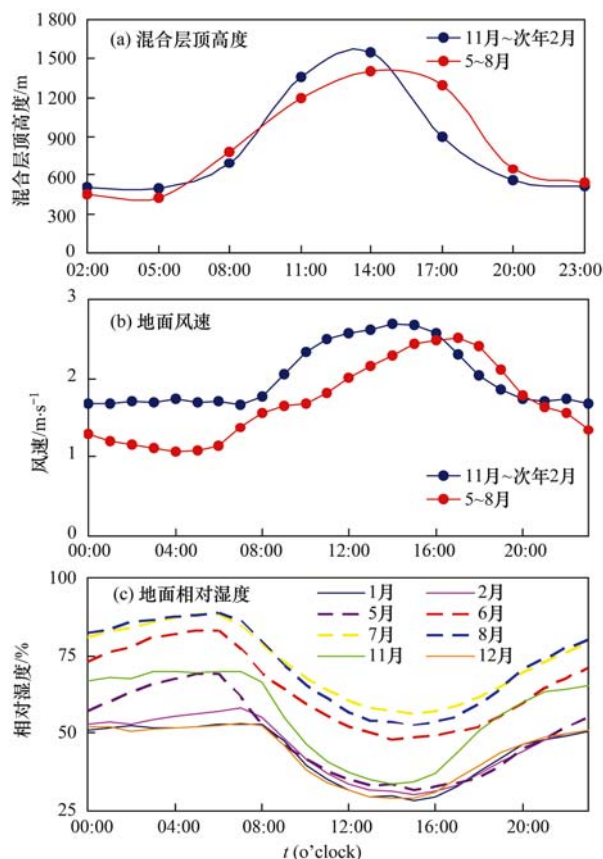


图 7 3 个参量时序

Fig. 7 Time series of 3 parameters

浓度上升较早高峰明显是由于混合层厚度明显下降、气温相对较高、排放量增大共同作用的结果。

春夏季 05:00~08:00 混合层顶高度增加的幅度大于冬季[图 7(a)], 早高峰 PM_{2.5} 质量浓度升高与空气流动性小、潮湿、气温高有关。春夏季 06:00~09:00 的平均风速在 1.5 m·s⁻¹ 以下, 不利于污染物的水平扩散。此外, 许多研究表明 PM_{2.5} 质量浓度与相对湿度正相关^[5,6,16,30], 而且高温、高湿条件下有利于硝酸盐、铵盐和硫酸盐的反应生成^[35] 以及细微粒子粒径变大^[36]。2007~2014 年的 6~8 月早高峰时段的相对湿度明显高于其它几个月份, 夏季早晨浓度升高出现在空气饱和度较高的环境下[图 7(c)], 与已有的研究一致。然而, 从图 1(d) 可知 5 月早晨浓度增加的趋势也非常明显, 而相对湿度却低于 6~8 月, 甚至小于 11 月。但是, 11 月 06:00~09:00 的平均水汽压为 4.7 hPa, 而 5 月达到 12 hPa, 是 11 月的 2.5 倍。此外, 中度以上污染日 5~8

月早高峰期间的平均水汽压演变与 PM_{2.5} 质量浓度的升幅之间具有一定的正相关性(图 8)。从上述统计特征推断, 在前体物丰富的情况下, 环境大气的绝对含水量大可能更有利于新生细微粒子的吸湿增长。统计表明^[35], 北京地区冬季的最低气温一般

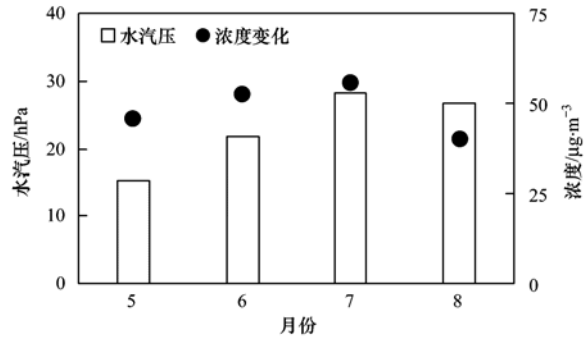
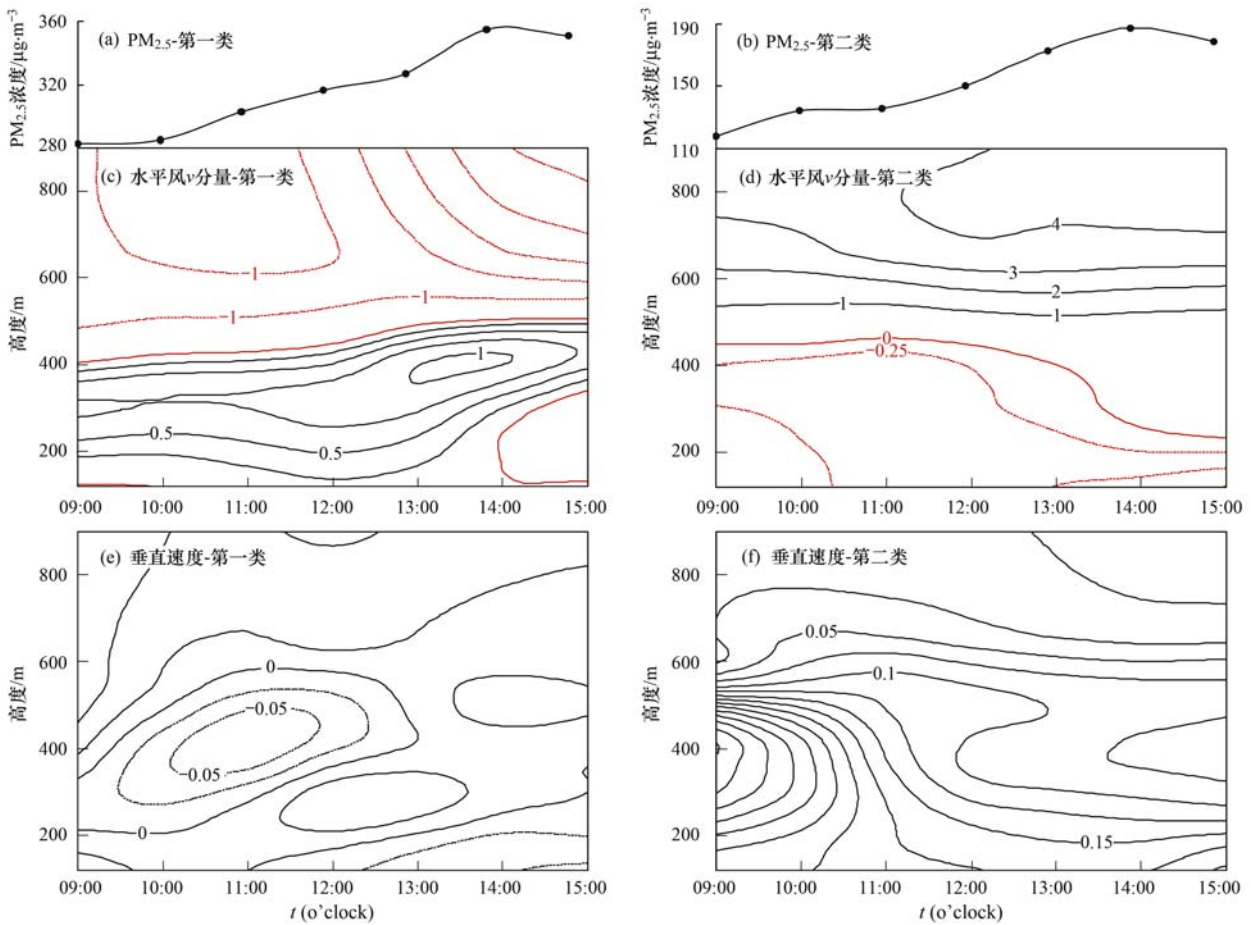


图 8 中度以上污染日 06:00~09:00 的水汽压和 PM_{2.5} 浓度变化

Fig. 8 Water pressure and change of PM_{2.5} mass concentration during 06:00-09:00 of polluted days at moderate grade or over



v 分量正值表示南风, 负值为北风, 垂直速度正值为下沉运动, 负值为上升运动, 图(c)~(f)中数值单位: m·s⁻¹

图 9 09:00~14:00 污染加重个例平均 PM_{2.5} 质量浓度、水平风 v 分量和垂直速度演变
Fig. 9 Average PM_{2.5} mass concentration, v component of wind speed and vertical velocity for cases of PM_{2.5} mass concentration going up from 09:00-14:00

出现在 07:00, 气温低是该季节早高峰浓度变化较小的一个影响因素。

严重和重度污染日 09:00 以后 $PM_{2.5}$ 质量浓度不降反升对日均值达到较高水平有重要贡献。剔除 09:00 ~ 14:00 地面有冷锋过境的污染日后, 对天气形势普查的结果表明此类污染日多发生在北京以及河北、天津等周边地区近地面大气静稳的情况下, 气象条件有利于出现区域性的污染事件。本研究利用海淀风廓线雷达探测分析了边界层低层水平风的南北方向分量, 发现按照南北风分量的垂直结构可分为 2 类 [图 9(c) 和 9(d)]。第一类: 400 ~ 500 m 以下为南风, 风速中心位于 300 ~ 400 m 高度, 其上空为北风层 [图 9(c)]。当边界层风的结构发生改变后, 即: 南风层变薄、风速减小, 则浓度下降 [图 9(a) 和 9(c)]。计算得到严重污染日 09:00 ~ 14:00 平均混合层厚度为 370 ~ 870 m, 重度污染日为 490 ~ 1 140 m。因此, 图 9(c) 中的南风出现在混合层内。在此期间污染加重的机制可能是空中的南风将周边地区污染物输送到北京, 随着太阳辐射加强大气中的湍流活动加大, 在湍流的作用下混合层内污染物垂直分布趋于均匀化, 使得地面附近监测的 $PM_{2.5}$ 质量浓度升高。此外, 边界层中的弱下沉运动也起着将空中的高浓度空气向地面输送的作用 [图 9(e)]。从南风的风速中心所在的高度判断污染物可能主要来自周边地区的高架源。第二类: 南北风分量的垂直分布与第一类完全相反, 即: 底层是弱北风, 400 m 以上为 1 ~ 4 $m \cdot s^{-1}$ 的南风层, 风速核在 800 m 以上 [图 9(d)]。而且, 09:00 ~ 14:00 期间浓度升幅与空中南风的风速变化趋势相同 [图 9(b) 和 9(d)]。同时, 800 m 到近地层有深厚的下沉气流 [图 9(f)]。因此, 浓度升高的原因是高污染空气随着高空较强的偏南风向北运动, 在到达北京上空后由下沉气流带到近地面。在此期间, 湍流也应该有作用。第一类 09:00 ~ 14:00 平均最大浓度增幅略大于第二类, 因此重污染发生期间对于周边地区高架源的减排也非常重要。本文从边界层空气运动的垂直分布、周边地区污染的一般水平等角度分析了北京地区一些污染日浓度的特殊日变化的可能成因, 在有浓度垂直观测的条件下可对其作进一步研究。

除春节期间燃放烟花爆竹、收获季节秸秆燃烧等导致 $PM_{2.5}$ 质量浓度在短时间内大幅度变化外, 气象要素也是影响 $PM_{2.5}$ 质量浓度日变化幅度的因素之一。与冷空气活动相伴的大风对空气中污染物的

清除作用以及与沙尘天气导致 $PM_{2.5}$ 质量浓度陡升等都可以加大日变化幅度。2005 ~ 2014 年, 日变化幅度超过 200 $\mu g \cdot m^{-3}$ 中的 47.3% 与偏北大风和沙尘有关。为了反映北京地区污染相对较重的供暖季 $PM_{2.5}$ 质量浓度日变化与气象要素的相关性, 本研究给出选取冬季资料并剔除了冷空气活动日和沙尘日, 气象要素包括地面最大风速和对应的风向、混合层顶高度日变化、相对湿度其变化等 [(图 10) 和图 11]。当日变化幅度较小时, 气象要素分布相对较分散, 两者的相关性较低, 相关系数 (绝对值) 均在 0.2 以下, 说明此时 $PM_{2.5}$ 浓度升降受排放因素的影响更大。随着日变化幅度增大, 气象要素分布趋于集中。当 $PM_{2.5}$ 质量浓度日变化超过 200 $\mu g \cdot m^{-3}$ 时, 日最大风速小于 2 $m \cdot s^{-1}$ 的日数占比 72.4%, 即: $PM_{2.5}$ 质量浓度日波动较大时环境大气的流动性一般较小。而风速大、浓度日变化幅度大则发生在午后出现明显偏南风 (4 ~ 6 $m \cdot s^{-1}$) 背景下 (图

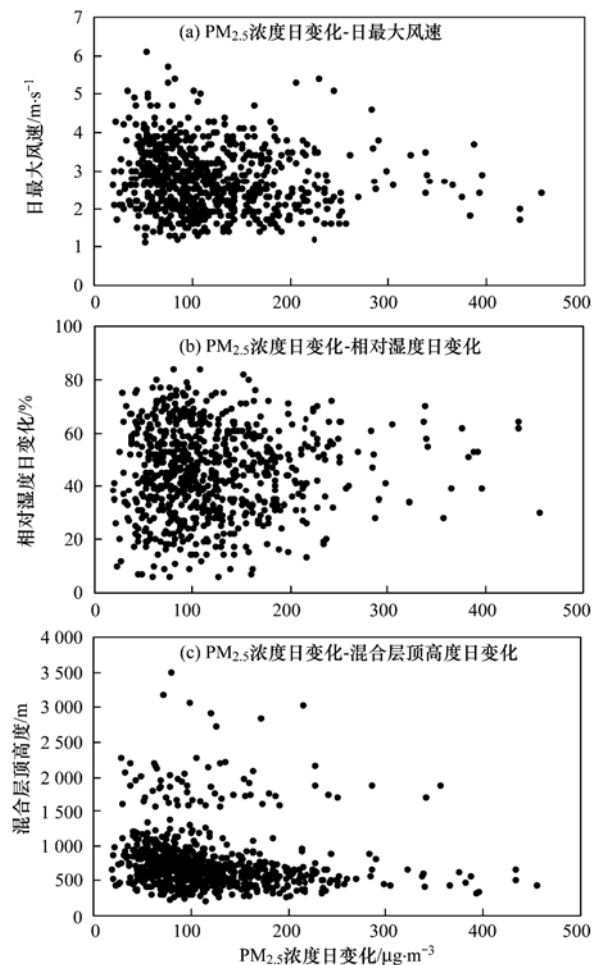


图 10 $PM_{2.5}$ 浓度日变化-气象要素分布图

Fig. 10 Diurnal evolution of $PM_{2.5}$ mass concentration-meteorological factors

11), 因为此时浓度伴随南风增大而升高, 它反映了周边污染对北京地区的影响. 此外, 相对湿度日变化呈增大趋势[图 10(b)], 最大值达到 72%, 因此空气饱和程度的昼夜变化也是加大 PM_{2.5} 质量浓度日变化幅度的因素之一. 尽管近地面层的污染物浓度与混合层顶高度有关, 但是两者的日变化相关性小于日最大风速和相对湿度[图 10(c)]. 上述分析表明, 在没有偏北大风和沙尘的情况下, 供暖季 PM_{2.5} 质量浓度日变化幅度与排放和气象条件有关. 当浓度大幅波动时, 日最大风速、较大的偏南风、相对湿度日变化的影响相对显著.

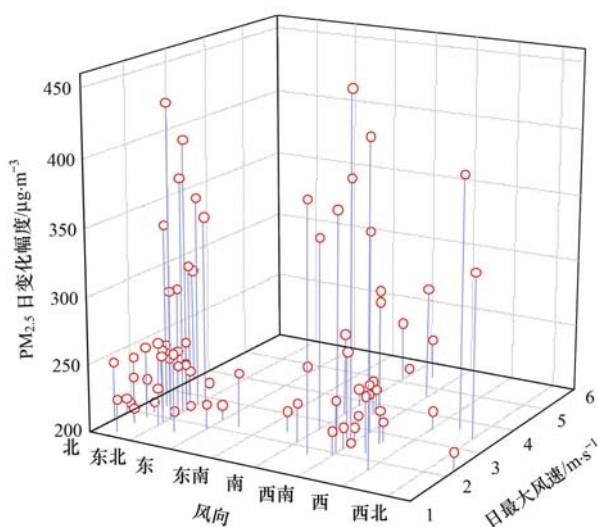


图 11 PM_{2.5} 浓度日变化-日最大风速-日最大风速对应风向

Fig. 11 Diurnal evolution of PM_{2.5} mass concentration-daily max wind speed-wind direction of daily max wind speed

5 结论

(1) 北京城区 PM_{2.5} 质量浓度 10 年平均日变化呈双峰分布, 两个峰值对应早晚出行高峰, 但是该特征在 2007 年以后才比较明显. 郊区浓度的日演变为单峰, 年际差异小, 06:00 ~ 14:00 浓度升高, 与城区不同, 而且日最大值超前于城区.

(2) 日变化存在明显的月际(季节性)差异. 其中, 城区在 3 ~ 10 月呈双峰分布, 冬季以单峰为主. 早峰值在春夏季最大, 并与日最大值重叠, 晚高峰浓度变化较平缓; 冬季浓度夜高昼低, 早高峰浓度增幅小. 日变化的季节转换表现为双峰与单峰之间、日最大值在早晚之间的交替. 郊区昼间的浓度在 5 ~ 7 月高于冬季.

(3) 中度污染日浓度日变化与多年平均值相似; 重度污染日呈三峰分布, 中午前后有一个小峰值; 虽然严重污染日也呈双峰分布, 但是 07:00 ~

14:00 污染持续加重, 对重污染有重要贡献.

(4) 春夏季早高峰期间浓度升幅较大与地面风速小、空气饱和程度和绝对含水量(水汽压)高有关, 傍晚变化相对较平缓主要是由于混合层厚、地面风速较大、降雨天气发生频次高. 冬季午后到傍晚混合层顶高度大幅度下降是晚高峰期间浓度明显升高的重要影响因素之一.

(5) PM_{2.5} 质量浓度日变化超过 200 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时, 日变化幅度与日最大风速负相关、相对湿度日变化正相关的关系相对明显. 午后伴随地面偏南风速加大污染加重也会增大日变化幅度.

(6) 严重污染日昼间浓度持续升高与边界层偏南风将周边高架源污染输送到北京有关. 因此, 可以根据数值模式预报的边界层南北风分量的垂直分布动态地调整重污染期间的减排方案.

参考文献:

- [1] 柯馨妹, 盛立芳, 孔君, 等. 青岛大气颗粒物数浓度变化及对能见度的影响[J]. 环境科学, 2014, **35**(1): 15-21.
- [2] 王英, 李令军, 李成才. 北京大气能见度和消光特性变化规律及影响因素[J]. 中国环境科学, 2015, **35**(5): 1310-1318.
- [3] Wu D, Bi X Y, Deng X J, *et al.* Effect of atmospheric haze on the deterioration of visibility over the Pearl River Delta [J]. *Journal of Meteorological Research*, 2007, **21**(2): 215-223.
- [4] Wu D, Deng X J, Bi X Y, *et al.* Study on the visibility reduction caused by atmospheric haze in Guangzhou area [J]. *Journal of Tropical Meteorology*, 2007, **13**(1): 77-80.
- [5] 徐鹏, 郝庆菊, 吉东生, 等. 重庆市北碚城区大气污染物浓度变化特征观测研究[J]. 环境科学, 2014, **35**(3): 820-829.
- [6] 赵晨曦, 王云琦, 王玉杰, 等. 北京地区冬春 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 污染水平时空分布及其与气象条件的关系[J]. 环境科学, 2014, **35**(2): 418-427.
- [7] 王占山, 李云婷, 陈添, 等. 2013 年北京市 PM_{2.5} 的时空分布[J]. 地理学报, 2015, **70**(1): 110-120.
- [8] Hu J L, Wang Y G, Ying Q, *et al.* Spatial and temporal variability of PM_{2.5} and PM₁₀ over the North China Plain and the Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **95**: 598-609.
- [9] Lv B L, Zhang B, Bai Y Q. A systematic analysis of PM_{2.5} in Beijing and its sources from 2000 to 2012 [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **124**: 98-108.
- [10] 于建华, 虞统, 魏强, 等. 北京地区 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 质量浓度的变化特征[J]. 环境科学研究, 2004, **17**(1): 45-47.
- [11] 刘洁, 张小玲, 徐晓峰, 等. 北京地区 SO₂、NO_x、O₃ 和 PM_{2.5} 变化特征的城郊对比分析[J]. 环境科学, 2008, **29**(4): 1059-1065.
- [12] 李旭芳, 初钧晗, 于令达, 等. 北京市城区单监测点 PM_{2.5} 质量浓度变化特征[J]. 北京师范大学学报(自然科学版), 2011, **47**(3): 258-261.
- [13] 孙南. 常州市区空气 PM_{2.5} 污染分布和气象因素影响初探[J]. 环境科学与管理, 2013, **38**(10): 166-169.

- [14] 江益, 李春鸾, 林智丰, 等. 海口市 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_1 质量浓度的变化特征分析[J]. 广东气象, 2014, **36**(3): 37-41, 50.
- [15] 张普, 谭少波, 王丽涛, 等. 邯郸市大气颗粒物污染特征的监测研究[J]. 环境科学学报, 2013, **33**(10): 2679-2685.
- [16] 姚青, 蔡子颖, 张长春, 等. 天津城区大气气溶胶质量浓度分布特征与影响因素[J]. 生态环境学报, 2010, **19**(9): 2225-2231.
- [17] 黄鹤, 蔡子颖, 韩素芹, 等. 天津市 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_1 连续在线观测分析[J]. 环境科学研究, 2011, **24**(8): 897-903.
- [18] 陶李, 张承中, 周变红, 等. 西安市高分辨率 $PM_{2.5}$ 质量浓度变化特征分析[J]. 环境科技, 2011, **24**(S1): 63-64, 67.
- [19] 黄云碧, 董发勤, 代群威, 等. 西宁远郊区春末夏初 $PM_{2.5}$ 污染特征及其影响因素分析[J]. 西南科技大学学报, 2014, **29**(4): 13-18.
- [20] 郑瑶, 邢梦林, 李明, 等. 郑州市 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 质量浓度变化特征分析[J]. 干旱环境监测, 2014, **28**(3): 104-108.
- [21] 魏玉香, 银燕, 杨卫芬, 等. 南京地区 $PM_{2.5}$ 污染特征及其影响因素分析[J]. 环境科学与管理, 2009, **34**(9): 29-34.
- [22] 岳玎利, 钟流举, 张涛, 等. 珠三角地区大气 $PM_{2.5}$ 理化特性季节规律与成因[J]. 环境污染与防治, 2015, **37**(4): 1-6.
- [23] 王京丽, 谢庄, 张远航, 等. 北京市大气细粒子的质量浓度特征研究[J]. 气象学报, 2004, **62**(1): 104-111.
- [24] 谢雨竹, 潘月鹏, 倪长健, 等. 成都市区夏季大气污染物浓度时空变化特征分析[J]. 环境科学学报, 2015, **35**(4): 975-983.
- [25] DeGaetano A T, Doherty O M. Temporal, spatial and meteorological variations in hourly $PM_{2.5}$ concentration extremes in New York City[J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(11): 1547-1558.
- [26] Russell M, Allen D T, Collins D R, *et al.* Daily, seasonal, and spatial trends in $PM_{2.5}$ mass and Composition in Southeast Texas [J]. Aerosol Science and Technology, 2004, **38**(S1): 14-26.
- [27] Laakso L, Hussein T, Aarnio P, *et al.* Diurnal and annual characteristics of particle mass and number concentrations in urban, rural and Arctic environments in Finland [J]. Atmospheric Environment, 2003, **37**(19): 2629-2641.
- [28] Zhao X J, Zhang X L, Xu X F, *et al.* Seasonal and diurnal variations of ambient $PM_{2.5}$ concentration in urban and rural environments in Beijing [J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(18): 2893-2900.
- [29] Chen Y, Ho K F, Lee S C, *et al.* Seasonal and diurnal variations of $PM_{1.0}$, $PM_{2.5}$ and PM_{10} in the roadside environment of Hong Kong [J]. China Particology, 2006, **4**(6): 312-315.
- [30] 董雪玲, 刘大猛, 袁杨森, 等. 北京市 2005 年夏季大气颗粒物污染特征及影响因素[J]. 环境工程学报, 2007, **1**(9): 100-104.
- [31] Darkow G L. An analysis of over sixty tornado proximity soundings [A]. In: Sixth Conference on Severe Local Storms [C]. Chicago: American Meteorological Society, 1969. 218-221.
- [32] 马福建. 用常规地面气象资料估算大气混合层深度的一种方法[J]. 环境科学, 1984, **5**(1): 11-14.
- [33] 李宗恺, 潘云仙, 孙润桥. 空气污染气象学原理及应用 [M]. 北京: 气象出版社, 1985. 513-516.
- [34] 童志权. 大气环境影响评价 [M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1988. 29-32.
- [35] 姚青, 韩素芹, 蔡子颖. 2011 年冬季天津 $PM_{2.5}$ 及其二次组分的污染特征分析[J]. 环境化学, 2013, **32**(2): 313-318.
- [36] 胡敏, 刘尚, 吴志军, 等. 北京夏季高温高湿和降水过程对大气颗粒物谱分布的影响[J]. 环境科学, 2006, **27**(11): 2293-2298.
- [37] 北京气象局气候资料室. 北京气候志 [M]. 北京: 北京出版社, 1987. 16-17.

CONTENTS

Spatiotemporal Distribution and Source Attribution of SOA in China	CHEN Zhuo, LIU Jun-feng, TAO Wei, <i>et al.</i> (2815)
Emission Inventory of Heavy Metals in Fine Particles Emitted from Residential Coal Burning in China	LIU Hai-biao, KONG Shao-fei, WANG Wei, <i>et al.</i> (2823)
Diurnal Variation of PM _{2.5} Mass Concentration in Beijing and Influence of Meteorological Factors Based on Long Term Date	MIAO Lei, LIAO Xiao-nong, WANG Ying-chun (2836)
Characteristics of Ozone Background Concentration in Beijing from 2004 to 2015	CHENG Nian-liang, LI Yun-ting, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i> (2847)
Online Sources about Atmospheric Fine Particles During the 70th Anniversary of Victory Parade in Shijiazhuang	ZHOU Jing-bo, LI Zhi-guo, LU Na, <i>et al.</i> (2855)
Pollution Characteristics of Inorganic Water-soluble Ions in Atmospheric Particulate Matter in Chengdu Plain	JIANG Yan, HE Guang-yan, LUO Bin, <i>et al.</i> (2863)
Observation Analysis on the Characteristics of Meteorological Elements and Pollutants During a Continuous Fog and Haze Episode in Spring in Jiaying City SHEN Li-juan, WANG Hong-lei, LI Li, <i>et al.</i> (2871)
Characteristics and Source Apportionment of Metals in the Dustfall of Quanzhou City	ZHANG Zong-wei, HU Gong-ren, YU Rui-lian, <i>et al.</i> (2881)
Level and the Courses of Heavy Metals and Its Risk Assessment in Indoor Dust of City: Take Guiyang as a Case	LI Xiao-yan, WANG Lang, ZHANG Shu-ting (2889)
Chemical Characteristics and Source of Acid Precipitation in Guilin	GUO Ya-si, YU Shi, LI Yong-shan, <i>et al.</i> (2897)
Assessment of Gaseous Nitrogen (NH ₃ and N ₂ O) Mitigation After the Application of a Range of New Nitrogen Fertilizers in Summer Maize Cultivation FAN Hui, JIANG Shan-shan, WEI Ying, <i>et al.</i> (2906)
Soil CO ₂ , CH ₄ and N ₂ O Fluxes from Alpine Meadows on the Plateau of Southern Qinghai Province During Snow Cover Period and Growing Seasons	WU Jian-guo, ZHOU Qiao-fu (2914)
Partial Pressure of Carbon Dioxide and Methane from Autumn to Winter in Xiangxi Bay of the Three Gorges Reservoir	ZHANG Jun-wei, LEI Dan, XIAO Shang-bin, <i>et al.</i> (2924)
Potential Impacts of Climate Change on Phosphorus and DO in Yuqiao Reservoir	ZHANG Chen, LIU Han-an, GAO Xue-ping, <i>et al.</i> (2932)
Land Use Structure Change and Its Control Effect of Nitrogen Output in a Small Watershed of Three Gorges Reservoir Area: A Case Study of Lanlingxi Watershed WU Dong, HUANG Zhi-lin, XIAO Wen-fa, <i>et al.</i> (2940)
Response of Inflow Water Quality to Land Use Pattern in Northern Watershed of Lake Erhai	XIANG Song, PANG Yan, CHU Zhao-sheng, <i>et al.</i> (2947)
Effect of Nutrient Cycles in Tributaries on the Transport of Nutrient in the Three Gorge Reservoirs: A Case Study of Caotang River	WANG Xiao-tong, LUO Guang-fu, CAO Man, <i>et al.</i> (2957)
Transient Storage Characteristics of Artificial Pool Geomorphic Structure in an Agricultural Headwater Stream	LI Ru-zhong, HUANG Qing-fei, QIAN Jing, <i>et al.</i> (2964)
Distribution Characteristics of Solute Nitrogen in the Water-Sediment of Farmland Drainage Ditch	LI Qiang-kun, HU Ya-wei, SONG Chang-ji, <i>et al.</i> (2973)
Characteristics and Influencing Factors of Soil Microbial Biomass Carbon and Nitrogen in Drawdown Area in the Three Gorges Reservoir CHAI Xue-si, LEI Li-guo, JIANG Chang-sheng, <i>et al.</i> (2979)
Response Behaviors of Heavy Metals at Tidal Currents Interface and Salinity Interface in the Estuary Area	LIU Jing, ZHENG Bing-hui, LIU Lu-san, <i>et al.</i> (2989)
Simulation of Multimedia Transfer and Fate of Perfluorooctane Sulfonate (PFOS) in Shenzhen Region	CUI Xiao-yu, ZHANG Hong, LUO Ji, <i>et al.</i> (3001)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Surface Sediments of Zhelin Bay in Guangdong Province, China WEI Ya-ning, PAN Jia-chuan, SONG Yu-mei, <i>et al.</i> (3007)
Spatial Distribution Characteristics and Source Analysis of Dissolved Organic Matter in Beiyun River	CHEN Yong-juan, HU Wei-xuan, PANG Shu-jiang, <i>et al.</i> (3017)
Distribution and Environmental Significances of Radionuclides in the Sediment of the Changyi Coastal Wetland	WANG Qi-dong, SONG Jin-ming, LI Xue-gang, <i>et al.</i> (3026)
Fecal Contamination in Laolongdong Underground River as Measured by the Sterol Biomarkers	LIAO Yu, SUN Yu-chuan, WANG Zun-bo, <i>et al.</i> (3034)
Distribution Characteristics and Pollution Status of Phthalate Esters in the Groundwater of Hutuo River Pluvial Fan	CHANG Sheng, ZHAO Xing-ru, LIU Yan, <i>et al.</i> (3041)
Impacts of Land Use on the Source of Dissolved Fatty Acids in Epikarst Spring During Rainy Season	ZHANG Mei, SUN Yu-chuan, XIE Zheng-lan, <i>et al.</i> (3049)
Mechanisms of Phosphorus Removal by Modified Zeolites Substrates Coated with Zn-LDHs in Laboratory-scale Vertical-flow Constructed Wetlands ZHANG Xiang-ling, HUANG Hua-ling, GUO Lu, <i>et al.</i> (3058)
Synergistic Enhancement on Oxidation of Phenol by Fenton Processes by Adding Ce ³⁺ and Cu ²⁺ Ions	ZHANG Jian-qiao, CHI Hui-zhong, SONG Yang, <i>et al.</i> (3067)
Removal of Humic Acid from Water Using Pt/biochar Electrode Reactor	DING Wen-chuan, XIANG Xing-guang, ZENG Xiao-lan, <i>et al.</i> (3073)
Generation of Graphene-titanium Dioxide Nanotubes Catalytic Board and Its Photocatalysis Capability to Degrade Pentachlorophenol	XU Qi, ZHOU Ze-yu, WANG Hong-tao (3079)
Photocatalytic Degradation Kinetics and Mechanism of Monoazo Dye Acid Yellow 17 by UV/TiO ₂ in Aqueous Solution	YANG Hai, WEI Hong-qin, HU Le-tian, <i>et al.</i> (3086)
Feasibility of Sulfur-based Autotrophic Denitrification of Photovoltaic Wastewater Containing High Fluorine	MA Hang, ZHU Qiang, ZHU Liang, <i>et al.</i> (3094)
Operation Performance of a Bioaugmented Membrane-aerated Biofilm Reactor Treating Atrazine Wastewater	LIU Chun, YU Chang-fu, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (3101)
Nitrogen Removal of Municipal Wastewater by ANAMMOX Coupled Shortcut Nitrification in Anaerobic Baffled Reactor	WU Peng, ZHANG Shi-ying, SONG Yin-ling, <i>et al.</i> (3108)
Simultaneous Ferric Reduction with Ammonia Oxidation Phenomena in Activated Sludge in Anaerobic Environment	LI Xiang, LIN Xing, YANG Peng-bing, <i>et al.</i> (3114)
Rapid Start-up of One-stage Autotrophic Nitrogen Removal Process in EGSB Reactor for Wastewater with Low Concentration of Ammonia	GU Shu-jun, FANG Fang, LI Kai, <i>et al.</i> (3120)
Phosphorus Removal Performance in EBPR System under Extra-low Dissolved Oxygen Condition	MA Juan, SONG Lu, YU Xiao-jun, <i>et al.</i> (3128)
Influence of Activated Sludge Surface Properties on Flocculating Settling and Effluent Suspend Solid	HE Zhi-jiang, ZHAO Yuan, ZHANG Yuan-kai, <i>et al.</i> (3135)
Spatial Characteristics and Environmental Risk of Heavy Metals in Typical Gold Mining Area of Shandong Province	WANG Fei, WU Quan-yuan, LÜ Jian-shu, <i>et al.</i> (3144)
Spatial Variation of Soil Heavy Metals in an E-waste Dismantling Area and Their Distribution Characteristics	ZHAO Ke-li, FU Wei-jun, YE Zheng-qian, <i>et al.</i> (3151)
Selenate Adsorption and Desorption in 18 Kinds of Chinese Soil with Their Physicochemical Properties	FENG Pu-yang, LI Zhe, ZHE Yu-yun, <i>et al.</i> (3160)
Adsorption Characteristics of Arsenite on Goethite by Flow Stirring Method	LI Xin, YANG Jun, RAO Wei, <i>et al.</i> (3169)
Preparation of Poly-hydroxy-aluminum Pillared Diatomite and Characteristics of Cu ²⁺ , Zn ²⁺ Adsorption on the Pillar in Aqueous Solutions ZHU Jian, LEI Ming-jing, WANG Ping, <i>et al.</i> (3177)
Preparation and NH ₄ ⁺ -N Removal Performance of a Novel Filter Substrate Made from Sludges	WANG Wen-dong, LIU Hui, ZHANG Yin-ting, <i>et al.</i> (3186)
Preparation of Nanocomposite Hydrogel and Its Adsorption of Heavy Metal Ions	ZHU Qian, LI Zheng-kui, ZHANG Yi-pin, <i>et al.</i> (3192)
Prediction of PAHs Bioavailability in Spiked Soil by Composite Extraction with Hydroxypropyl-β-cyclodextrin and Rhamnolipid	ZHANG Ya-nan, YANG Xing-lun, BIAN Yong-rong, <i>et al.</i> (3201)
Biological Effects of ZnO Nanoparticles as Influenced by Arbuscular Mycorrhizal Inoculation and Phosphorus Fertilization	JING Xin-xin, SU Zhi-zhong, XING Hong-en, <i>et al.</i> (3208)
Difference of Species Sensitivities for Aquatic Life Criteria in China and the USA	WANG Xiao-nan, YAN Zhen-guang, YU Ruo-zhen, <i>et al.</i> (3216)
Effects of Low-level Nutrition and Trace Antibiotics on the Fitness Cost of Plasmids Bearing Antibiotic Resistance	LIN Wen-fang, CHEN Sheng, WAN Kun, <i>et al.</i> (3224)
Effect of Different Nitrogen Rates on the Nitrification Potential and Abundance of Ammonia-oxidizer in Intercropping Maize Soils	LÜ Yu, ZHOU Long, LONG Guang-qiang, <i>et al.</i> (3229)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 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)

2016年8月15日 第37卷 第8期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 8 Aug. 15, 2016

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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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	中国国际图书贸易集团有限公司 (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: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行