

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第8期

Vol.36 No.8

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

基于16S rRNA 基因测序法分析北京霾污染过程中 PM _{2.5} 和 PM ₁₀ 细菌群落特征	王步英, 郎继东, 张丽娜, 方剑火, 曹晨, 郝吉明, 朱昕, 田埂, 蒋靖坤 (2727)
北京城区冬季降尘微量元素分布特征及来源分析	熊秋林, 赵文吉, 郭道宇, 陈凡涛, 束同同, 郑晓霞, 赵文慧 (2735)
北京市典型餐饮企业油烟中醛酮类化合物污染特征	程婧晨, 崔彤, 何万清, 聂磊, 王军玲, 潘涛 (2743)
基于实际道路交通流信息的北京市机动车排放特征	樊守彬, 田灵娣, 张东旭, 曲松 (2750)
夏季珠江三角洲地区 PM _{2.5} 化学组分特征及其对大气能见度的影响	杨毅红, 瞿群, 刘随心, 李雄, 钟佩仪, 陶俊 (2758)
隧道工人的 PM ₁₀ 职业暴露特征调查分析及其健康风险评价	向华丽, 杨俊, 仇珍珍, 雷万雄, 曾婷婷, 兰志财 (2768)
基于在线监测的江苏省大型固定燃煤源排放清单及其时空分布特征	张英杰, 孔少飞, 汤莉莉, 赵天良, 韩永翔, 于红霞 (2775)
柴达木盆地东部降水氢氧同位素特征与水汽来源	朱建佳, 陈辉, 巩国丽 (2784)
长江口-浙闽沿岸沉积色素的分布特征及其指示意义	李栋, 姚鹏, 赵彬, 王金鹏, 潘慧慧 (2791)
“引江济太”过程中长江-望虞河-贡湖氮、磷输入特征研究	潘晓雪, 马迎群, 秦延文, 邹华 (2800)
重庆市典型城镇区地表径流污染特征	王龙涛, 段丙政, 赵建伟, 华玉妹, 朱端卫 (2809)
调水调沙对黄河下游颗粒有机碳运输的影响	张婷婷, 姚鹏, 王金鹏, 潘慧慧, 高立蒙, 赵彬, 李栋 (2817)
青藏高原冰川区可溶性有机碳含量和来源研究	严芳萍, 康世昌, 陈鹏飞, 柏建坤, 李洋, 胡召富, 李潮流 (2827)
岩溶区地下水补给型水库表层无机碳时空变化特征及影响因素	李建鸿, 蒲俊兵, 袁道先, 刘文, 肖琼, 于爽, 张陶, 莫雪, 孙平安, 潘谋成 (2833)
室内模拟不同因子对岩溶作用与碳循环的影响	赵瑞一, 吕现福, 段逸凡 (2843)
新乡市地表水体 HCHs 和 DDTs 的分布特征及生态风险评价	冯精兰, 余浩, 刘书卉, 刘梦琳, 孙剑辉 (2849)
青木关地下河系统中不同含水介质下正构烷烃对比研究	梁作兵, 孙玉川, 王尊波, 江泽利, 廖昱, 谢正兰, 张媚 (2857)
三峡库区长寿湖水体不同形态汞的空间分布特征	白薇扬, 张成, 赵锋, 唐振亚, 王定勇 (2863)
燃煤电厂周围渔业养殖行为对水生生态环境中汞形态变化的影响	梁鹏, 王远娜, 尤琼智, 高雪飞, 何杉杉 (2870)
运用硫同位素、氮氧同位素示踪厘清湖地下河硫酸盐、硝酸盐来源	李瑞, 肖琼, 刘文, 郭芳, 潘谋成, 于爽 (2877)
藻华聚集的生态效应: 对凤眼莲叶绿素和光合作用的影响	刘国锋, 何俊, 杨轶中, 韩士群 (2887)
DOM 对被动采样技术的影响与应用	于尚云, 周岩梅 (2895)
蛋白质对 PVDF 超滤膜污染行为的界面微观作用力解析	王旭东, 周森, 孟晓荣, 王磊, 黄丹曦, 夏四清 (2900)
水环境中碳纳米管对沙丁胺醇降解的影响	汪祺, 韩佳芮, 魏博凡, 周磊, 张亚, 杨曦 (2906)
β -In ₂ S ₃ 的制备及其太阳光下降解土霉素	艾翠玲, 周丹丹, 张嵘嵘, 邵享文, 雷英杰 (2911)
排水管道沉淀物氮释放特性的研究	陈红, 卓琼芳, 许振成, 王劲松, 魏清伟 (2918)
生物膜 CANON 反应器中沉积物影响及其成因分析	付昆明, 王会芳, 左早荣, 仇付国 (2926)
ABR-MBR 一体化工艺节能降耗措施优化研究	吴鹏, 陆爽君, 徐乐中, 刘捷, 沈耀良 (2934)
两个 CANON 污水处理系统中氨氧化古菌的丰度和多样性研究	高景峰, 李婷, 张树军, 樊晓燕, 潘凯玲, 马谦, 袁亚林 (2939)
ABR 耦合 CSTR 一体化工艺好氧颗粒污泥形成机制及其除污效能研究	巫恺澄, 吴鹏, 徐乐中, 李月寒, 沈耀良 (2947)
珠江三角洲地区土壤有机氯农药分布特征及风险评价	窦磊, 杨国义 (2954)
广西都安县耕地土壤重金属污染风险评价	吴洋, 杨军, 周小勇, 雷梅, 高定, 乔鹏伟, 杜国栋 (2964)
开封市公园地表灰尘重金属污染及健康风险	段海静, 蔡晓强, 阮心玲, 全致琦, 马建华 (2972)
我国西南地区氮饱和马尾松林土壤和植物 ¹⁵ N 自然丰度对长期氮施加的响应	刘文静, 康荣华, 张婷, 朱婧, 段雷 (2981)
黄土高原纬度梯度上的植物与土壤碳、氮、磷化学计量学特征	李婷, 邓强, 袁志友, 焦峰 (2988)
开顶式气室原位研究水稻根系对大气汞浓度升高的响应	陈剑, 王章玮, 张晓山, 秦普丰, 陆海军 (2997)
接种丛枝菌根真菌对蜈蚣草吸收砷的影响	郑文君, 王明元 (3004)
水稻种植对黑土微生物生物量和碳源代谢功能的影响	赵志瑞, 崔丙健, 侯彦林, 刘上千, 王岩 (3011)
固定化菌剂载体材料腐解产物对污染土壤中芘解吸的影响	全冬丽, 双生晴, 李晓军, 邓万荣, 赵然然, 贾春云, 巩宗强 (3018)
零价铁和碱激发矿渣稳定/固定化处理铬渣研究	陈忠林, 李金春子, 王斌远, 樊磊涛, 沈吉敏 (3026)
Fe ³⁺ 负载凹凸棒土 (Fe/ATP) 结构表征及其稳定化修复镉 (Cd) 机制研究	杨蓉, 李鸿博, 周永莉, 陈静, 王琳玲, 陆晓华 (3032)
原位生物修复提高多环芳烃污染土壤农用安全性	焦海华, 潘建刚, 徐圣君, 白志辉, 王栋, 黄占斌 (3038)
镉-八氯代二苯并呋喃复合污染土壤中紫茉莉对镉的修复能力	张杏丽, 邹威, 周启星 (3045)
不同水分条件对蜈蚣草修复砷污染土壤的影响	刘秋辛, 阎秀兰, 廖晓勇, 林龙勇, 杨静 (3056)
磷矿粉和腐熟水稻秸秆对土壤铅污染的钝化	汤帆, 胡红青, 苏小娟, 付庆灵, 朱俊 (3062)
洛克沙肿在青菜及土壤中的残留及降解特性	邵婷, 姚春霞, 沈源源, 张玉洁, 苏楠楠, 周守标 (3068)
3 种典型有机污染物对 2 种水生生物的急性毒性及安全评价	杨扬, 李雅洁, 崔益斌, 李梅 (3074)
石油污染物对海底微生物燃料电池性能的影响及加速降解效应	孟瑶, 付玉彬, 梁生康, 陈伟, 柳昭慧 (3080)
Cu-Mn-Ce/ 分子筛催化剂吸附甲苯后的微波原位再生及床层温度分布探究	虎雪姣, 卜龙利, 梁欣欣, 孟海龙 (3086)
热处理对猪粪高固厌氧消化产甲烷能力的影响	胡玉瑛, 吴静, 王士峰, 曹知平, 王凯军, 左剑恶 (3094)
磷石膏对麦田 CO ₂ 排放和小麦产量的影响及其经济环境效益分析	李季, 吴洪生, 高志球, 尚小厦, 郑培慧, 印进, Kakpa Didier, 任迁琪, Ogou Katchele Faustin, 陈素云, 徐亚, 姚童言, 李炜, 钱景珊, 马世杰 (3099)
全氟和多氟烷基化合物的环境风险评估研究现状、不确定性与趋势分析	郝薛文, 李力, 王杰, 曹燕, 刘建国 (3106)
《环境科学》征订启事 (2757)	
《环境科学》征稿简则 (2767)	
信息 (2734, 2783, 3073, 3079)	

北京城区冬季降尘微量元素分布特征及来源分析

熊秋林¹, 赵文吉^{1*}, 郭逍宇¹, 陈凡涛¹, 束同同¹, 郑晓霞¹, 赵文慧²

(1. 首都师范大学资源环境与旅游学院, 城市环境过程与数字模拟国家重点实验室培育基地, 北京 100048; 2. 北京市环境保护监测中心, 北京 100044)

摘要: 降尘含量是评价大气污染程度的指标之一. 降尘中的微量元素尤其是重金属, 其质量分数超标会引发生态环境风险及人体健康风险. 为了研究北京城区冬季大气降尘中微量元素分布特征以及其中的重金属污染状况及其来源, 于 2013 年 11 月至 2014 年 3 月收集了北京城区及周边大气降尘样品 49 份. 用 Elan DRC II 型电感耦合等离子体质谱仪 (ICP-MS) 测试了样品中 40 种微量元素的质量分数, 结果表明, 一半以上的微量元素在降尘中的质量分数不足 $10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 约四分之一的微量元素其质量分数在 $10 \sim 100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 之间, Pb、Zr、Cr、Cu、Zn、Sr、Ba 等 7 种元素的质量分数超过 $100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$. 北京城区冬季降尘中 Pb、Cu、Zn、Bi、Cd 和 Mo 的含量分别是同期地表土壤中相应元素含量的 4.18、4.66、5.35、6.31、6.62 和 8.62 倍, 均超出土壤背景值的 300% 以上, 人为活动对北京城区降尘微量重金属含量的贡献较大. 通过 Pearson 相关分析、Kendall 相关分析以及主成分分析对大气降尘以及其中的 Cd、Mo、Nb、Ga、Co、Y、Nd、Li、La、Ni、Rb、V、Ce、Pb、Zr、Cr、Cu、Zn、Sr、Ba 等 20 种主要微量元素的来源进行了探讨. 研究发现, 北京城区冬季降尘的来源主要由地壳来源 (包括道路扬尘、建筑粉尘和远程传输的尘埃) 和化石燃料燃烧 (汽车尾气排放、煤炭燃烧、生物质燃烧和工业过程) 构成.

关键词: 降尘; 微量元素; Pearson 相关分析; Kendall 相关分析; 主成分分析

中图分类号: X144; X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)08-2735-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.2015.08.002

Distribution Characteristics and Source Analysis of Dustfall Trace Elements During Winter in Beijing

XIONG Qiu-lin¹, ZHAO Wen-ji^{1*}, GUO Xiao-yu¹, CHEN Fan-tao¹, SHU Tong-tong¹, ZHENG Xiao-xia¹, ZHAO Wen-hui²

(1. Urban Environmental Process and Digital Modeling Laboratory, School of Resources, Environment & Tourism, Capital Normal University, Beijing 100048, China; 2. Beijing Municipal Environmental Monitoring Center, Beijing 100044, China)

Abstract: The dustfall content is one of the evaluation indexes of atmospheric pollution. Trace elements especially heavy metals in dustfall can lead to risks to ecological environment and human health. In order to study the distribution characteristics of trace elements, heavy metals pollution and their sources in winter atmospheric dust, 49 dustfall samples were collected in Beijing City and nearby during November 2013 to March 2014. Then the contents (mass percentages) of 40 trace elements were measured by Elan DRC II type inductively coupled plasma mass (ICP-MS). Test results showed that more than half of the trace elements in the dust were less than $10 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; about a quarter were between $10 \sim 100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; while 7 elements (Pb, Zr, Cr, Cu, Zn, Sr and Ba) were more than $100 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$. The contents of Pb, Cu, Zn, Bi, Cd and Mo of winter dustfall in Beijing city were respectively 4.18, 4.66, 5.35, 6.31, 6.62, and 8.62 times as high as those of corresponding elements in the surface soil in the same period, which went beyond the soil background values by more than 300%. The contribution of human activities to dustfall trace heavy metals content in Beijing city was larger than that in the surrounding region. Then sources analysis of dustfall and its 20 main trace elements (Cd, Mo, Nb, Ga, Co, Y, Nd, Li, La, Ni, Rb, V, Ce, Pb, Zr, Cr, Cu, Zn, Sr, Ba) was conducted through a multi-method analysis, including Pearson correlation analysis, Kendall correlation coefficient analysis and principal component analysis. Research results indicated that sources of winter dustfall in Beijing city were mainly composed of the earth's crust sources (including road dust, construction dust and remote transmission of dust) and the burning of fossil fuels (vehicle emissions, coal combustion, biomass combustion and industrial processes).

Key words: dustfall; trace elements; Pearson correlation analysis; Kendall correlation analysis; principal component analysis

近年来,随着我国城市化和工业化的不断推进,城市降尘量大量增加,日益成为环境领域的关注热点. 降尘又称“落尘”,是指空气动力学当量直径大于 $10 \mu\text{m}$ 、依靠重力自然沉降于地面的空气颗粒物,它反映颗粒物的自然沉降量. 降尘中的微量元素 (trace elements, TEs), 尤其是有毒重金属, 易沉积

收稿日期: 2015-01-29; 修订日期: 2015-03-29

基金项目: 国家教育部博士点基金项目 (20111102110004); 国家自然科学基金青年科学基金项目 (41101404); 北京市教委科技计划项目 (KM201110028013); 北京市教委学科建设与研究生教育建设项目 (028-145321400)

作者简介: 熊秋林 (1988 ~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为 GIS 和 RS 在大气环境中的应用, E-mail: xiong_qi@163.com

* 通讯联系人, E-mail: zhwenji1215@163.com

在植物、土壤和水中,通过食物链的传递和累积,对生态环境和人类健康造成严重的危害^[1,2]。

早在 20 世纪 80 年代,国内外的学者就开展了降尘的相关研究工作^[3,4]。目前对降尘微量元素及其重金属的研究主要集中在分布特征^[5~7]、污染源分析^[8~10]以及生态环境和人体健康风险评价^[11,12]。研究方法主要有 Pb 同位素示踪法^[13,14]、主成分分析法(principal component analysis, PCA)^[15]、相关性分析法^[16,17]、聚类分析法(cluster analysis, CA)^[18]、富集因子法(enrichment factor, EF)^[19,20]、地积累污染指数法^[21~23]、健康风险评价法^[24]以及磁学参数法^[25]。Yan 等^[26]利用 MODIS 卫星和地面光谱数据建立遥感反演模型,模拟了北京城区的降尘量。Ma 等^[27]研究发现重金属(铜、锰、锌、铅)含量超标是典型的汽车废气污染所致。文献^[28]研究发现,钒、铬、镍、锰等重金属的高含量与电厂的分布空间上相关;重金属在降尘中的含量与在土壤中的含量相比富集效应不明显。

国内外许多研究报道和评价了降尘微量重金属元素污染^[29~31],然而有关降尘中其它微量元素的含量和分布特征研究相对缺乏。本研究主要以北京城区冬季降尘以及其中的微量元素为对象,探讨了降尘中微量元素的含量分布及其变异特征,并通过 Pearson 相关分析、Kendall 相关分析和主成分分析方法考察了北京城区冬季降尘的主要来源。

1 材料与方法

大气降尘采样严格按照国家标准(GB/T 15265-1994)执行。集尘缸选用高 30 cm、内径 15 cm、缸底平整的圆筒形玻璃缸。采样点一般设在矮建筑物的屋顶或根据需要设在电线杆上(集尘缸统一设在离地面 2.5 m 高处,收集该位置的大气降尘),且附近(10 m×10 m)无高大建筑,且避开烟囱和交通主干道等点、线污染源的局部污染。此外,采样点的选择要先考虑集尘缸不易损坏,还要考虑易于更换集尘缸,且要避开高大建筑物及局部污染源。2013 年 11 月 15 日至 2014 年 3 月 5 日(北京市供暖期),遵循“随机、均匀”的布点原则,分别在北京城区及周边地区布置采样点 49 个,其中周边地区有 13 个采样点,作为本研究的对照,如图 1。

集尘缸在放到采样点之前,加入少量乙二醇(防止冬季冰冻,保持缸底湿润,抑制微生物及藻类生长),以占满缸底为准,加蒸馏水量视当地的气候情况而定。按月定期更换集尘缸一次,取缸时核对地

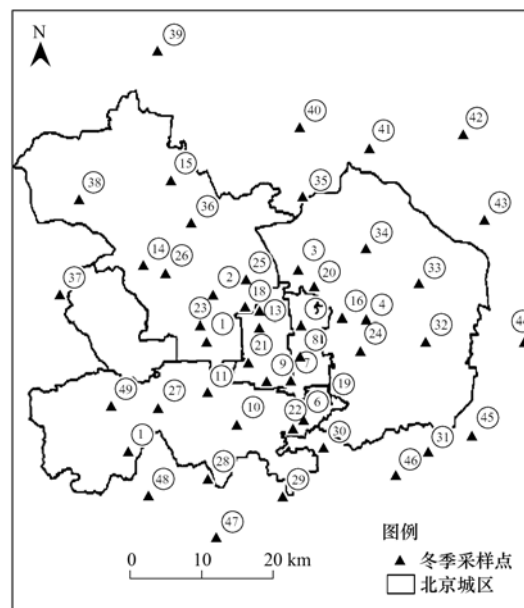


图 1 北京城区及周边降尘采样点分布示意

Fig. 1 Schematic graph of sampling points of dustfall in Beijing City and surrounding region

点、缸号,并记录取缸时间。在夏季多雨季节,为防止缸内水满溢出,及时更换新缸,采集的样品合并后测定。集尘缸采集的大气降尘样品的重量在 100 ~ 1 000 mg 之间。降尘样品收集完成后,用密封盖密封;并同步收集采样点附件的地表土样品,用专用塑料袋密封保存。

所有样品均使用玛瑙研钵充分研磨,过 100 目筛。准确称取 40 mg 样品粉末于聚四氟乙烯内胆中,加入 0.6 mL HNO_3 和 2 mL HF ,封盖。待静置后,放入防腐高效溶样罐罐体,在防腐烘箱内 150℃ 加热 24 h。待冷却后,加 0.5 mL HClO_4 ,并敞口放置在 120℃ 的防腐电热板上至半干。随后加入 1 mL HNO_3 和 1 mL H_2O ,密闭置于防腐烘箱 150℃ 回溶 12 h。冷却后将溶液转移至聚酯瓶内,并用高纯水定容至 40 g。

本研究中,样品元素质量分数测试所用的仪器为美国 Perkin Elmer 公司生产的 Elan DRC II 型电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS),符合全国土壤污染状况调查样品分析测试技术规定以及最新的土壤环境质量标准 GB 15618-2008 中有关土壤污染分析测试方法的要求。通过 ICP-MS 测定 Lu、Tm、Tb、Ta、Ho、Eu、Yb、Er、B、Cd、U、Be、Hf、Dy、Cs、Sm、Gd、W、Mo、Pr、Sc、Th、Cr、Pb、Cu、Zr、Sr、Zn、Ba、Nb、Ga、Co、Y、Nd、La、Li、Ni、Rb、Ce、V 等 40 种微量元素的质量分数。ICP-MS 法可以实现多元素分析,具有灵敏度高、检出限低,分析取样量少等优点,它可以同时测量周期表中大多数元素,

测定分析物浓度可低至 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 的水平. 以上元素含量测定工作均在中国科学院海洋研究所完成. 且采用国家海洋沉积物一级标准物质 GBW07315、GBW07316, 美国地质调查局玄武岩标准物质 BCR-2、BHVO-2 作质量监控. 本研究的数据分析在 Excel 和 SPSS 17.0 软件中完成.

2 结果与讨论

2.1 微量元素含量分布特征

根据样品元素质量分数测试结果(样本数为

49), 分别统计了北京城区及周边冬季大气降尘中 40 种微量元素质量分数的最小值、最大值、极值比、平均值、中值、标准偏差以及变异系数, 见表 1 (北京城区) 和表 2 (北京周边). 从表 1 中可以看出, 北京城区冬季大气降尘微量元素之间含量差异非常大, Lu、Tm、Tb、Ho、Ta、Eu、Yb、Er、U、Be、Cd、Bi、Hf、Dy、Cs、Sm、Gd、W、Pr、Th、Mo、Sc 等 22 种元素, 其质量分数的平均值和中值都不足 $10\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 其中, Lu 的含量最低, 仅有 $0.2\text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 在北京城区冬季大气降尘中的含量最少; Nb、Ga、

表 1 北京城区冬季降尘微量元素统计/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$
Table 1 Statistics of dustfall trace elements of Beijing City in winter/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$

微量元素	最小值	最大值	极值比	平均值	中值	标准偏差	变异系数	背景值	背景比值
Ba	604.5	8 565.4	14.2	1 462.3	908.4	1 491.99	1.02	633.9	2.31
Be	1.4	4.5	3.3	2.6	2.5	0.62	0.24	2.5	1.03
Bi	0.8	9.9	13.0	3.4	2.8	1.90	0.56	0.5	6.31
Cd	0.9	13.1	14.6	3.0	2.7	2.03	0.67	0.5	6.62
Ce	37.6	1 417.2	37.7	106.6	56.7	239.49	2.25	60.0	1.78
Co	10.9	41.4	3.8	15.4	14.7	4.90	0.32	10.2	1.52
Cr	85.9	1 242.1	14.5	195.9	130.4	259.72	1.33	76.8	2.55
Cs	2.6	6.7	2.6	3.8	3.7	0.71	0.19	3.8	1.01
Cu	75.9	523.7	6.9	239.2	218.5	108.60	0.45	51.3	4.66
Dy	2.0	4.4	2.3	3.0	3.1	0.44	0.15	3.3	0.92
Er	1.2	2.7	2.2	1.8	1.9	0.28	0.16	1.9	0.93
Eu	0.6	1.3	2.3	0.9	0.9	0.15	0.17	1.1	0.85
Ga	9.9	21.8	2.2	13.3	13.0	2.03	0.15	14.8	0.90
Gd	2.7	8.3	3.1	4.4	4.4	0.92	0.21	4.6	0.96
Hf	1.8	4.8	2.6	3.1	3.1	0.54	0.17	3.3	0.93
Ho	0.4	1.0	2.5	0.6	0.6	0.10	0.16	0.7	0.91
La	18.8	686.9	36.5	47.5	28.9	109.90	2.31	30.7	1.55
Li	22.1	55.5	2.5	33.0	32.9	5.84	0.18	27.0	1.22
Lu	0.2	0.4	2.3	0.2	0.2	0.04	0.16	0.3	0.90
Mo	2.9	38.6	13.4	9.9	9.5	5.98	0.61	1.1	8.62
Nb	6.8	20.4	3.0	11.1	10.6	2.95	0.26	11.7	0.95
Nd	14.7	40.1	2.7	23.4	23.4	4.58	0.20	26.0	0.90
Ni	30.7	95.8	3.1	61.2	54.4	16.97	0.28	25.0	2.45
Pb	40.3	500.0	12.4	147.1	109.6	111.26	0.76	35.2	4.18
Pr	4.0	12.9	3.2	6.4	6.3	1.51	0.24	6.9	0.93
Rb	38.0	91.3	2.4	56.7	56.9	8.75	0.15	79.3	0.71
Sc	5.6	25.0	4.5	9.3	8.7	3.35	0.36	8.2	1.13
Sm	2.7	6.1	2.2	4.2	4.2	0.69	0.17	4.8	0.88
Sr	219.7	9 220.9	42.0	685.1	369.0	1 485.15	2.17	300.5	2.28
Ta	0.4	1.4	3.2	0.7	0.6	0.18	0.27	0.7	0.96
Tb	0.4	0.9	2.3	0.6	0.6	0.09	0.15	0.6	0.96
Th	4.7	11.6	2.4	7.7	7.7	1.26	0.16	8.4	0.92
Tm	0.2	0.4	2.4	0.3	0.3	0.04	0.16	0.3	0.92
U	1.3	3.5	2.6	2.2	2.2	0.38	0.18	1.9	1.14
V	53.4	124.1	2.3	80.7	80.0	13.58	0.17	75.5	1.07
W	2.2	23.6	10.9	6.2	5.3	3.49	0.57	1.8	3.35
Y	11.5	29.0	2.5	19.0	19.1	3.17	0.17	18.7	1.02
Yb	1.0	2.5	2.5	1.7	1.7	0.27	0.16	1.8	0.91
Zn	234.6	1 000.0	4.3	713.2	654.3	249.18	0.35	133.4	5.35
Zr	80.6	235.8	2.9	134.9	132.7	28.56	0.21	133.2	1.01

Co、Y、Nd、Li、La、Ni、Rb、V、Ce 等 11 种元素,其质量分数的平均值和中值在 10 ~ 100 mg·kg⁻¹之间(其中,Ce 的平均值和中值分别为 106.6 mg·kg⁻¹和 56.7 mg·kg⁻¹),在大气降尘中的含量较少;Pb、Zr、Cr、Cu、Zn、Sr、Ba 等 7 种元素,其质量分数的平均值和中值超过 100 mg·kg⁻¹(Ba 的质量分数最高,其平均值和中值分别为 1 462.3 mg·kg⁻¹和 908.4 mg·kg⁻¹),在大气降尘中的含量较多,是北京城区冬季大气降尘中的主要微量元素.与北京周边冬季

大气降尘微量元素含量(表 2)相比,大部分微量元素在城区与周边地区的含量差异不大;但重金属 Pb、Cr、Cu、Zn 在城区的含量(分别为 147.1、195.9、239.2 和 713.2 mg·kg⁻¹)明显高于周边地区的含量(分别为 91.6、125.1、131.9 和 514.5 mg·kg⁻¹),质量分数分别超出 61%、57%、81% 和 39%.北京城区相比周边地区,人口更密集、交通生产生活活动更剧烈,说明人为活动对降尘微量重金属含量的贡献较大.

表 2 北京周边冬季降尘微量元素统计/mg·kg⁻¹

Table 2 Statistics of dustfall trace elements of the surrounding region of Beijing in winter/mg·kg⁻¹

微量元素	最小值	最大值	极值比	平均值	中值	标准偏差	变异系数	背景值	背景比值
Ba	537.9	2 633.9	4.9	884.0	752.9	535.40	0.61	633.9	1.39
Be	2.4	3.7	1.6	2.8	2.8	0.40	0.14	2.5	1.13
Bi	0.9	4.6	5.3	1.9	1.7	0.97	0.50	0.5	3.55
Cd	1.1	3.4	3.1	1.9	1.8	0.64	0.34	0.5	4.12
Ce	43.0	67.8	1.6	59.2	61.0	6.79	0.11	60.0	0.99
Co	12.7	34.4	2.7	17.7	15.1	7.27	0.41	10.2	1.74
Cr	92.9	199.0	2.1	125.1	109.1	35.92	0.29	76.8	1.63
Cs	3.3	4.8	1.4	3.9	4.1	0.45	0.12	3.8	1.04
Cu	85.9	200.5	2.3	131.9	114.8	39.68	0.30	51.3	2.57
Dy	2.8	10.8	3.9	4.3	3.4	2.31	0.54	3.3	1.28
Er	1.5	2.1	1.4	1.9	1.9	0.16	0.08	1.9	1.00
Eu	0.7	1.2	1.7	1.0	1.0	0.12	0.12	1.1	0.91
Ga	10.6	15.5	1.5	14.0	14.4	1.35	0.10	14.8	0.95
Gd	3.6	5.2	1.4	4.6	4.8	0.47	0.10	4.6	1.00
Hf	2.5	3.8	1.5	3.1	3.1	0.41	0.13	3.3	0.93
Ho	0.6	0.8	1.5	0.7	0.7	0.07	0.10	0.7	1.00
La	22.8	33.8	1.5	30.3	31.5	3.23	0.11	30.7	0.99
Li	26.4	46.0	1.7	35.2	35.4	4.98	0.14	27.0	1.31
Lu	0.2	0.3	1.4	0.3	0.3	0.03	0.10	0.3	0.96
Mo	3.3	11.6	3.5	5.3	4.6	2.24	0.42	1.1	4.67
Nb	8.3	12.9	1.6	11.2	11.7	1.33	0.12	11.7	0.96
Nd	19.3	29.0	1.5	25.2	26.0	2.72	0.11	26.0	0.97
Ni	34.6	80.5	2.3	48.8	44.9	11.78	0.24	25.0	1.95
Pb	61.8	136.1	2.2	91.6	86.6	22.00	0.24	35.2	2.60
Pr	5.1	8.1	1.6	6.9	7.1	0.82	0.12	6.9	1.00
Rb	48.3	74.5	1.5	61.8	61.5	7.86	0.13	79.3	0.78
Sc	6.0	10.0	1.7	8.2	8.4	1.07	0.13	8.2	0.99
Sm	3.4	5.3	1.6	4.6	4.8	0.50	0.11	4.8	0.95
Sr	256.9	5 219.4	20.3	754.1	387.0	1 342.75	1.78	300.5	2.51
Ta	0.5	0.8	1.4	0.7	0.7	0.08	0.11	0.7	0.96
Tb	0.5	0.7	1.6	0.6	0.6	0.07	0.11	0.6	1.03
Th	6.4	10.2	1.6	8.5	8.7	1.01	0.12	8.4	1.01
Tm	0.2	0.3	1.4	0.3	0.3	0.03	0.10	0.3	0.99
U	1.8	2.6	1.5	2.3	2.3	0.23	0.10	1.9	1.18
V	63.6	90.0	1.4	80.9	81.7	7.34	0.09	75.5	1.07
W	2.6	17.4	6.6	7.1	5.5	4.49	0.64	1.8	3.84
Y	15.3	52.0	3.4	22.0	19.7	9.13	0.42	18.7	1.18
Yb	1.5	2.0	1.3	1.8	1.8	0.15	0.09	1.8	0.98
Zn	262.8	1 000.0	3.8	514.5	433.7	246.05	0.48	133.4	3.86
Zr	103.6	224.5	2.2	146.1	135.3	35.61	0.24	133.2	1.10

分析对比微量元素的极大值与最小值(表 1),可以发现,北京城区冬季大气降尘同一种微量元素其含量分布的差异性同样非常大.通过求算两者的极差(极大值与最小值之差)和极值比(极大值与最

小值之比),可以发现不同微量元素之间其含量分布范围的差异性较大. Lu、Tm、Tb、Ho、Eu、Ta、Er、Yb、U、Dy、Hf、Be、Sm、Cs、Gd、Th、Pr、Bi 等 18 种微量元素的极差在 0.2 ~ 9.1 mg·kg⁻¹之间;

Ga、Cd、Nb、Y、Sc、W、Nd、Co、Li、Mo、Rb、Ni、V 等 13 种微量元素的极差在 11.9 ~ 70.7 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 之间; Zr、Cu、Pb、La、Zn 等 5 种微量元素的极差在 155.2 ~ 765.4 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 之间; Cr、Ce、Ba、Sr 等 4 种微量元素的极差在 1 156.2 ~ 9 001.2 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 之间, 可见这些元素的质量分数的绝对值分布范围非常广, 变化幅度非常大. 与北京周边地区微量元素的极值对照, 大部分元素在两个地区差异不大, 但 3 种主要重金属 Cr、Pb、Cu 在北京城区和北京周边的极值分别为 1 156.2、459.7、447.8 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 106.1、74.3、114.6 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 差异较大, 说明 Cr、Pb、Cu 这 3 种微量重金属含量在北京城区更易受人为影响而波动. Ga、Sm、Er、Dy、Tb、Eu、V、Lu、Rb、Tm、Th、Ho、Yb、Y、Li、Cs、Hf、U、Nd、Zr、Nb 等 21 种微量元素的极值比在 2.2 ~ 3.0 之间; Gd、Ni、Pr、Ta、Be、Co、Zn、Sc、Cu 等 9 种微量元素的极值比在 3.1 ~ 6.9 之间; W、Pb、Bi、Mo、Ba、Cr、Cd 等 7 种微量元素的极值比在 10.9 ~ 14.6 之间; La、Ce、Sr 这 3 种微量元素的极值比分别高达 36.5、37.7、42.0, 是含量波动最大的 3 种元素, 空间分布极不均匀. 与北京城区相比, 北京周边微量元素的极值比要小得多, Yb 等 31 种微量元素的极值比在 1.3 ~ 2.7 之间; Cd 等 8 种微量元素的极值比在 3.1 ~ 6.6 之间; Sr 的极值比最高, 为 20.3; 说明北京城区微量元素含量的波动要比北京周边的剧烈.

由上述极差和极值比的分析来看, 北京城区冬季降尘中大部分微量元素含量的分布较离散. 为了具体考察这些微量元素的变异程度, 通过标准偏差和变异系数求算了微量元素的变异系数[变异系数 $C.V = (\text{标准偏差 } SD \div \text{平均值 } MN) \times 100\%$], 结果见表 1. 从计算的结果来看, Dy、Ga、Tb、Rb、Er、Lu、Tm、Yb、Th、Ho、Sm、Y、Eu、V、Hf、U、Li、Cs、Nd、Gd、Zr、Pr、Be、Nb、Ta、Ni、Co、Zn、Sc、Cu 等 30 种微量元素的变异系数在 14.55% ~ 45.40% 之间; Bi、W、Mo、Cd、Pb 等 5 种微量元素的变异系数在 55.78% ~ 75.61% 之间; Ba、Cr、Sr、Ce、La 的变异系数分别为 102.03%、132.57%、216.77%、224.75%、231.26%. 北京周边地区冬季降尘微量元素含量的变异系数相对要小得多, Er 等 35 种微量元素的变异系数在 8.09% ~ 47.82% 之间; Bi 等 4 种微量元素的变异系数在 50.47% ~ 63.53% 之间; Sr 的变异系数最高, 达到 178.05%; 表明北京城区微量元素含量的变异性要比北京周边

的更强, 观测值的离散程度更大.

为了进一步了解 2013 年冬季北京城区降尘微量元素含量状况, 将本次测试的降尘微量元素质量分数与同步测定的地表土壤元素背景值进行对照, 将元素质量分数“平均值”与“背景值”的比值定义为“背景比值”(表 1 和表 2). 从计算的结果来看, Rb、Eu、Sm、Ga、Nd、Lu、Yb、Ho、Th、Dy、Tm、Hf、Pr、Er、Nb、Tb、Ta、Gd、Cs、Zr、Y、Be、V、Sc、U、Li 等 26 种微量元素的背景比值在 0.71 ~ 1.22 之间, 与地表土壤中的含量相当; Co、La、Ce、Sr、Ba、Ni、Cr、W 等 8 种微量元素的背景比值在 1.52 ~ 3.35 之间, 比地表土壤中的含量高出 50% ~ 250%; Pb、Cu、Zn、Bi、Cd、Mo 的背景比值分别为 4.18、4.66、5.35、6.31、6.62、8.62, 超出地表土壤中的含量 300% 以上, 说明北京城区冬季大气重金属存在一定的污染. 与北京城区相比, 北京周边降尘中的微量元素的背景比值普遍要小, Rb 等 29 种微量元素的背景比值在 0.78 ~ 1.39 之间; Cr 等 9 种微量元素的背景比值在 1.63 ~ 3.86 之间; Cd 和 Mo 的背景比值分别为 4.12 和 4.67; 说明冬季降尘在北京城区和北京周边地区均存在一定的微量重金属元素污染状况, 且北京城区的污染较北京周边地区的要严重.

综合以上分析可以得出, 北京城区冬季降尘中的微量元素含量分布具有如下特征: 不同微量元素之间含量差异非常大, 一半以上的微量元素在降尘中的质量分数不足 10 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 约四分之一的微量元素其质量分数在 10 ~ 100 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 之间, Pb、Zr、Cr、Cu、Zn、Sr、Ba 等 7 种元素的质量分数超过 100 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ (其中 Ba 的质量分数最高, 为 1 462.3 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$); 北京城区冬季降尘中大部分微量元素含量的分布较离散; 北京城区和北京周边地区均有微量重金属元素污染, 且北京城区的污染较北京周边地区的要严重; 人为活动对北京城区降尘微量重金属含量的贡献较大.

2.2 主要降尘元素含量的相关分析

运用统计软件 SPSS 对北京城区冬季降尘中 Cd、Mo、Nb、Ga、Co、Y、Nd、Li、La、Ni、Rb、V、Ce、Pb、Zr、Cr、Cu、Zn、Sr、Ba 等 20 种主要降尘微量元素 (Cd、Mo 为常见微量重金属, 其余 18 种微量元素质量分数均大于 10 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) 进行相关分析. 用直方图检验对变量 (Cd、Mo、Nb、Ga、Co、Y、Nd、Li、La、Ni、Rb、V、Ce、Pb、Zr、Cr、Cu、Zn、Sr、Ba) 进行正态分布检验发现, Mo、Nb、Ga、Y、

Nd、Li、Rb、V、Zr、Cu 呈正态分布. 因此对 Mo、Nb、Ga、Y、Nd、Li、Rb、V、Zr、Cu 进行 Pearson 相关分析(表 3),对 Cd、Co、La、Ni、Ce、Pb、Zn、Sr、Ba、Cr 进行 Kendall 相关分析(表 4). 从表 3 Pearson 积矩相关系数可以看出,Mo 与 Cu 在置信度为 0.01 时极显著相关,Mo 与 Y 在置信度为 0.05 时显著负相关,Mo 与除 Y、Cu 外其它微量元素相关性不显著; Cu 与除 Mo 外其它微量元素相关性不显著; 除 Mo、Cu 外其它微量元素两两之间,绝大部分在置信度为 0.01 时极显著相关(Nb 与 Nd 在置信度为

0.05 时显著相关),这表明 Mo、Cu 与其它微量元素(Nb、Ga、Y、Nd、Li、Rb、V、Zr)在来源上有很大差异. 从表 4 Kendall 秩相关系数可以看出,Co、La、Ce 两两之间在置信度为 0.01 时极显著相关; Cd、Ni、Pb、Zn、Cr 两两之间,绝大部分在置信度为 0.01 时极显著相关(Pb 分别与 Zn、Cr、Ni 在置信度为 0.05 时显著相关); Sr 与 Ba 在置信度为 0.01 时极显著相关,说明 3 组微量元素(Co、La、Ce; Cd、Ni、Pb、Zn、Cr; Sr、Ba)分别来自 3 类不同的来源.

表 3 降尘元素含量的 Pearson 相关矩阵¹⁾ (N=36)

Table 3 Pearson correlation matrix of element concentrations in the dustfall (N=36)

	Mo	Nb	Ga	Y	Nd	Li	Rb	Zr	Cu	V
Mo	1	-0.06	0	-0.33 *	-0.28	-0.14	-0.32	-0.24	0.43 **	-0.17
Nb		1	0.49 **	0.53 **	0.37 *	0.51 **	0.54 **	0.61 **	-0.01	0.44 **
Ga			1	0.82 **	0.63 **	0.88 **	0.84 **	0.74 **	0.09	0.81 **
Y				1	0.66 **	0.82 **	0.80 **	0.74 **	-0.2	0.75 **
Nd					1	0.64 **	0.72 **	0.47 **	-0.19	0.84 **
Li						1	0.80 **	0.70 **	0	0.78 **
Rb							1	0.64 **	-0.11	0.73 **
Zr								1	-0.02	0.59 **
Cu									1	-0.07
V										1

1) * 表示在 0.05 水平(双侧)上显著相关; ** 表示在 0.01 水平(双侧)上显著相关

表 4 降尘元素含量的 Kendall 相关矩阵 (N=36)

Table 4 Kendall correlation matrix of element concentrations in the dustfall (N=36)

	Cd	Co	La	Ni	Ce	Pb	Zn	Sr	Ba	Cr
Cd	1	0.30 *	0	0.40 **	0.01	0.40 **	0.40 **	-0.15	0.24 *	0.43 **
Co		1	0.32 **	0.37 **	0.34 **	0.17	0.17	0.08	0.11	0.45 **
La			1	-0.06	0.87 **	0.15	-0.11	0.27 *	0.08	0.21
Ni				1	-0.08	0.23 *	0.37 **	-0.11	0.05	0.40 **
Ce					1	0.12	-0.14	0.21	0.03	0.22
Pb						1	0.24 *	0.11	0.34 **	0.26 *
Zn							1	0.08	0.22	0.31 **
Sr								1	0.38 **	0.06
Ba									1	0.29 *
Cr										1

1) * 表示在置信度(双侧)为 0.05 时,相关性是显著的; ** 表示在置信度(双侧)为 0.01 时,相关性是显著的

2.3 降尘元素含量 PCA 分析

主成分分析法(PCA)通过计算变量方差以及协方差矩阵的特征量,将多个原始环境变量通过降维转化成少数几个综合变量,使人们能够从众多环境污染物的信息中识别出起主导作用的成分,从而达到对环境污染物的信息进行集中和提取的目的,被广泛用于大气降尘污染评价分析中. 为了研究 2013 年冬季北京城区降尘中主要微量元素(Cd、Mo、Nb、Ga、

Co、Y、Nd、Li、La、Ni、Rb、V、Ce、Pb、Zr、Cr、Cu、Zn、Sr、Ba)的来源,对各微量元素质量分数进行主成分因子分析,根据特征向量选取准则(特征值>1.0),共提取 4 个主成分,见表 5 和表 6.

从表 5 中可以看出,这 4 个主成分可以解释原始变量的 75.693%,其中第一主成分占解释变量的 45.402%,提取的 4 个主成分代表了本次大气降尘中微量元素的主要来源. 经最大公差旋转后,各主成

分因子负荷矩阵见表 6。

表 5 主成分解释的总方差

Table 5 Total variance of principal components explained			
成分	特征值	方差/%	累积/%
1	9.080	45.402	45.402
2	3.334	16.672	62.074
3	1.575	7.877	69.951
4	1.148	5.741	75.693

从表 6 中可以看出,第一主成分主要由 Ga、La、Co、Li、Sr、Ce、Rb、V、Y、Cd、Zr、Nd、Nb 和 Pb 构成,其因子负荷分别为 0.92、0.90、0.90、0.89、0.88、0.87、0.86、0.82、0.81、0.75、0.68、

0.66、0.59 和 0.55;第二主成分主要由 Mo、Zn、Cu、Ni 和 Cd 构成,其因子负荷分别为 0.73、0.70、0.66、0.61 和 0.58;第三主成分主要由 Cr、Ni 构成,其因子负荷分别为 0.73、0.57;第四主成分主要由 Ba 构成,其因子负荷为 0.73。

第一主成分被认为是代表了地壳来源^[32],包括道路的再悬浮粉尘、建筑粉尘和远程传输的尘埃。第二主成分被认为是代表了化石燃料燃烧,主要包括汽车尾气排放、煤炭燃烧、生物质燃烧和工业过程^[32]。第三主成分被认为是代表了地表扬尘和汽车尾气排放的混合来源^[33]。第四主成分主要代表了地表扬尘。

表 6 降尘微量元素的成分矩阵

Table 6 Component matrix of the dustfall trace elements										
成分	Cd	Mo	Nb	Ga	Co	Y	Nd	Li	La	Rb
1	0.75	-0.03	0.59	0.92	0.90	0.81	0.66	0.89	0.90	0.86
2	0.58	0.73	-0.20	-0.11	0.25	-0.37	-0.47	-0.16	0.22	-0.36
3	-0.14	0.02	-0.09	0.01	0.10	0.22	0.18	0.13	-0.15	-0.03
4	-0.15	0.00	0.07	0.13	-0.15	0.11	-0.14	0.11	-0.22	-0.03
成分	Ni	V	Ce	Zr	Pb	Cr	Cu	Sr	Zn	Ba
1	0.22	0.82	0.87	0.68	0.55	0.10	0.13	0.88	0.11	0.21
2	0.61	-0.26	0.14	-0.35	0.39	0.25	0.66	0.24	0.70	0.12
3	0.57	0.21	-0.11	-0.03	-0.26	0.73	-0.37	-0.21	0.29	-0.41
4	0.05	0.10	-0.30	0.44	-0.08	0.20	0.20	-0.12	0.24	0.73

3 结论

(1)北京城区冬季降尘中不同微量元素之间含量差异非常大,一半以上的微量元素在降尘中的质量分数不足 10 mg·kg⁻¹,约四分之一的微量元素其质量分数在 10 ~ 100 mg·kg⁻¹ 之间, Pb、Zr、Cr、Cu、Zn、Sr、Ba 等 7 种元素的质量分数超过 100 mg·kg⁻¹。与北京周边冬季大气降尘微量元素含量相比,大部分微量元素在城区与周边地区的含量差异不大;但重金属 Pb、Cr、Cu、Zn 在城区的含量(分别为 147.1、195.9、239.2 和 713.2 mg·kg⁻¹)明显高于周边地区的含量(分别为 91.6、125.1、131.9 和 514.5 mg·kg⁻¹),质量分数分别超出 61%、57%、81% 和 39%。北京城区相比周边地区,人口更密集、交通生产生活活动更剧烈,说明人为活动对降尘微量重金属含量的贡献较大。

(2)北京城区冬季降尘中微量元素含量分布的离散程度有差异, Dy、Ga 等 30 种微量元素的变异系数在 14.55% ~ 45.40% 之间;而 Bi、W、Mo、Cd、Pb、Ba、Cr、Sr、Ce、La 等 10 种微量元素的变异系数在 55.78% ~ 231.26% 之间,这些微量元素的高度空间分异是由于人为活动的强弱空间化差异

的影响。

(3)北京城区和北京周边地区均有微量重金属元素污染,且北京城区的污染较北京周边地区的要严重。北京城区冬季降尘中 Pb、Cu、Zn、Bi、Cd 和 Mo 的含量分别是同期地表土壤中相应元素含量的 4.18、4.66、5.35、6.31、6.62 和 8.62 倍,均超出土壤背景值的 300% 以上。人为活动对北京城区降尘微量重金属含量的贡献较大。

(4)通过 Pearson 相关分析、Kendall 相关分析以及主成分分析对大气降尘以及其中的 Cd、Mo、Nb、Ga、Co、Y、Nd、Li、La、Ni、Rb、V、Ce、Pb、Zr、Cr、Cu、Zn、Sr、Ba 等 20 种主要微量元素的来源进行了探讨。研究发现,北京城区冬季降尘的来源主要由地壳来源(包括道路扬尘、建筑粉尘和远程传输的尘埃)和化石燃料燃烧(汽车尾气排放、煤炭燃烧、生物质燃烧和工业过程)构成。

致谢:本实验的样品元素测试工作在中国科学院青岛海洋研究所完成,在此表示感谢。

参考文献:

[1] Pan Y P, Wang Y S. Atmospheric wet and dry deposition of trace elements at 10 sites in Northern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, 15: 951-972.
[2] Kampa M, Castanas E. Human health effects of air pollution

- [J]. Environmental Pollution, 2008, **151**(2): 362-367.
- [3] Vallack H W, Shillito D E. Suggested guidelines for deposited ambient dust[J]. Atmospheric Environment, 1998, **32**(16): 2737-2744.
- [4] Liu T S, Gu X F, An Z S, *et al.* The dust fall in Beijing, China on April 18, 1980[J]. Geological Society of America Special Papers, 1981, **186**: 149-157.
- [5] 焦荔, 沈建东, 姚琳, 等. 杭州市大气降尘重金属污染特征及来源研究[J]. 环境污染与防治, 2013, **35**(1): 73-76, 88.
- [6] 张春荣, 吴正龙, 田红, 等. 青岛市区大气降尘重金属的特征和来源分析[J]. 环境化学, 2014, **33**(7): 1187-1193.
- [7] 梁俊宁, 刘杰, 陈洁, 等. 陕西西部某工业园区采暖期大气降尘重金属特征[J]. 环境科学学报, 2014, **34**(2): 318-324.
- [8] 汤洁, 韩维峥, 李娜, 等. 哈尔滨市城区大气重金属沉降特征和来源研究[J]. 光谱学与光谱分析, 2011, **31**(11): 3087-3091.
- [9] Huang S H, Tu J, Liu H Y, *et al.* Multivariate analysis of trace element concentrations in atmospheric deposition in the Yangtze River Delta, East China[J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(36): 5781-5790.
- [10] Mijic Z, Stojic A, Perisic M, *et al.* Seasonal variability and source apportionment of metals in the atmospheric deposition in Belgrade[J]. Atmospheric Environment, 2010, **44**(30): 3630-3637.
- [11] 李萍, 薛栗尹, 王胜利, 等. 兰州市大气降尘重金属污染评价及健康风险评价[J]. 环境科学, 2014, **35**(3): 1021-1028.
- [12] 唐荣莉, 马克明, 张育新, 等. 北京城市道路灰尘重金属污染的健康风险评价[J]. 环境科学学报, 2012, **32**(8): 2006-2015.
- [13] 杨柳, 李旭祥. 大气降尘中重金属元素及铅同位素分析[J]. 西安交通大学学报, 2014, **48**(2): 118-124.
- [14] Lee P K, Choia B Y, Kang M J. Assessment of mobility and bioavailability of heavy metals in dry depositions of Asian dust and implications for environmental risk[J]. Chemosphere, 2015, **119**: 1411-1421.
- [15] Xia D S, Wang B, Yu Y, *et al.* Combination of magnetic parameters and heavy metals to discriminate soil contamination sources in Yinchuan — A typical oasis city of Northwestern China[J]. Science of the Total Environment, 2014, **485-486**: 83-92.
- [16] 邓昌州, 孙广义, 杨文, 等. 黑龙江甘南县大气降尘重金属元素沉降通量及来源分析[J]. 地球与环境, 2012, **40**(3): 342-348.
- [17] 邓昌州, 平先权, 杨文, 等. 探讨富集因子背景值的选择[J]. 环境化学, 2012, **31**(9): 1362-1367.
- [18] 张春荣, 吴正龙, 姚春卉, 等. 青岛市区大气降尘重金属对人体健康风险的评价[J]. 环境科学, 2014, **35**(7): 2736-2741.
- [19] Bahena-Manjarrez J, Rosales-Hoz L, Carranza-Edwards A. Spatial and temporal variation of heavy metals in a tropical estuary[J]. Environmental Geology, 2002, **42**(6): 575-582.
- [20] Li B, Wang Z L. Anthropogenic influence on rainwater in the Xi'an City, Northwest China: Constraints from sulfur isotope and trace elements analyses[J]. Journal of Geochemical Exploration, 2014, **137**: 65-72.
- [21] 杨孝智, 陈扬, 徐殿斗, 等. 北京地铁站灰尘中重金属污染特征及健康风险评价[J]. 中国环境科学, 2011, **31**(6): 944-950.
- [22] Liu M D, Li Y, Zhang W, *et al.* Assessment and Spatial distribution of zinc pollution in agricultural soils of Chaoyang, China[J]. Procedia Environmental Sciences, 2013, **18**: 283-289.
- [23] Khuzestani R B, Souri B. Evaluation of heavy metal contamination hazards in nuisance dust particles, in Kurdistan Province, western Iran[J]. Journal of Environmental Sciences, 2013, **25**(7): 1346-1354.
- [24] 胡恭任, 于瑞莲, 林燕萍, 等. TCLP 法评价泉州市大气降尘重金属的生态环境风险[J]. 矿物学报, 2013, **33**(1): 1-9.
- [25] Qiao Q Q, Huang B C, Zhang C X, *et al.* Assessment of heavy metal contamination of dustfall in northern China from integrated chemical and magnetic investigation [J]. Atmospheric Environment, 2013, **74**: 182-193.
- [26] Yan X, Shi W Z, Zhao W J, *et al.* Mapping dustfall distribution in urban areas using remote sensing and ground spectral data[J]. Science of the Total Environment, 2015, **506-507**: 604-612.
- [27] Ma M M, Hu S Y, Lin H, *et al.* Magnetic responses to traffic related contamination recorded by backfills: A case study from Tongling City, China[J]. Journal of Applied Geophysics, 2014, **107**: 119-128.
- [28] Meza-Montenegro M M, Gandol A J, Santana-Alcántar M E, *et al.* Metals in residential soils and cumulative risk assessment in Yaqui and Mayo agricultural valleys, northern Mexico [J]. Science of the Total Environment, 2012, **433**: 472-481.
- [29] Arruti A, Fernández-Olmo I, Irabien A. Regional evaluation of particulate matter composition in an Atlantic coastal area (Cantabria region, northern Spain): Spatial variations in different urban and rural environments [J]. Atmospheric Research, 2011, **101**(1-2): 280-293.
- [30] Wong C S C, Li X D, Zhang G, *et al.* Atmospheric deposition of heavy metals in the Pearl River Delta, China[J]. Atmospheric Environment, 2003, **37**(6): 767-776.
- [31] Okubo A, Takeda S, Obata H. Atmospheric deposition of trace metals to the western North Pacific Ocean observed at coastal station in Japan[J]. Atmospheric Research, 2013, **129-130**: 20-32.
- [32] Song S J, Wu Y, Jiang J K, *et al.* Chemical characteristics of size-resolved PM_{2.5} at a roadside environment in Beijing, China[J]. Environmental Pollution, 2012, **161**: 215-221.
- [33] Gao J J, Tian H Z, Cheng K, *et al.* Seasonal and spatial variation of trace elements in multi-size airborne particulate matters of Beijing, China: Mass concentration, enrichment characteristics, source apportionment, chemical speciation and bioavailability[J]. Atmospheric Environment, 2014, **99**: 257-265.

CONTENTS

Characterizing Beijing's Airborne Bacterial Communities in PM _{2.5} and PM ₁₀ Samples During Haze Pollution Episodes Using 16S rRNA Gene Analysis Method	WANG Bu-ying, LANG Ji-dong, ZHANG Li-na, <i>et al.</i> (2727)
Distribution Characteristics and Source Analysis of Dustfall Trace Elements During Winter in Beijing	XIONG Qiu-lin, ZHAO Wen-ji, GUO Xiao-yu, <i>et al.</i> (2735)
Pollution Characteristics of Aldehydes and Ketones Compounds in the Exhaust of Beijing Typical Restaurants	CHENG Jing-chen, CUI Tong, HE Wan-qing, <i>et al.</i> (2743)
Emission Characteristics of Vehicle Exhaust in Beijing Based on Actual Traffic Flow Information	FAN Shou-bin, TIAN Ling-di, ZHANG Dong-xu, <i>et al.</i> (2750)
Chemical Compositions in PM _{2.5} and Its Impact on Visibility in Summer in Pearl River Delta, China	YANG Yi-hong, QU Qun, LIU Sui-xin, <i>et al.</i> (2758)
Health Risk Assessment of Tunnel Workers Based on the Investigation and Analysis of Occupational Exposure to PM ₁₀	XIANG Hua-li, YANG Jun, QIU Zhen-zhen, <i>et al.</i> (2768)
Analysis on Emission Inventory and Temporal-Spatial Characteristics of Pollutants from Key Coal-Fired Stationary Sources in Jiangsu Province by On-Line Monitoring Data	ZHANG Ying-jie, KONG Shao-fei, TANG Li-li, <i>et al.</i> (2775)
Hydrogen and Oxygen Isotopic Compositions of Precipitation and Its Water Vapor Sources in Eastern Qaidam Basin	ZHU Jian-jia, CHEN Hui, GONG Guo-li (2784)
Distribution Characteristics of Sedimentary Pigments in the Changjiang Estuary and Zhe-Min Coast and Its Implications	LI Dong, YAO Peng, ZHAO Bin, <i>et al.</i> (2791)
Nutrients Input Characteristics of the Yangtze River and Wangyu River During the "Water Transfers on Lake Taihu from the Yangtze River"	PAN Xiao-xue, MA Ying-qun, QIN Yan-wen, <i>et al.</i> (2800)
Pollution Characteristics of Surface Runoff of Typical Town in Chongqing City	WANG Long-tao, DUAN Bing-zheng, ZHAO Jian-wei, <i>et al.</i> (2809)
Effect of Water and Sediment Regulation on the Transport of Particulate Organic Carbon in the Lower Yellow River	ZHANG Ting-ting, YAO Peng, WANG Jin-peng, <i>et al.</i> (2817)
Concentration and Source of Dissolved Organic Carbon in Snowpits of the Tibetan Plateau	YAN Fang-ping, KANG Shi-chang, CHEN Peng-fei, <i>et al.</i> (2827)
Variations of Inorganic Carbon and Its Impact Factors in Surface-Layer Waters in a Groundwater-Fed Reservoir in Karst Area, SW China	LI Jian-hong, PU Jun-bing, YUAN Dao-xian, <i>et al.</i> (2833)
Modeling the Influencing Factors of Karstification and Karst Carbon Cycle in Laboratory	ZHAO Rui-yi, LÜ Xian-fu, DUAN Yi-fan (2843)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of HCHs and DDTs in Surface Water Bodies in Xinxiang	FENG Jing-lan, YU Hao, LIU Shu-hui, <i>et al.</i> (2849)
Comparison Study of the Alkanes in Different Aquifer Medium Under Qingmuguan Underground System	LIANG Zuo-bing, SUN Yu-chuan, WANG Zun-bo, <i>et al.</i> (2857)
Spatial Distribution Characteristics of Different Species Mercury in Water Body of Changshou Lake in Three Gorges Reservoir Region	BAI Wei-yang, ZHANG Cheng, ZHAO Zheng, <i>et al.</i> (2863)
Influence of Marine Aquaculture Around Coal Power Plant on Mercury Species Change in Aquatic Ecological Environment	LIANG Peng, WANG Yuan-na, YOU Qiong-zhi, <i>et al.</i> (2870)
Using $\delta^{34}\text{S}\text{-SO}_4^{2-}$ and $\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^-$, $\delta^{18}\text{O}\text{-NO}_3^-$ to Trace the Sources of Sulfur and Nitrate in Lihu Lake Underground Water, Guangxi, China	Li Rui, XIAO Qiong, LIU Wen, <i>et al.</i> (2877)
Ecological Effects of Algae Blooms Cluster: The Impact on Chlorophyll and Photosynthesis of the Water Hyacinth	LIU Guo-feng, HE Jun, YANG Yi-zhong, <i>et al.</i> (2887)
Influence of Natural Dissolved Organic Matter on the Passive Sampling Technique and Its Application	YU Shang-yun, ZHOU Yan-mei (2895)
Adhesion Force Analysis of Protein Fouling of PVDF Ultrafiltration Membrane Using Atomic Force Microscope	WANG Xu-dong, ZHOU Miao, MENG Xiao-rong, <i>et al.</i> (2900)
Influence of CNTs on Photodegradation of Salbutamol in Water Environment	WANG Qi, HAN Jia-rui, WEI Bo-fan, <i>et al.</i> (2906)
Preparation of $\beta\text{-In}_2\text{S}_3$ and Catalytic Degradation of Oxytetracycline Under Solar Light Irradiation	AI Cui-ling, ZHOU Dan-dan, ZHANG Rong-rong, <i>et al.</i> (2911)
Nitrogen Release Performance of Sediments in Drainage Pipeline	CHEN Hong, ZHUO Qiong-fang, XU Zhen-cheng, <i>et al.</i> (2918)
Analysis of Precipitation Formation in Biofilm CANON Reactor and Its Effect on Nitrogen Removal	FU Kun-ming, WANG Hui-fang, ZUO Zao-rong, <i>et al.</i> (2926)
Optimization of Energy Saving Measures with ABR-MBR Integrated Process	WU Peng, LU Shuang-jun, XU Yue-zhong, <i>et al.</i> (2934)
Abundance and Community Composition of Ammonia-Oxidizing Archaea in Two Completely Autotrophic Nitrogen Removal over Nitrite Systems	GAO Jing-feng, LI Ting, ZHANG Shu-jun, <i>et al.</i> (2939)
Formation Mechanism of Aerobic Granular Sludge and Removal Efficiencies in Integrated ABR-CSTR Reactor	WU Kai-cheng, WU Peng, XU Yue-zhong, <i>et al.</i> (2947)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Surface Soil of Pearl River Delta Economic Zone	DOU Lei, YANG Guo-yi (2954)
Risk Assessment of Heavy Metal Contamination in Farmland Soil in Du'an Autonomous County of Guangxi Zhuang Autonomous Region, China	WU Yang, YANG Jun, ZHOU Xiao-yong, <i>et al.</i> (2964)
Assessment of Heavy Metal Pollution and Its Health Risk of Surface Dusts from Parks of Kaifeng, China	DUAN Hai-jing, CAI Xiao-qiang, RUAN Xin-ling, <i>et al.</i> (2972)
Responses of Soil and Plant ^{15}N Natural Abundance to Long-term N Addition in an N-Saturated <i>Pinus massoniana</i> Forest in Southwest China	LIU Wen-jing, KANG Rong-hua, ZHANG Ting, <i>et al.</i> (2981)
Latitudinal Changes in Plant Stoichiometric and Soil C, N, P Stoichiometry in Loess Plateau	LI Ting, DENG Qiang, YUAN Zhi-You, <i>et al.</i> (2988)
Open-top Chamber for <i>in situ</i> Research on Response of Mercury Enrichment in Rice to the Rising Gaseous Elemental Mercury in the Atmosphere	CHEN Jian, WANG Zhang-wei, ZHANG Xiao-shan, <i>et al.</i> (2997)
Influence of Uranium in <i>Pteris vittata</i> L. Inoculated by Arbuscular Mycorrhizal Fungus	ZHENG Wen-jun, WANG Ming-yuan (3004)
Impact on the Microbial Biomass and Metabolic Function of Carbon Source by Black Soil During Rice Cultivation	ZHAO Zhi-rui, CUI Bing-jian, HOU Yan-lin, <i>et al.</i> (3011)
Effect of Decomposing Products of Immobilized Carriers on Desorption of Pyrene in Contaminated Soil	TONG Dong-li, SHUANG Sheng-qing, LI Xiao-jun, <i>et al.</i> (3018)
Solidification/Stabilization of Chromite Ore Processing Residue (COPR) Using Zero-Valent Iron and Lime-Activated Ground Granulated Blast Furnace Slag	CHEN Zhong-lin, LI Jin-chunzi, WANG Bin-yuan, <i>et al.</i> (3026)
Stabilization of Cadmium Contaminated Soils by Ferric Ion Modified Attapulgite (Fe/ATP): Characterizations and Stabilization Mechanism	YANG Rong, LI Hong-bo, ZHOU Yong-li, <i>et al.</i> (3032)
Improving Agricultural Safety of Soils Contaminated with Polycyclic Aromatic Hydrocarbons by In Situ Bioremediation	JIAO Hai-hua, PAN Jian-gang, XU Sheng-jun, <i>et al.</i> (3038)
Competence of Cd Phytoremediation in Cd-OCDF Co-contaminated Soil Using <i>Mirabilis jalapa</i> L.	ZHANG Xing-li, ZOU Wei, ZHOU Qi-xing (3045)
Effects of Soil Moisture on Phytoremediation of As-Contaminated Soils Using As-Hyperaccumulator <i>Pteris vittata</i> L.	LIU Qiu-xin, YAN Xiu-lan, LIAO Xiao-yong, <i>et al.</i> (3056)
Effects of Phosphate Rock and Decomposed Rice Straw Application on Lead Immobilization in a Contaminated Soil	TANG Fan, HU Hong-qing, SU Xiao-juan, <i>et al.</i> (3062)
Residue and Degradation of Roxarsone in the System of Soil-Vegetable	SHAO Ting, YAO Chun-xia, SHEN Yuan-yuan, <i>et al.</i> (3068)
Acute Toxicity and Safety Assessment of Three Typical Organic Pollutants to Two Aquatic Organisms	YANG Yang, LI Ya-jie, CUI Yi-bin, <i>et al.</i> (3074)
Effects of Oil Pollutants on the Performance of Marine Benthonic Microbial Fuel Cells and Its Acceleration of Degradation	MENG Yao, FU Yu-bin, LIANG Sheng-kang, <i>et al.</i> (3080)
Microwave In-situ Regeneration of Cu-Mn-Ce/ZSM Catalyst Adsorbed Toluene and Distribution of Bed Temperature	HU Xue-jiao, BO Long-li, LIANG Xin-xin, <i>et al.</i> (3086)
Impact of Thermal Treatment on Biogas Production by Anaerobic Digestion of High-solid-content Swine Manure	HU Yu-ying, WU Jing, WANG Shi-feng, <i>et al.</i> (3094)
Impact of Phosphogypsum Wastes on the Wheat Growth and CO ₂ Emissions and Evaluation of Economic-environmental Benefit	LI Ji, WU Hong-sheng, GAO Zhi-qiu, <i>et al.</i> (3099)
Status Quo, Uncertainties and Trends Analysis of Environmental Risk Assessment for PFASs	HAO Xue-wen, LI Li, WANG Jie, <i>et al.</i> (3106)

《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 刘 毅 汤鸿霄 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)

2015年8月15日 第36卷 第8期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 8 Aug. 15, 2015

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: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行