

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.4

第40卷 第4期

目次

南京江北新区大气单颗粒来源解析及混合状态	于兴娜, 时政, 马佳, 李梅, 龚克坚(1521)
西安市 PM _{2.5} 中碳质气溶胶污染特征	牟臻, 陈庆彩, 王羽琴, 沈振兴, 华晓羽, 张梓萌, 孙浩堯, 王玛敏, 张立欣(1529)
太原市冬季 PM _{2.5} 化学组分特征与来源解析	刘素, 马彤, 杨艳, 高健, 彭林, 曹力媛, 逢妮妮, 张浩杰(1537)
郑州市大气细颗粒物中水溶性离子季节性变化特征及其源解析	闫广轩, 张靖雯, 雷豪杰, 黄海燕, 唐明双, 曹治国, 李云蓓, 樊静, 王跃思, 李怀刚(1545)
珠海市郊区大气 PM _{2.5} 中元素特征及重金属健康风险评价	杨毅红, 贾燕, 卞国建, 于晓巍, 钟昌琴, 全鼎余(1553)
一次沙尘事件对沿海及海洋大气气溶胶中金属粒径分布的影响	金同俊, 祁建华, 郝梓延, 林学辉(1562)
基于 SOA 转化机制的沧州市重点企业秋冬季大气污染模拟	高爽, 伯鑫, 马岩, 雷团团, 王刚, 李时蓓, 陆朝阳, 毛娜, 郝明亮, 黄向峰(1575)
京津冀大气污染变化规律及其与植被指数相关性分析	孙爽, 李令军, 赵文吉, 齐梦溪, 田欣, 李珊珊(1585)
2015~2017年北京及近周边平房燃煤散烧及其污染排放遥感测算	赵文慧, 李令军, 鹿海峰, 姜磊, 张立坤, 王新辉, 邱昀(1594)
基于地基遥感的杭州地区气溶胶光学特性	齐冰, 车慧正, 徐婷婷, 杜荣光, 胡德云, 梁卓然, 马千里, 姚杰(1604)
四川省人为源挥发性有机物组分清单及其臭氧生成潜势	周子航, 邓也, 谭钦文, 吴柯颖, 宋丹林, 黄凤霞, 周小玲(1613)
餐饮源挥发性有机物组成及排放特征	高雅琴, 王红丽, 许睿哲, 景盛翱, 刘跃辉, 彭亚荣(1627)
广州番禺大气成分站一次典型光化学污染过程 PAN 和 O ₃ 分析	邹宇, 邓雪娇, 李菲, 殷长泰(1634)
北京市典型道路扬尘化学组分特征及年际变化	胡月琪, 李萌, 颜旭, 张超(1645)
南昌市扬尘 PM _{2.5} 中多环芳烃的来源解析及健康风险评价	于瑞莲, 郑权, 刘贤荣, 王珊珊, 赵莉斯, 胡恭任(1656)
道路扬尘排放因子建立方法与应用	樊守彬, 杨涛, 王凯, 李雪峰(1664)
现实工况下挖掘机电尾气排放特征分析	马帅, 张凯山, 王帆, 庞凯莉, 朱怡静, 李臻, 毛红梅, 胡宝梅, 杨锦锦, 王斌(1670)
雾-霾天人体平均呼吸高度处不同粒径气溶胶的微生物特性	杨唐, 韩云平, 李琳, 刘俊新(1680)
霾天能见度参数化方案改进及预报效果评估	赵秀娟, 李梓铭, 徐敬(1688)
支持向量机回归在臭氧预报中的应用	苏筱倩, 安俊琳, 张玉欣, 梁静舒, 刘静达, 王鑫(1697)
基于中国电网结构及一线典型城市车辆出行特征的 PHEV 二氧化碳排放分析	郝旭, 王贺武, 李伟峰, 欧阳明高(1705)
岩溶槽谷区地下河硝酸盐来源及其环境效应:以重庆龙凤槽谷地下河系统为例	段世辉, 蒋勇军, 张远瞩, 曾泽, 王正雄, 吴韦, 彭学义, 刘九缠(1715)
胶州湾表层水体中邻苯二甲酸酯的污染特征和生态风险	刘成, 孙翠竹, 张智, 唐燎, 邹亚丹, 徐擎擎, 李锋民(1726)
湛江湾沉积物中六六六(HCHs)、滴滴涕(DDTs)有机氯农药的分布特征与风险评估	彭诗云, 彭平安, 孔德明, 陈法锦, 于赤灵, 李嘉诚, 梁宇钊, 宋建中(1734)
生态净化系统中 DOM 光学特性及影响因素分析:以盐龙湖春季为例	马睿, 李璇, 王莲, 王家新, 马卫星, 丁成, 吴向阳(1742)
溶解性有机物(DOM)与区域土地利用的关系:基于三维荧光-平行因子分析(EEM-PARAFAC)	李昀, 魏鸿杰, 王侃, 张招招, 于旭彪(1751)
汉丰湖流域农业面源污染氮磷排放特征分析	谢经朝, 赵秀兰, 何丙辉, 李章安(1760)
基于 RZWQM 模型模拟太行山低山丘陵区农田土壤硝态氮迁移及淋溶规律	郑文波, 王仕琴, 刘丙霞, 雷玉平, 曹建生(1770)
澜沧江流域梯级水库建设下水体营养盐和叶绿素 a 的空间分布特征	程豹, 望雪, 马金川, 杨正健, 刘德富, 马骏(1779)
福州地区海湾和河口潮汐沼泽湿地秋季上覆水营养盐分布特征	何露露, 杨平, 谭立山, 仝川, 黄佳芳(1788)
尾水受纳河流中 PhACs 在传统水相中的分布及环境风险	王硕, 刘建超, 郑超亚, 张吉琛, 许嘉诚, 徐莹莹, 陆光华(1797)
绿色屋顶雨洪调控能力与效益评价	李俊生, 尹海伟, 孔繁花, 陈佳宇, 邓金玲(1803)
超声活化过硫酸盐降解水中典型臭味	孙昕, 孙杰, 李鹏飞, 汤加刚, 杨晴, 唐晓(1811)
金属有机框架 MIL-53(Fe)可见光催化还原水中 U(VI)	闫增元, 习海玲, 袁立永(1819)
覆盖材料对洱海不同湖区沉积物溶解态有机磷和无机磷释放影响及差异	龚佳健, 倪兆奎, 肖尚斌, 赵海超, 席银, 王圣瑞(1826)
氢氧化铜改性介孔稻壳生物炭除磷性能	许润, 石程好, 唐倩, 石稳民, 康建雄, 任拥政(1834)
改性污泥基生物炭的性质与重金属吸附效果	陈坦, 周泽宇, 孟瑞红, 王洪廷, 陆文静, 金军, 刘颖(1842)
纳米磁性磷酸二氢钙对 Cd 的吸附、回收与再生	李玉娇, 杨志敏, 陈玉成, 黄磊, 唐海燕(1849)
赤铁矿抑制硫酸盐废水厌氧消化产甲烷过程中硫化氢形成与机制	黄绍福, 叶捷, 周顺桂(1857)
微藻膜反应器处理海水养殖废水性能及膜污染特性	马航, 李之鹏, 柳峰, 徐仲, 尤宏, 王芳, 陈其伟(1865)
生活污水预沉淀-SNAD 颗粒污泥工艺小试	李冬, 崔雅倩, 赵世勋, 刘志诚, 张杰(1871)
生活污水与人工配水对好氧颗粒污泥系统的影响	李冬, 王樱桥, 李帅, 张杰, 王玉珊(1878)
硫磺/硫铁矿自养反硝化系统脱氮性能	周娅, 买文宁, 梁家伟, 代吉华, 牛颖, 李伟利, 唐启(1885)
异养硝化细菌 <i>Pseudomonas putida</i> YH 的脱氮特性及降解动力学	汪旭晖, 杨垒, 任勇翔, 陈宁, 肖倩, 崔坤, 鄯丹(1892)
污泥龄及 pH 值对反硝化除磷工艺效能的影响	韦佳敏, 黄慧敏, 程诚, 蒋志云, 刘文如, 沈耀良(1900)
盐度条件下 ANAMMOX-EGSB 反应器颗粒污泥微生物群落	王晗, 李瀚翔, 陈猷鹏, 郭劲松, 晏鹏, 方芳(1906)
内源碳 PHA 的贮存对混合菌耐低温特性的影响	杨建鹏, 张健, 田晴, 朱艳彬, 李方, Wolfgang Sand(1914)
中国市政污泥中磷的含量与形态分布	王超, 刘清伟, 耿音, 程柳, 王宁, 李彩丹, 毛宇翔(1922)
广州市售水产品中全氟烷基化合物的污染特征和安全风险评价	王旭峰, 王强, 黎智广, 黄珂, 李刘冬, 赵东豪(1931)
长江上游典型农业源溪流溶存氧化亚氮(N ₂ O)浓度特征及影响因素	田琳琳, 王正, 胡磊, 任光前, 朱波(1939)
内蒙古河套灌区不同盐碱程度土壤 CH ₄ 吸收规律	杨文柱, 焦燕, 杨铭德, 温慧洋(1950)
水稻光合碳在植株-土壤系统中分配与稳定对施磷的响应	王莹莹, 肖谋良, 张昀, 袁红朝, 祝贞科, 葛体达, 吴金水, 张广才, 高晓丹(1957)
土壤水分和温度对西南喀斯特棕色石灰土无机碳释放的影响	徐学池, 黄媛, 何寻阳, 王桂红, 苏以荣(1965)
黄土丘陵区侵蚀坡面土壤微生物量碳时空动态及影响因素	覃乾, 朱世硕, 夏彬, 赵允格, 许明祥(1973)
农用地土壤抗生素组成特征与积累规律	孔晨晨, 张世文, 聂超甲, 胡青青(1981)
生物发酵制药 VOCs 与臭味治理技术研究与进展	王东升, 朱新梦, 杨晓芳, 焦茹媛, 赵珊, 宋荣娜, 吕明哈, 杨敏(1990)
《环境科学》征订启事(1612) 《环境科学》征稿简则(1787) 信息(1663, 1796, 1833)	

一次沙尘事件对沿海及海洋大气气溶胶中金属粒径分布的影响

金同俊¹, 祁建华^{1*}, 郗梓延¹, 林学辉²

(1. 中国海洋大学环境科学与工程学院, 海洋环境与生态教育部重点实验室, 青岛 266100; 2. 青岛海洋地质研究所, 青岛 266100)

摘要: 于2016年3~4月在青岛、东海及西北太平洋连续采集了气溶胶分级样品, 测定了样品中Al、Na、Fe、Mg、K、Cu、Pb、Cd等金属元素的浓度, 分析了沙尘事件下气溶胶中金属元素的粒径分布特征, 并初步讨论了气溶胶中金属来源及影响因素。结果表明, 受此次沙尘事件影响青岛近岸样品中Al、Fe、K、Na、Cu、Pb的浓度增加了85%~1400%, 而金属Cd浓度降低8%; 海洋样品中Al、Fe、K、Cu、Pb、Cd浓度增加了163%~4580%, 而Na浓度降低62%。沙尘对气溶胶中金属元素的粒径分布影响显著, 青岛近岸和海洋气溶胶中K由双模态分布变为粗模态分布; Pb、Cd由细模态分布变为双模态分布; Cu仍呈双模态分布, 但粗颗粒上的占比增加; Al、Fe、Mg、Na则保持粗模态分布。沙尘事件对近岸与海洋样品的影响不同, 青岛近岸沙尘气溶胶中Al、Fe、Mg、Na、K的峰值粒径位于2.1~3.3 μm , 而海洋样品的峰值向粗粒径移动至3.3~4.7 μm ; 沙尘影响下近岸气溶胶中Al、Fe、Mg、Na、K、Pb、Cd在粗颗粒上的占比下降了1%~35%, 而东海样品中这些金属的粗粒子占比上升了4%~33%, 可能与吸湿增长以及沙尘的传输路径和高度有关。

关键词: 沙尘; 青岛近岸; 海洋; 气溶胶; 金属元素; 粒径分布

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)04-1562-13 DOI: 10.13227/j.hjxx.201809012

Impact of a Dust Event on the Size Distribution of Metal Elements in Atmospheric Aerosols at a Coastal Region and over the Ocean

JIN Tong-jun¹, QI Jian-hua^{1*}, XI Zi-yan¹, LIN Xue-hui²

(1. Key Laboratory of Marine Environment and Ecology, Ministry of Education, College of Environmental Science and Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, China; 2. Qingdao Institute of Marine Geology, Qingdao 266100, China)

Abstract: Size-segregated aerosol samples were collected in the Qingdao coastal region and over the East Sea and the Pacific Northwest from March to April in 2016, and the concentration of metal elements (Al, Na, Fe, Mg, K, Cu, Pb, and Cd) were analyzed. The characteristics and the variation in the size distribution of the metal elements in the samples during dusty weather were discussed, as well as the sources and factors that influence the metals. The results indicated that the concentration of Al, Fe, K, Na, Cu, and Pb in the aerosols in the Qingdao coastal samples increased significantly by 85%-1400%, while the concentration of Cd decreased by 8%; the concentrations of Al, Fe, K, Cu, Pb, and Cd in the samples over the ocean increased by 163%-4580%, while the concentration of Na decreased by 62% during dusty weather. In addition, the size distribution of K changed from a double-peak to a coarse peak mode; that of Pb and Cd changed from a fine peak mode to a double-peak distribution. Cu still presented a double-peak distribution in which the proportion of coarse particles increased; Al, Fe, Mg, and Na showed little variation in their size distribution with a single peak in coarse mode. The dust event had different effects on the size distributions of the metal elements in the coastal and marine aerosol samples. The size distribution of the metal elements (Al, Fe, Mg, Na, and K) in the aerosols collected at the Qingdao coastal site had one peak of 2.1-3.3 μm during dusty weather; the peak moved to 3.3-4.7 μm for marine samples. In addition, the proportion of Al, Fe, Mg, Na, K, Pb, and Cd in the coarse mode decreased by 1%-35% for dust aerosol samples collected in Qingdao coastal region, whereas the proportion of these metals in coarse mode increased by 4%-33% for samples collected over the East Sea. This difference may be related to the hygroscopic growth, transport path, and height of the dust.

Key words: dust; Qingdao coastal region; ocean; aerosols; metal elements; size distribution

大气气溶胶是指均匀分散在大气中空气动力学直径为0.003~100 μm 的固体或液体微粒, 是大气的重要组成部分^[1]。大气气溶胶组分复杂^[2], 来源广泛, 是环境中危害最大的污染物之一。因其对太阳辐射、能见度、云雾形成、粒子增长、气粒转化过程和人体健康^[3,4]的重要影响而获得广泛关注。金属元素是大气气溶胶中重要的痕量化学组成成分, 其浓度和粒径分布特征有助于揭示大气气溶胶

来源及区域污染特征。

已有研究发现, 不同金属元素的粒径分布特征不同, 并且存在明显的时空变化。李杏茹等^[5]在对

收稿日期: 2018-09-03; 修订日期: 2018-10-25

基金项目: 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2014CB953701); 国家自然科学基金项目(41775148)

作者简介: 金同俊(1992~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为大气环境化学, E-mail: 1459143275@qq.com

* 通信作者, E-mail: qjianhua@ouc.edu.cn

兴隆大气气溶胶中金属元素粒径分布的研究中发现,所检测的 25 种金属元素几乎均呈双模态分布,在 $4.7 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 和 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 粒径段分别出现主峰值和次峰,金属主要存在于粗粒径段.徐宏辉等^[6]对北京地区的气溶胶进行研究,结果表明 Fe、Mg 主要分布在粗粒子中,在 $3.3 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 的粒径范围内出现峰值;Cu 在 $0.65 \sim 1.1 \mu\text{m}$ 和 $3.3 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 的粒径范围出现峰值;K、Pb、Cd 主要分布在细粒子中,峰值位于 $0.65 \sim 1.1 \mu\text{m}$ 的粒径范围.Lin 等^[7]对台湾南部的大气气溶胶进行了采样分析,结果表明,Cr 和 Ni 呈 3 峰以上的多峰分布,K 呈三峰分布,其他金属元素呈双峰分布.Allen 等^[8]在英国卡斯尔莫顿地区发现 Fe 主要呈现粗模态分布,在 $3 \sim 4 \mu\text{m}$ 处出现峰值;Cu 呈现多模态分布,细粒径上的峰值出现在 $0.4 \sim 0.5 \mu\text{m}$ 粒径段,粗粒径上的峰值出现在 $3 \sim 5 \mu\text{m}$ 粒径段;Pb、Cd 主要呈现细模态分布,在 $0.5 \mu\text{m}$ 处出现峰值.综上所述,地壳元素主要在 $3.3 \sim 5.8 \mu\text{m}$ 的粗粒径段上出现峰值,而人为元素则主要在 $0.4 \sim 1.1 \mu\text{m}$ 的细粒径段上出现峰值.

气溶胶中金属元素的浓度和粒径除受到季节和研究区域的影响外,还会受到沙尘天气的影响^[9].沙尘是大气气溶胶中金属的主要来源之一,对区域及全球生态环境及气候变化影响巨大.据估计全球每年进入大气的沙尘气溶胶达 $10 \sim 20$ 亿 t ^[10],约占对流层气溶胶总量的一半^[11].沙尘对大气中酸性气体的吸收以及在沙粒表面发生的化学反应^[12],能够改变气溶胶的金属元素组成^[13],进而影响这些金属的粒径分布^[14],同时沙尘在传输过程中的沉降、气溶胶碰并^[15]和吸湿增长^[16]等过程也会影响到气溶胶中金属的粒径分布特征.成天涛等^[17]对浑善达克沙地沙尘气溶胶的研究结果表明,金属元素质量浓度随着沙尘浓度增大而增大,但其在各级粒径中分布比例的变化与浓度并不相同.Mori 等^[18]通过一次典型沙尘事件的研究,发现距离源区较近的北京地区沙尘气溶胶中地壳元素浓度比下风向日本山口地区的浓度高一个数量级,并且北京沙尘气溶胶中金属元素的峰值粒径大于日本地区样品.然而,有关沙尘天气下气溶胶金属元素粒径分布特征的研究仍很有限,特别是针对沙尘传输路径上的海洋气溶胶的粒径谱分布,尚不明确沙尘对海洋气溶胶中金属元素粒径分布的影响效应和机理.

在我国,每年春季频繁暴发的沙尘天气可将沙尘气溶胶自源地输送至我国东部海域乃至遥远的太平洋地区^[19],对海洋环境产生很大影响,但沙尘事件对海陆气溶胶中金属元素粒径分布影响的对比研

究非常缺乏,因此本研究于 2016 年 3~4 月在青岛、中国近海及西北太平洋连续采集了大气气溶胶分级样品,测定了 Al、Na、Fe、Mg、K、Cu、Pb、Cd 等金属元素的质量浓度,分析了沙尘事件下气溶胶中金属元素的粒径分布特征,并初步讨论了气溶胶中金属来源及影响因素.

1 材料与方法

1.1 样品采集

2016 年 3~4 月利用“东方红 2 号”科学调查船对中国近海及西北太平洋(西太)大气气溶胶进行了观测,使用 AN-200 型 Anderson 采样器(日本柴田科学株式会社)采集大气气溶胶分级样品.Anderson 采样器安装于船头驾驶甲板前沿,距海平面约 15 m,走航式采样,以避免船体自身排放的污染.同期,使用 Anderson 采样器在青岛中国海洋大学八关山气象站(36.01°N , 120.36°E ,海拔约 65 m)进行同步采样,采样信息详见表 1.Anderson 采样器分为 9 级,相应粒径分别为: $0 \sim 0.43$ 、 $0.43 \sim 0.65$ 、 $0.65 \sim 1.1$ 、 $1.1 \sim 2.1$ 、 $2.1 \sim 3.3$ 、 $3.3 \sim 4.7$ 、 $4.7 \sim 7$ 、 $7 \sim 11$ 和 $>11 \mu\text{m}$.采样膜均为 Whatman 41 纤维滤膜,采样流量 $28.3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$,每个样品采集大约 48 h.采样结束后取下滤膜,用洁净塑料袋包好后冷冻保存.整个操作过程中应使用塑料镊子和一次性塑料手套以防沾污样品.

由于 Anderson 采样器分级限制,本文把空气动力学直径 $2.1 \mu\text{m}$ 作为粗、细颗粒的分界,以动力学直径小于 $2.1 \mu\text{m}$ 的粒子定义为细颗粒,大于 $2.1 \mu\text{m}$ 的粒子定义为粗颗粒.

1.2 样品处理与分析

截取一定面积的样品滤膜放入聚四氟乙烯坩埚中,加入 5 mL 硝酸置于加热板中于 120°C 加热消解 15 min 后,再加入 2 mL 高氯酸,温度调至 180°C 继续加热消解 1 h 后,打开坩埚盖赶酸^[20].冷却至室温后用 2% 硝酸溶液溶解并定容.同时按上述步骤同步处理空白滤膜.

经过消解定容的样品溶液,利用 ICP-AES 法测定样品中的 Al、Na、Fe、Mg 和 K,其检出限依次为:7.9、3.0、2.6、0.6 和 $1.5 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$.利用 ICP-MS 法测定其中的 Cu、Pb 和 Cd,其检出限依次为:0.2、0.008 和 $0.03 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$.Al、Na、Fe、Mg、K、Cu、Pb 和 Cd 的加标回收率分别为:103%、99%、104%、105%、99%、105%、104% 和 105%.

1.3 气象参数来源

样品采集时的风速、气温、相对湿度等相关气象参数见表 1,其中编号“青岛 160423”和“海洋

表 1 大气气溶胶样品采样信息
Table 1 Sampling information for the atmospheric aerosol samples

样品编号	采样时间	采样时长 /min	采样区域经纬度	风速 /m·s ⁻¹	气温 /℃	相对湿度 /%
青岛 160308	2016-03-08 ~ 2016-03-09	1 400	36.01°N 120.36°E	5.0	3	39
青岛 160314	2016-03-14 ~ 2016-03-15	1 575	36.01°N 120.36°E	3.1	5	55
青岛 160325	2016-03-25 ~ 2016-03-26	1 468	36.01°N 120.36°E	2.3	6	25
青岛 160404	2016-04-04 ~ 2016-04-05	1 599	36.01°N 120.36°E	2.7	11	44
青岛 160414	2016-04-14 ~ 2016-04-15	1 504	36.01°N 120.36°E	3.8	18	58
青岛 160423	2016-04-23 ~ 2016-04-24	1 405	36.01°N 120.36°E	2.7	17	26
海洋 160321	2016-03-21 ~ 2016-03-25	4 320	31.0°N ~ 34.0°N 120.6°E ~ 137.2°E(东海)	8.5	13	79
海洋 160325	2016-03-25 ~ 2016-03-27	1 125	31.6°N ~ 32.2°N 137.4°E ~ 144.6°E(西太)	10.4	16	73
海洋 160401	2016-04-01 ~ 2016-04-07	4 235	32.0°N ~ 38.5°N 146.4°E ~ 149.7°E(西太)	11.0	11	72
海洋 160408	2016-04-08 ~ 2016-04-17	4 500	33.4°N ~ 39.2°N 146.6°E ~ 150.2°E(西太)	13.5	14	77
海洋 160417	2016-04-17 ~ 2016-04-20	1 760	32.0°N ~ 33.4°N 141.5°E ~ 146.5°E(西太)	10.3	18	78
海洋 160420	2016-04-20 ~ 2016-04-24	4 260	31.0°N ~ 32.5°N 126.4°E ~ 141.0°E(西太)	7.1	18	74
海洋 160424	2016-04-24 ~ 2016-04-25	2 310	32.6°N ~ 36.0°N 120.5°E ~ 126.3°E(东海)	2.6	15	70

160424”两个气溶胶样品受到沙尘事件的影响. 采用 Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory 模型对沙尘发生期间青岛近岸及东海的气团 72 h 后向轨迹(图 1)分析可以得出:此次沙尘事件于 4 月 22 日左右取道蒙古上空,气团途经河北、渤海、黄海等区域,4 月 23 日影响到青岛,4 月 24 日继续影响到中国东海海域. 4 月 22 日靠近源区内蒙古二连浩特市最低能见度仅 400 m^[21].

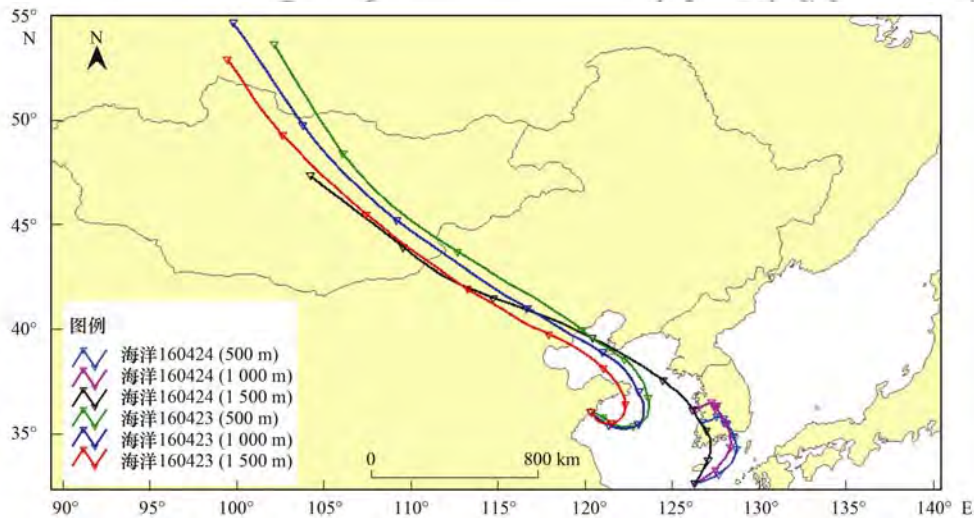


图 1 2016 年 4 月 23 日青岛(36.01°N, 120.36°E)和 2016 年 4 月 24 日东海采样点(32.60°N, 126.30°E)48h 气团后向轨迹

Fig. 1 The 48-hour air mass backward trajectory for Qingdao(36.01° N, 120.36° E) on April 23, 2016 and the East China Sea site (32.60° N, 126.30° E) on April 24, 2016

1.4 计算模型

富集因子法常用于研究气溶胶中元素富集程度,评价元素来源.考虑到沿海和海洋气溶胶中的金属元素主要来自地壳源、海洋源及人为源.本研究选用 Al 作为地壳源参考元素,Na 作为海洋源参考元素.富集因子 EF 的计算公式如下:

$$EF_{\text{地壳}} = (X_i/Al)_{\text{气溶胶}} / (X_i/Al)_{\text{地壳}}$$
$$EF_{\text{海洋}} = (X_i/Na)_{\text{气溶胶}} / (X_i/Na)_{\text{海洋}}$$

式中, $(X_i/Al)_{\text{气溶胶}}$ 和 $(X_i/Na)_{\text{气溶胶}}$ 分别代表被研究元素 i 浓度与气溶胶中 Al 或 Na 浓度的比值, $(X_i/Al)_{\text{地壳}}$ 和 $(X_i/Na)_{\text{海洋}}$ 分别代表地壳中 (X_i/Al) 的比值和海洋中 (X_i/Na) 的比值.一般将 $EF_{\text{地壳}}$ 和 $EF_{\text{海洋}}$

<10 的金属元素作为正常而非富集金属元素,并考虑其与参考元素是同一来源.

2 结果与讨论

2.1 青岛近岸和海洋气溶胶中金属元素的浓度分布

2.1.1 非沙尘气溶胶中金属元素的浓度分布

青岛近岸非沙尘气溶胶中所测定的 Al、Fe、Mg、Na、和 K 的质量浓度范围分别为 0.666 0 ~ 2.679 0、0.766 0 ~ 2.026 6、0.243 1 ~ 0.532 2、0.009 6 ~ 0.899 4、0.074 4 ~ 1.085 9 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; Cu、Pb 和 Cd 的质量浓度范围分别为 6.7 ~ 18.6、12.1 ~ 34.6 和 0.5 ~ 1.3 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$,金属元素平均质量浓度大

小顺序为 Al > Fe > K > Mg > Na > Pb > Cu > Cd, 其中 Al、Fe、K 占所测金属元素总浓度的 82% (表 2), 是气溶胶中的主要金属元素, 这与陈晓静等在青岛的研究结果近似^[20], 但这些元素浓度均低于北京等内陆城市大气气溶胶样品^[6]. 海洋非沙尘气溶胶中所测定的 Al、Na、Fe、Mg、Cu、K、Pb 和 Cd 的质量浓度低于相应青岛近岸样品, 金属元素的平均质量浓度高低顺序呈现 Na > Mg > Al > K > Fe > Pb > Cu > Cd, 与青岛相差较大. 其中海洋源元素 Na 和 Mg 占

所测金属元素的总浓度接近 86%, 是海洋气溶胶样品中的主要组成成分. 编号“海洋 160321”和“海洋 160420”的两个样品采样点临近亚洲大陆, 所采集海洋气溶胶样品的金属元素浓度显著高于其他开阔海域气溶胶中的浓度(图 2), 这是因为样品会受到来自中国、韩国和日本工业排放气溶胶及粉尘的影响. 可见除 Na、Mg 之外, 青岛近岸大气气溶胶中其他金属元素的浓度均显著高于海洋样品, 且主要的金属元素组成存在明显的空间差异.

表 2 2016 年 3~4 月青岛近岸和海洋气溶胶中金属元素的质量浓度¹⁾

Table 2 Concentration of the metal elements in the atmospheric aerosols collected at the Qingdao coastal site and over the ocean from March to April 2016						
天气	区域	元素	最大值	最小值	平均值	占所测金属浓度总和的比例/%
非沙尘	青岛近岸	Al	2.679 0	0.666 0	1.422 0	36.12
		Fe	2.026 6	0.766 0	1.384 2	35.16
		Mg	0.532 2	0.243 1	0.375 5	9.54
		Na	0.899 4	0.009 6	0.279 8	7.11
		K	1.085 9	0.074 4	0.443 1	11.26
		Cu	18.6	6.7	10.0	0.25
		Pb	34.6	12.1	21.2	0.54
		Cd	1.3	0.5	0.8	0.02
	海洋	Al	0.396 1	0.153 0	0.271 9	5.03
		Fe	0.353 4	0.076 5	0.210 1	3.89
		Mg	0.860 1	0.284 7	0.503 9	9.32
		Na	6.744 5	2.684 7	4.145 7	76.67
		K	0.386 1	0.097 8	0.267 2	4.94
		Cu	4.0	1.0	2.8	0.05
		Pb	13.1	1.9	5.4	0.10
		Cd	0.6	0.1	0.2	0.00
沙尘	青岛近岸	Al	21.442 1	21.442 1	21.442 1	44.75
		Fe	11.995 2	11.995 2	11.995 2	25.04
		Mg	4.212 4	4.212 4	4.212 4	8.79
		Na	3.557 3	3.557 3	3.557 3	7.42
		K	6.606 7	6.606 7	6.606 7	13.79
		Cu	18.5	18.5	18.5	0.04
		Pb	79.5	79.5	79.5	0.17
		Cd	0.8	0.8	0.8	0.00
	海洋	Al	12.732 3	12.732 3	12.732 3	44.77
		Fe	7.590 5	7.590 5	7.590 5	26.69
		Mg	2.522 9	2.522 9	2.522 9	8.87
		Na	1.579 9	1.579 9	1.579 9	5.56
		K	3.984 6	3.984 6	3.984 6	14.01
		Cu	8.5	8.5	8.5	0.03
		Pb	19.2	19.2	19.2	0.07
		Cd	0.6	0.6	0.6	0.00

1) Al、Fe、Mg、Na 和 K 的浓度单位为 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; Cu、Pb 和 Cd 的浓度单位为 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$

为了进一步分析气溶胶中金属元素的组成特征, 本文计算了青岛近岸气溶胶样品与海洋样品中金属元素的平均浓度比值($c_{\text{青岛}}/c_{\text{海洋}}$), 如果比值大于 1, 表明青岛气溶胶样品中该元素的浓度大于海洋样品, 主要来自人为污染或地壳等陆地源. 从图 3 中可以看出, 非沙尘天气下青岛近岸气溶胶中 Al、Fe、K、Cu、Pb 和 Cd 的质量浓度均高于海洋样品, 除 K

外, 这些金属甚至高出 2 倍以上, 多来源于地壳源和人为源(采矿业、燃煤及机动车燃油)^[22], 而海洋上空人为污染源的影响较小, 同时随大气气溶胶颗粒物从陆地向海洋输送, 大气沉降亦会使海洋气溶胶中这些金属含量降低; 但非沙尘天气下青岛近岸样品中 Na 和 Mg 的浓度低于海洋样品, 这是因为海水中的海盐会随着海盐气溶胶的形成进入到大气的

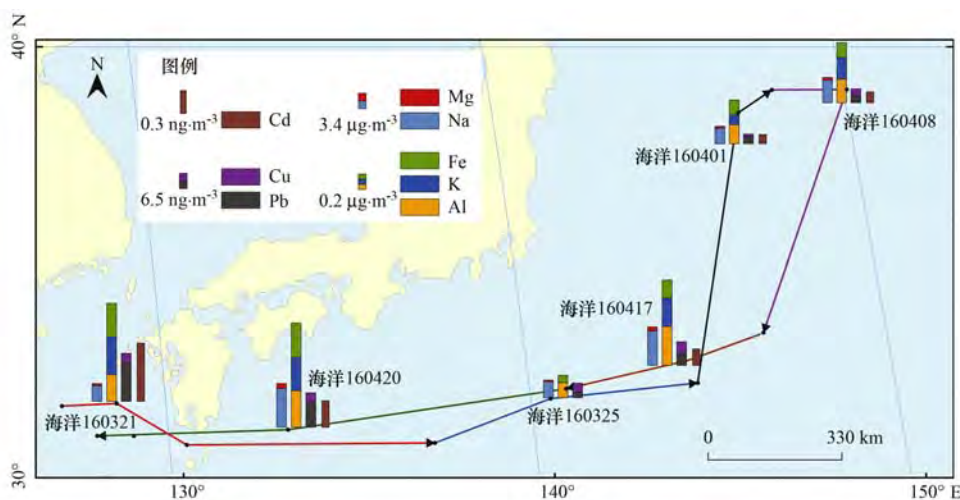


图2 海洋非沙尘气溶胶中金属元素的质量浓度

Fig. 2 Concentration of the metal elements in the marine aerosols during non-dust events

胶中从而增加了这些元素的浓度^[23]. 海洋气溶胶中 Na 对 Mg 的线性回归系数为 0.12 ($r^2 = 0.95$), 与海水中 Mg/Na 的比值^[24]相同, 验证了 Mg 和 Na 主要来自海洋源. 有研究指出海洋气溶胶中 Na 主要来自海水, 陆源分量小到可以忽略不计^[25], Mg 可能还有其他的额外输入源, 如陆源^[26].

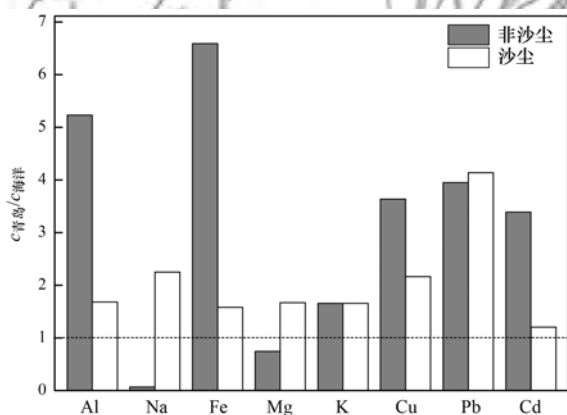


图3 2016年3~4月青岛近岸和海洋气溶胶样品中金属元素质量浓度比值

Fig. 3 Concentration of the ratios of the metal elements in the aerosol samples collected at the Qingdao coastal region site and over the sea from March to April 2016

2.1.2 沙尘事件下气溶胶中金属元素的浓度分布

受到沙尘事件影响的青岛近岸气溶胶样品中矿物元素 Al、Fe、Mg、Na 和 K 的质量浓度分别为 21.442 1、11.995 2、4.212 4、3.557 3 和 6.606 7 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 相比非沙尘天气显著增加, 增幅均在 7 倍以上(表2). 沙尘气团可以携带大量矿物气溶胶作长距离输运, 从而造成下风向地区地壳元素浓度升高^[27,28]. 而人为源金属元素 Cu 和 Pb 的质量浓度分别为 18.5 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 79.5 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 相较非沙尘样品分别增加 85% 和 276%, 沙尘暴在传输过程中局地污染物的汇入以及与沙尘粒子的相互作用, 造成

污染元素的浓度增加^[29], 但增加比例显著低于地壳元素, 可见沙尘事件对地壳元素质量浓度的影响远大于人为元素. Cd 的质量浓度为 0.8 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 较非沙尘期间降低 8%, Cd 等易挥发元素的一个主要来源是燃料燃烧^[30], 由于沙尘暴发时靠近源区区域风速较大, 人为活动排放的污染物被迅速扩散从而使易挥发元素的浓度降低^[31], 沙尘粒子携带的 Cd 有所降低. 以上结果表明沙尘事件对青岛气溶胶中金属元素浓度均有较大影响.

受到沙尘影响的海洋气溶胶中矿物元素 Al、Fe、K 的质量浓度同样显著增加, 其值分别为 12.732 3、7.590 5 和 3.984 6 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 较非沙尘期间增加 13 倍以上. 据报道, 每年春季起源于中国西北部的沙尘暴将大量的沙尘抛入高空, 形成矿物气溶胶, 在西北风的作用下向太平洋远距离传输^[32], 从而使海洋上空气溶胶样品中地壳元素的浓度增加. 海洋源元素 Na 的质量浓度为 1.579 9 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 沙尘天气下由于沙尘粒子的汇入以及海盐气溶胶在大风下的扩散反而较非沙尘期间降低 61% (表2). 沙尘同样减弱了海洋源对金属元素 Mg 的影响, 沙尘期间 Mg 主要以地壳源为主, 其质量浓度较非沙尘期间增加 4 倍以上. 人为源金属元素 Cu、Pb 和 Cd 的质量浓度分别为 8.5、19.2 和 0.6 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 较非沙尘期间分别增长 211%、257% 和 163%. 以上结果说明沙尘的长距离输运对海洋气溶胶中地壳金属元素和人为金属元素浓度增加均有贡献, 但由于沙尘粒子的大量输入及扩散作用会使典型海洋源金属 Na 浓度降低.

此次沙尘起源于内蒙, 途经河北、山东青岛等地再影响到中国近海区域, 可以发现青岛近岸沙尘气溶胶中金属元素 Al、Na、Fe、Mg、K、Cu、Pb 和 Cd 的质量浓度均高于海洋沙尘气溶胶样品(图3),

这是沙尘气溶胶长距离传输到海洋的过程中粗粒子不断沉降致使金属元素的浓度下降所致^[27]。

2.2 青岛近岸和海洋气溶胶中金属元素的粒径分布

2.2.1 非沙尘气溶胶中金属元素的粒径分布

(1) 青岛近岸样品

根据青岛近岸采集气溶胶样品中金属元素的粒

径分布特征, 可将金属元素分为 3 类。

Al、Fe、Mg、Na 主要呈粗模态分布, 峰值主要出现在 $3.3 \sim 4.7 \mu\text{m}$ (图 4)。Al、Fe、Mg 的粒径分布规律较为一致, 这与姚青等^[33]在天津地区的研究结果相似, 这些金属大多来源于土壤、城市建设的地面扬尘。“青岛 160325”样品 Al 各粒径段上的

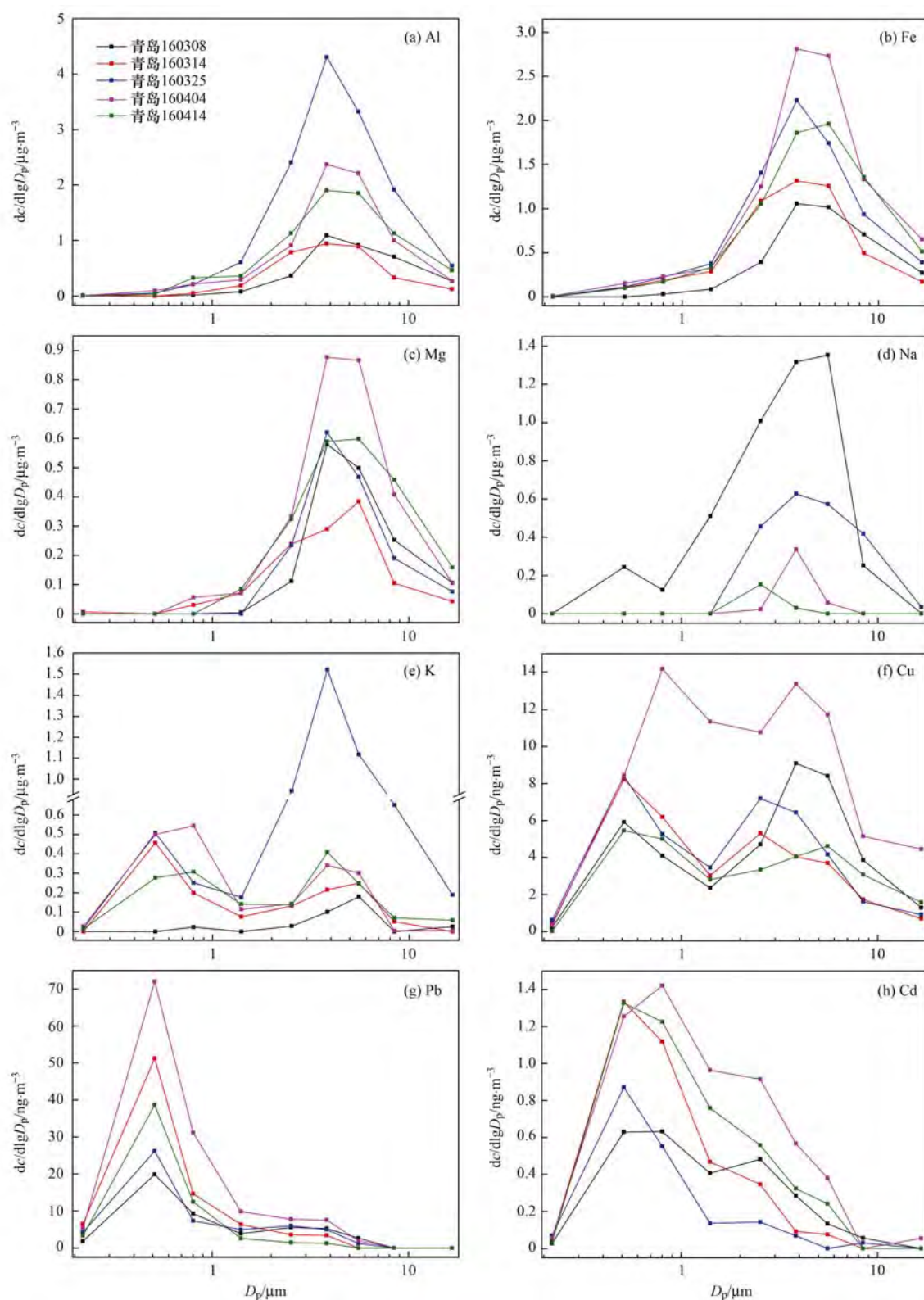


图4 非沙尘天气下青岛近岸气溶胶中金属元素粒径分布

Fig. 4 Size distributions of the metal elements in the Qingdao coastal aerosols samples during non-dust weather

浓度显著高于其他样品,而 Fe、Mg 并没有表现出如此现象,从图 5 后向轨迹可以看出,“青岛 160325”样品气团来自中国东北,而其他样品则来自中国西北区域,可能与不同气团来源携带的 Al 含量差异有关.大部分样品中 Na 以粗模态分布,但“青岛 160308”样品呈现双模态分布,这与 Wang

等^[34]对北京的气溶胶的研究结果一致.细粒子中 Na 的富集因子 $EF_{地壳}$ 大于 10(表 3),表明细粒子中 Na 主要来自于化石燃料燃烧等人为源;而粗粒子中 Na 的富集因子 $EF_{地壳}$ 小于 10,表明来自于土壤扬尘等自然源,青岛濒临黄海,海洋气溶胶也是粗粒子 Na 的重要来源之一.

表 3 2016 年 3~4 月青岛近岸和海洋气溶胶中金属元素的富集因子¹⁾

Table 3 Enrichment factors of the metal elements in the aerosols collected at the Qingdao coastal region site and over the sea from March to April 2016											
项目		粒径/ μm									
		<0.43	0.43~0.65	0.65~1.1	1.1~2.1	2.1~3.3	3.3~4.7	4.7~7.0	7.0~11.0	>11.0	
非沙尘天气	青岛近岸	EF _{地壳} Fe (平均)	1.1	3.8	1.5	1.3	1.3	1.3	1.4	1.4	1.7
		Mg(平均)	0.6	—	0.2	0.4	0.5	0.7	0.7	0.7	0.7
		Na(青岛 160308)	—	—	27	23	9	4	5	1	—
		Na (平均)	0.7	4.7	0.5	1.1	1.0	0.7	0.7	0.4	0.1
		K(平均)	8.0	38.1	6.3	1.3	1.0	0.9	0.9	0.6	0.6
		Cu(平均)	83	278	57	20	7.5	4.7	4.8	4.1	7.2
		Pb(平均)	4 532	6 796	529	104	25	12	3.6	—	—
		Cd(平均)	4 784	16 505	3 262	965	234	68	49	9.2	18
	海洋	EF _{地壳} Fe (平均)	0.2	0.9	0.7	1.0	1.2	1.2	1.4	1.1	1.0
		Mg(平均)	7.6	0.8	1.2	3.0	3.7	4.7	6.8	5.3	3.3
		Na(平均)	111	46	20	35	40	52	67	65	43
		K(平均)	5.4	25	7.2	3.4	2.6	2.9	3.9	2.3	1.5
		Cu(平均)	16	102	32	13	7.3	10.0	8.1	8.1	15
		Pb(平均)	103	1 201	545	173	48	25	30	27	32
		Cd(平均)	895	4 722	1 935	759	279	148	62	26	40
		EF _{海洋} Mg(平均)	0.8	0.2	0.7	1.0	1.1	1.1	1.1	1.0	0.9
K(平均)	1.2	12.8	8.6	2.3	1.5	1.3	1.2	0.9	0.8		
沙尘天气	青岛近岸	EF _{地壳} Fe (青岛 160423)	0.8	0.8	0.7	0.8	0.8	0.8	0.8	1.0	—
		Mg(青岛 160423)	—	0.3	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.4	—
		Na(青岛 160423)	2.5	2.5	0.6	0.4	0.5	0.5	0.6	1.1	—
		K(青岛 160423)	5.6	1.7	1.2	1.2	1.2	1.2	1.1	1.1	—
		Cu(青岛 160423)	21	2.7	0.9	0.4	0.9	1.7	2.6	2.0	—
		Pb(青岛 160423)	2 324	572	26	3.7	2.5	2.1	—	—	—
		Cd(青岛 160423)	530	245	70	10	4.4	6.3	13	8.3	—
	海洋	EF _{地壳} Fe(海洋 160424)	0.9	0.8	1.1	0.9	0.8	0.8	0.9	0.9	0.9
		Mg(海洋 160424)	—	—	0.3	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.4
		Na(海洋 160424)	1.5	—	0.1	0.3	0.4	0.4	0.5	0.3	0.3
		K(海洋 160424)	0.9	2.5	1.3	1.2	1.2	1.2	1.2	1.1	1.0
		Cu(海洋 160424)	4.3	15	6.1	1.0	0.7	0.7	0.7	1.0	0.8
		Pb(海洋 160424)	67	350	165	15	4.4	3.2	3.2	3.6	4.7
		Cd(海洋 160424)	314	942	414	56	17	7.4	3.2	28	—
		EF _{海洋} Mg(海洋 160424)	—	—	27	22	13	13	11	20	19
		K(海洋 160424)	14	—	219	107	65	68	55	90	89

1) “—”表示对应元素含量低于检测限

K、Cu 呈明显的双模态分布,主要在 0.43~0.65 μm 和 3.3~4.7 μm 粒径段上出现峰值(图 4),这与 Horvath 等^[35]在奥地利维也纳地区的研究结果较为一致.同时 K、Cu 在细粒径峰值段上的 $EF_{地壳}$ 大于 10,而在粗粒子段小于 10,这说明细粒子中的 K、Cu 有人为源而出现富集,但粗粒子中的 K、Cu 主要来自自然源.已有研究^[33]同样发现细粒子中的 K 元素更多来源于人类活动(包括工业源、交通源、生物质燃烧等),而粗粒子上的 K 则主要

来源于地壳源^[35];细粒子上 Cu 主要来自金属加工和机械制造等人为源,而粗粒子上的 Cu 则来源广泛,其中包括地壳风化等自然源及冶金化工、燃煤等人为来源^[36].“青岛 160325”样品中 K 的浓度显著高于其他样品,这是因为火点图(<https://firms.modaps.eosdis.nasa.gov/map/>)显示收集该样品期间火点较其他样品密集从而受生物质燃烧源影响更大.

Pb、Cd 主要呈现细模态分布,峰值出现在

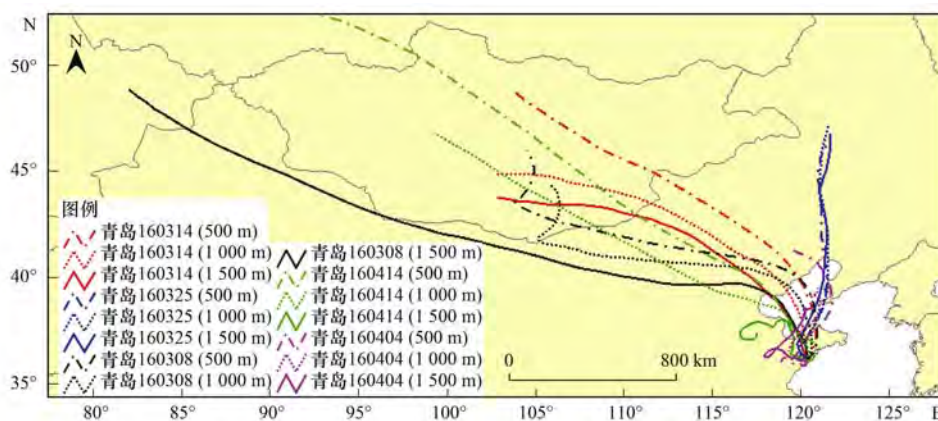


图5 非沙尘期天气青岛(36.01°N, 120.36°E)48 h 气团后向轨迹

Fig. 5 The 48-hour air mass backward trajectory for Qingdao (36.01°N, 120.36°E) during non-dust weather

0.43 ~ 0.65 μm 细粒径段(图4), 这与 Allen 等^[8]在英国的研究结果近似, 模态分布与其人为来源有关. Pb 是典型的人为污染元素, 随着国家全面实施无铅化汽油, 汽车尾气不再是 Pb 的主要来源, 矿物燃烧、水泥及冶金工业是其主要来源^[37]. 大气颗粒中的 Cd 在矿物尘土中的含量较低, 更多来自人类活动排放^[36], 如合金制造、有色金属冶炼、电镀加工、矿山开采、塑料制品焚烧及汽车润滑油等.

(2) 海洋样品

同样依据粒径分布特征, 将航次收集的气溶胶样品中 8 种金属元素分为 3 类.

Al、Fe、Mg、Na 主要呈粗模态分布, 峰值主要出现在 3.3 ~ 4.7 μm 粒径段(图6), 这和青岛近岸观测结果相似, 说明海洋气溶胶中的金属受到陆地传输的影响很大. Al 的粒径分布规律和 Fe 的相似, 海洋气溶胶中 Fe 有着和 Al 相同的来源, 多来自地壳源. Mg 和 Na 表现出一致的粒径分布规律, 而海洋气溶胶中 Na 主要以海洋源为主^[38], 说明海洋源是 Mg 的重要来源. 同时 Mg 的 $EF_{\text{地壳}}$ 也小于 10(表3), 说明除了海洋源之外, 地壳源也对 Mg 有一定贡献, 这和白令海峡的研究结果^[39]相似.

K、Cu 呈明显的双模态分布, 细颗粒上的峰值主要在 0.43 ~ 0.65 μm 粒径段, 粗颗粒上的峰值出现在 3.3 ~ 4.7 μm 粒径段(图6), 这和青岛近岸观测结果相似. 不同于青岛, 海洋样品中 K 在粗颗粒上的比例从青岛的 62% 降到了 50% 左右, 表明这两个地域样品粗颗粒部分的来源不尽相同, 同时 K 在粗颗粒上的 $EF_{\text{海洋}} < 10$, 显示海洋源对粗颗粒 K 亦有一定的贡献, 与早期的研究结果^[39]一致. 海洋样品中 Cu 在粗细颗粒上的比例与青岛近岸相似, 但其在粗粒子峰值段的 $EF_{\text{地壳}}$ 增加到接近 10, 这表明海洋样品中粗颗粒上的 Cu 虽没有富集但受到人为源影响.

Pb、Cd 主要呈现细模态分布, 峰值出现在 0.43 ~ 0.65 μm 粒径段(图6), 且细粒子上的 $EF_{\text{地壳}}$ 均 > 10 , 这和青岛近岸观测到的结果近似, 说明陆源矿物沙尘或工业飘尘等引起的气溶胶可长距离传输至海洋上空, 是海洋非沙尘气溶胶中污染金属元素的主要来源之一^[40].

(3) 海陆样品对比

对比 3 ~ 4 月非沙尘期间的海陆样品的粒径分布(图7), 发现除 Na 之外, 青岛近岸气溶胶中 Al、Fe、Mg、K、Cu、Pb 在各个粒径段上的质量浓度均明显高于海洋, 这从另一面证实陆地气溶胶中绝大多数金属元素质量浓度一般显著高于开阔大洋.

2.2.2 沙尘事件中气溶胶中金属元素的粒径分布

(1) 青岛近岸样品

与青岛 3 ~ 4 月非沙尘样品相比, 4 月 23 日收集的受到沙尘事件影响的气溶胶样品中金属元素不仅在粗粒径上的含量大幅增加, 而且其中的细粒径上的含量也增加明显(图7), 这与早期的研究结果^[41]一致. 沙尘暴对青岛近岸气溶胶中 Al、Fe、Mg 和 Na 的模态分布影响最小, Cu 次之, 而对 K、Pb、Cd 影响最大.

沙尘期间 Al、Fe、Mg 和 Na 这 4 种金属元素仍呈现粗模态分布, 但峰值粒径由 3.3 ~ 4.7 μm 向 2.1 ~ 3.3 μm 粒径段偏移(图7), 并且这些金属在粗粒子上的比重较非沙尘期间下降明显. 沙尘气溶胶在远距离传输到青岛过程中, 大颗粒由于重力作用易于沉降致使这些主要存在于粗颗粒的金属元素的占比下降. 我国西部和西北部的沙漠和黄土高原以及内蒙古地区和蒙古国近期草原沙漠化所产生的风沙, 及其形成的大量沙尘显然是这些地壳元素的主要来源^[41].

Cu 仍保持双模态分布, 但受沙尘影响粗粒径段上的峰值远高于细粒径段(图7), 并且各粒径级

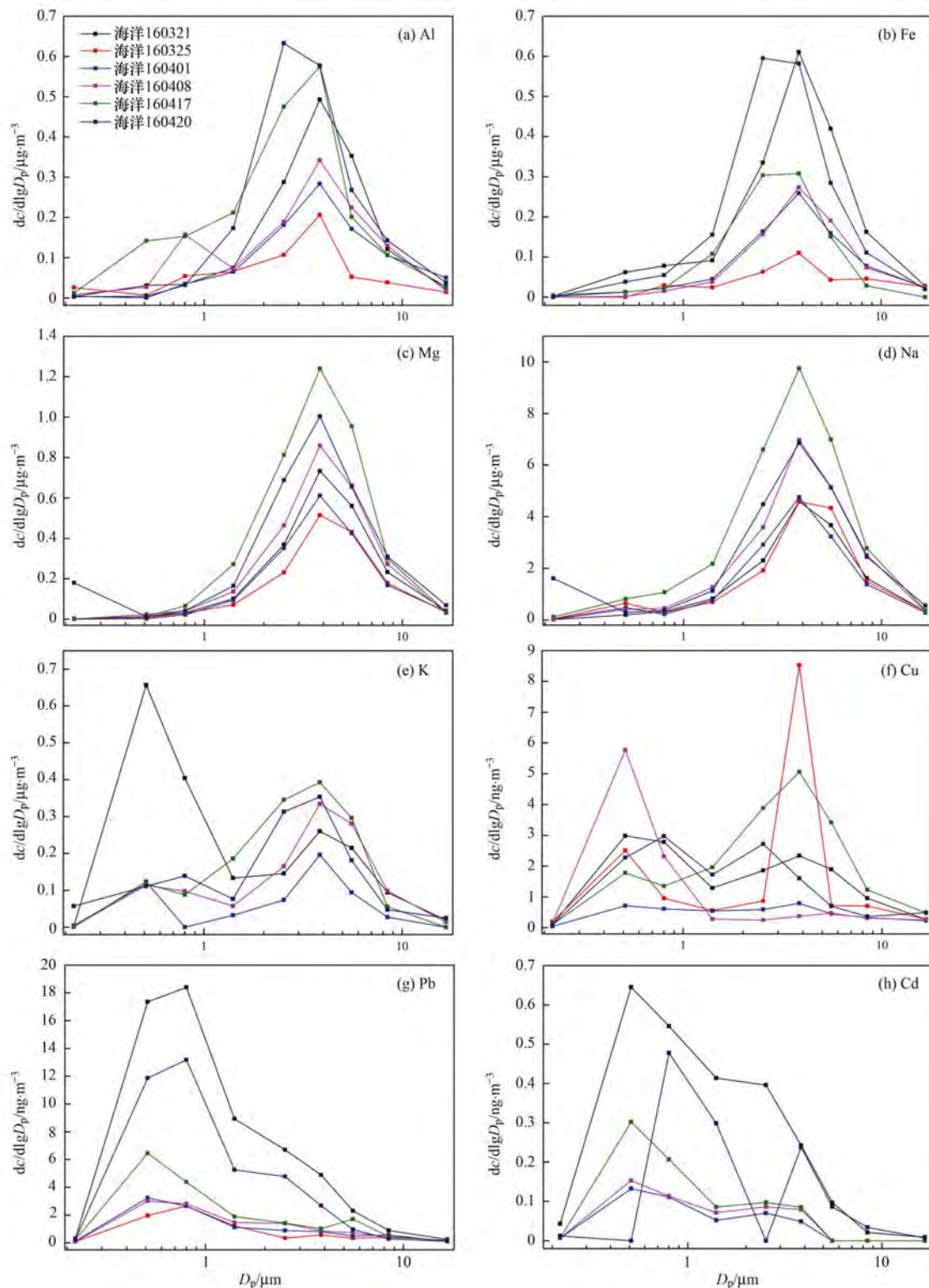


图6 非沙尘天气下海洋气溶胶中金属元素粒径分布

Fig. 6 Size distributions of metal elements in the marine aerosols samples during non-dust weather

$EF_{\text{地壳}}$ 均下降明显(表3), 其中在出现峰值的 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 细粒径段上的 $EF_{\text{地壳}}$ 由非沙尘前大于10而降到10以下, 这说明沙尘暴前Cu有部分来自人为污染源, 而沙尘事件降低了这种人为污染的影响, 使得沙尘暴期间的主要来源是地壳源^[27]。

K由双模态分布变为在 $2.1 \sim 3.3 \mu\text{m}$ 粒径段内出现峰值的粗模态分布(图7), 各粒径级 $EF_{\text{地壳}}$ 均

在10以下, 并且粒径分布特征及在粗粒子上的比重与Al等地壳金属相同, 这说明沙尘期间气溶胶中K的来源主要为地壳源。Pb、Cd等金属元素在粗粒径段上开始出现次峰而呈现双模态分布(图7, Pb在 $2.1 \sim 3.3 \mu\text{m}$ 粗粒径段上出现次峰, Cd在 $3.3 \sim 4.7 \mu\text{m}$ 出现次峰), 且出现次峰粒径段上的 $EF_{\text{地壳}}$ 均小于10, 沙尘气溶胶在远距离传输过程中

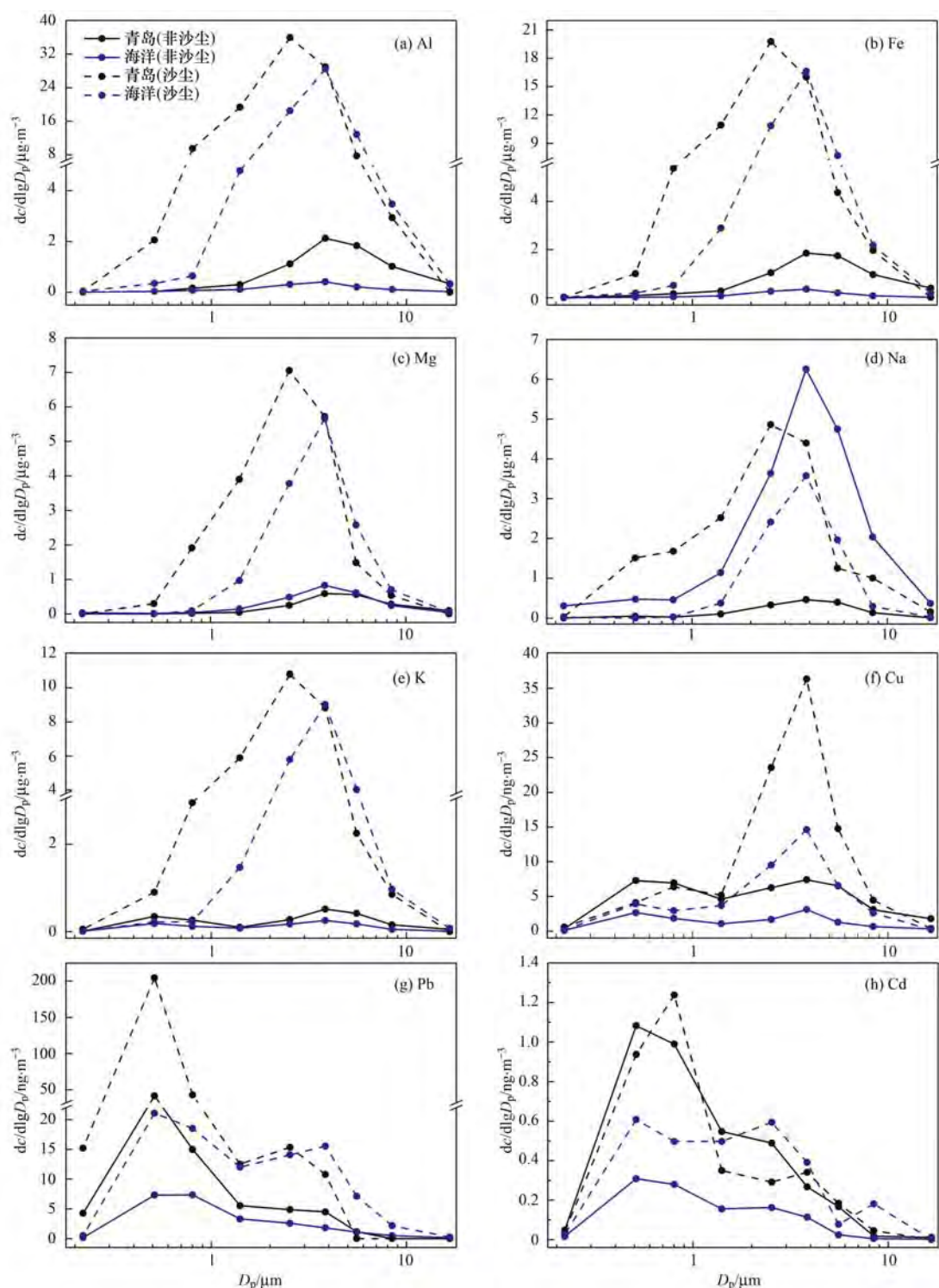


图7 2016年3~4月青岛近岸和海洋气溶胶中金属元素的粒径分布

Fig. 7 Size distribution of metal elements in the aerosols collected at the Qingdao coastal region site and over the sea from March to April 2016

由于表面黏附作用使得污染金属会富集在粗粒子上^[17]。值得注意的是,沙尘期间几乎各粒径级Cd的浓度值略低于非沙尘期间,说明沙尘粒子携带的Cd较少^[27]。

(2) 海洋样品

与海洋3~4月非沙尘样品相比,4月24日收集的受到沙尘影响的东海气溶胶样品中Al、Fe、Mg、K、Cu、Pb和Cd这7种金属元素在不同粒径

级上的质量浓度均增加明显,而Na则大幅降低。同青岛近岸沙尘期间观测到的结果相似,沙尘期间海洋气溶胶中Al、Fe、Mg和Na的峰型变化最小,Cu次之,K、Pb、Cd变化最大。

沙尘期间Al和Fe仍呈现原有的粒径分布特征(图7),这表明其主要来源仍以地壳来源为主。Mg和Na也保持原有的模态分布和峰值粒径,但其粒径分布特征开始变得同Al、Fe一致,且Na的

$EF_{\text{地壳}}$ 由非沙尘期间大于 10 变为小于 10, 这表明受沙尘天气影响, 海洋源影响减弱而地壳源影响增加。

Cu 仍呈现非沙尘期间的双模态分布和峰值粒径, 但各粒径段上的 $EF_{\text{地壳}}$ 均不同程度降低(尤其粗粒径段 $EF_{\text{地壳}}$ 降到 10 以下)且在粗粒子上的比重明显增加(图 7), 这表明沙尘期间粗颗粒上 Cu 受人为源的影响减弱, 这同青岛沙尘期间观测到的结果类似。与青岛不同的是, 出现峰值的 $0.43 \sim 0.65 \mu\text{m}$ 细粒径段上的 $EF_{\text{地壳}}$ 并未降到 10 以下, 这说明非沙尘海洋气溶胶中细颗粒部分 Cu 来自人为污染源, 而沙尘输入的地壳源则降低了这种局地污染源的贡献^[27]。

沙尘天气下 K 由双模态变成在 $3.3 \sim 4.7 \mu\text{m}$ 出现峰值的粗模态分布(图 7), 各粒径段上 $EF_{\text{地壳}}$ 均为 10 以下, $EF_{\text{海洋}}$ 变为 10 以上, 且与 Al 在不同粒径级上呈现良好的线性相关($r^2 = 0.99$), 这说明受到沙尘影响, 生物质燃烧等人为源和海洋源已不再是 K 主要来源转而变成以地壳源为主。Pb 由细模态变为粗粒子上 $3.3 \sim 4.7 \mu\text{m}$ 处出现次峰的双模态分布, 各粒径段上的 $EF_{\text{地壳}}$ 均下降明显(其中粗粒子部分降到 10 以下), 这表明沙尘期间污染元素 Pb 的粗粒子可能来自土壤沙尘等地壳源。Cd 由细模态分布变为粗细粒径段均有峰值出现的多模态分布, 与 Pb 不同的是, 各粒径段的 $EF_{\text{地壳}}$ 均有下降但在出现峰值的粒径段并未降到 10 以下, 这表明沙尘粒子的长距离传输会降低人为污染对 Cd 的影响, 但沙尘期间这些人为污染仍很严重^[27]。

(3) 海陆样品对比

对比沙尘期间的海陆样品, 可以发现青岛近岸沙尘气溶胶中 Al、Fe、Mg、Na、K 这 5 种金属元素的峰值粒径位于 $2.1 \sim 3.3 \mu\text{m}$, 小于东海沙尘样品的峰值粒径 $3.3 \sim 4.7 \mu\text{m}$ (图 7)。这可能与沙尘气团的传输高度有关, 相比较传输到青岛等区域的气团, 此次影响到东海等区域的沙尘气团属于高空传输(图 1), 沙尘气溶胶在高空传输过程中粗颗粒损失相对较少^[42], 因此金属元素在粗颗粒上的比重会增加, 地壳元素更易在 $3.3 \sim 4.7 \mu\text{m}$ 粒径段内出现峰值。同样还发现青岛近岸沙尘气溶胶中 Al、Fe、Mg、Na、K、Pb 和 Cd 这 7 种金属元素在粗颗粒上的占比下降了 $1\% \sim 35\%$, 而在东海沙尘气溶胶样品上升了 $4\% \sim 33\%$, 这可能与海陆气溶胶样品的吸湿增长有关, 一般海洋型气溶胶的吸湿增长因子大于城市型气溶胶^[43]。此外虽然受到同一次沙尘事件的影响, 但是到达两个采样点的气团传输路径存在差异, 后向轨迹显示, 东海区域的气团传输

途径经过了朝鲜半岛(图 1), 与青岛略有不同, 传输途中局地气溶胶的汇入, 会影响沙尘气溶胶中金属元素的粒径分布。

3 结论

(1) 受到沙尘事件影响, 青岛近岸样品中 Al、Fe、K、Na、Cu 和 Pb 的浓度增加而金属 Cd 浓度降低, 海洋样品中 Al、Fe、K、Cu、Pb 和 Cd 浓度增加而 Na 浓度降低。

(2) 此次沙尘事件对海陆气溶胶样品 Al、Fe、Mg 和 Na 的模态分布影响最小, Cu 次之, 而对 K、Pb、Cd 影响最大。Al、Fe、Mg 和 Na 保持粗模态分布; Cu 仍呈双模态分布, 但在粗粒子上的比重明显增加, 沙尘事件前 Cu 有部分来自人为污染源, 而沙尘粒子大大降低了这种局地污染源的贡献; K 由双模态分布变为粗模态分布, 沙尘期间其主要来源为地壳源; Pb、Cd 由细模态分布变为双(多)模态分布, 沙尘暴可降低人为污染对其影响。

(3) 沙尘事件影响下, 海洋气溶胶样品中 Al、Fe、Mg、Na、K 的峰值粒径较青岛近岸样品向粗粒子方向移动, 且这些金属在粗粒子的比重较非沙尘增加。吸湿增长及沙尘气团的传输路径和高度对气溶胶中金属的粒径分布有影响, 但影响程度和机制尚不清楚, 仍需进一步研究。

致谢: 本研究的数据及样品采集得到国家自然科学基金委员会共享航次计划(航次编号: NORC2016-09)的帮助, 该航次由中国海洋大学“东方红 2”科考船实施, 在此一并致谢。

参考文献:

- [1] Kupe A, Williamson C, Wagner N L, *et al.* Modification, calibration, and performance of the Ultra-High Sensitivity Aerosol Spectrometer for particle size distribution and volatility measurements during the Atmospheric Tomography Mission (ATom) airborne campaign [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2018, **11**(1): 369-383.
- [2] Song F, Gao Y. Size distributions of trace elements associated with ambient particulate matter in the vicinity of a major highway in the New Jersey - New York metropolitan area [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(37): 6714-6723.
- [3] Bhuyan P, Deka P, Prakash A, *et al.* Chemical characterization and source apportionment of aerosol over mid Brahmaputra Valley, India [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **234**: 997-1010.
- [4] Vedal S, Hannigan M P, Dutton S J, *et al.* The Denver aerosol sources and health (DASH) study: Overview and early findings [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(9): 1666-1673.
- [5] 李杏茹, 王国安, 李东. 兴隆本底站大气气溶胶中无机元素的粒径分布及来源分析 [J]. 首都师范大学学报(自然科学版), 2018, **39**(1): 45-51.
- Li X R, Wang G A, Li D. Particle size distribution and source analysis of inorganic elements in atmospheric aerosol in Xinglong

- base station[J]. Journal of Capital Normal University (Natural Science Edition), 2018, **39**(1): 45-51.
- [6] 徐宏辉, 王跃思, 温天雪, 等. 北京市大气气溶胶中金属元素的粒径分布和垂直分布[J]. 环境化学, 2007, **26**(5): 675-679.
- Xu H H, Wang Y S, Wen T X, *et al.* Size distributions and vertical distributions of metal elements of atmospheric aerosol in Beijing[J]. Environmental Chemistry, 2007, **26**(5): 675-679.
- [7] Lin C C, Chen S J, Huang K L, *et al.* Characteristics of metals in nano/ultrafine/fine/coarse particles collected beside a heavily trafficked road[J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(21): 8113-8122.
- [8] Allen A G, Nemitz E, Shi J P, *et al.* Size distributions of trace metals in atmospheric aerosols in the United Kingdom [J]. Atmospheric Environment, 2001, **35**(27): 4581-4591.
- [9] Zhang D Z, Iwasaka Y, Shi G Y, *et al.* Mixture state and size of Asian dust particles collected at southwestern Japan in spring 2000[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2003, **108**(D24): 4760.
- [10] D'Almeida G A. On the variability of desert aerosol radiative characteristics [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1987, **92**(D3): 3017-3026.
- [11] North G R. Climate change 1994: Radiative forcing of climate change and an evaluation of the IPCC IS92 emission scenarios. Intergovernmental panel on climate change (IPCC) [J]. Global and Planetary Change, 1997, **15**(1-2): 59-60.
- [12] Tang Y H, Carmichael G R, Seinfeld J H, *et al.* Three-dimensional simulations of inorganic aerosol distributions in east Asia during spring 2001 [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2004, **109**(D19): D19S23.
- [13] Sullivan R C, Guazzotti S A, Sodeman D A, *et al.* Mineral dust is a sink for chlorine in the marine boundary layer [J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(34): 7166-7179.
- [14] 刘明哲, 魏文寿, 周宏飞, 等. 中国西北沙尘源区与日本沉降区大气气溶胶粒子理化特征及对比[J]. 中国沙漠, 2003, **23**(4): 408-414.
- Liu M Z, Wei W S, Zhou H F, *et al.* Physiochemical properties of atmospheric aerosol particles over sand-dust source areas and sedimentary areas in Asia [J]. Journal of Desert Research, 2003, **23**(4): 408-414.
- [15] Warren D R, Seinfeld J H. Simulation of aerosol size distribution evolution in systems with simultaneous nucleation, condensation, and coagulation[J]. Aerosol Science and Technology, 1985, **4**(1): 31-43.
- [16] Shi Z B, Zhang D Z, Hayashi M, *et al.* Influences of sulfate and nitrate on the hygroscopic behaviour of coarse dust particles[J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(4): 822-827.
- [17] 成天涛, 吕达仁, 于兴娜, 等. 浑善达克沙地沙尘气溶胶的化学元素组成及含量[J]. 过程工程学报, 2006, **6**(S2): 100-104.
- Cheng T T, Lv D R, Yu X N, *et al.* The compositions of chemical elements associated with dust particles from Hunshan Dake sandland[J]. The Chinese Journal of Process Engineering, 2006, **6**(S2): 100-104.
- [18] Mori I, Nishikawa M, Tanimura T, *et al.* Change in size distribution and chemical composition of kosa (Asian dust) aerosol during long-range transport [J]. Atmospheric Environment, 2003, **37**(30): 4253-4263.
- [19] Zhang X Y, Arimoto R, An Z S. Dust emission from Chinese desert sources linked to variations in atmospheric circulation[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1997, **102**(D23): 28041-28047.
- [20] 陈晓静, 祁建华, 刘宁, 等. 青岛近海不同天气状况下大气气溶胶中金属元素浓度分布特征研究[J]. 环境科学, 2014, **35**(10): 3651-3662.
- Chen X J, Qi J H, Liu N, *et al.* Concentration distribution of metal elements in atmospheric aerosol under different weather conditions in Qingdao Coastal Region [J]. Environmental Science, 2014, **35**(10): 3651-3662.
- [21] 李生才, 安莹. 2016 年 3—4 月国内环境事件[J]. 安全与环境学报, 2016, **16**(3): 391-394.
- Li S C, An Y. Statistics of environmental events in China during the period from March to April in 2016[J]. Journal of Safety and Environment, 2016, **16**(3): 391-394.
- [22] 漆燕, 刘湛, 尤翔宇, 等. 长沙市城南地区 PM_{2.5} 中微量元素的污染特征[J]. 环境科学与技术, 2016, **39**(S2): 26-31.
- Qi Y, Liu Z, You X Y, *et al.* The pollution characteristics of the trace elements in PM_{2.5} in south area of Changsha [J]. Environmental Science & Technology, 2016, **39**(S2): 26-31.
- [23] 陈立奇, 杨绪林, 汤荣坤, 等. 环球海洋大气气溶胶化学研究 I. Na、Mg、K、Cl、Ca、Br、F 的特征[J]. 海洋学报, 1992, **14**(6): 47-55.
- [24] Goldberg E D. The oceans as a chemical system[J]. The Sea, 1963, **2**(3): 645-701.
- [25] 李连科, 栗俊, 范国全, 等. 大连海域大气气溶胶物质来源分析[J]. 重庆环境科学, 1997, **19**(5): 18-23.
- Li L K, Li J, Fan G Q, *et al.* Sources analysis of marine aerosol in the atmosphere at Dalian sea area [J]. Chongqing Environmental Science, 1997, **19**(5): 18-23.
- [26] 张岩. 中国东部陆架海大气气溶胶中主要化学组成与来源分析[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2014.
- Zhang Y. The major compositions and source of atmospheric aerosol over the shelf sea of eastern China[D]. Qingdao: Ocean University of China, 2014.
- [27] 李杰. 兰州武威沙尘气溶胶粒度分布和化学成分的比较[D]. 兰州: 兰州大学, 2004.
- [28] Qi J H, Liu X H, Yao X H, *et al.* The concentration, source and deposition flux of ammonium and nitrate in atmospheric particles during dust events at a coastal site in northern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, **18**(2): 571-586.
- [29] 崔文岭, 郭瑞, 张浩. 亚洲沙尘由蒙古戈壁向长江三角洲的传输及其与污染气溶胶的混合特征[J]. 复旦学报(自然科学版), 2009, **48**(5): 585-592.
- Cui W L, Guo R, Zhang H. The long-range transport of dust from Mongolia Gobi to the Yangtze River basin and its mixing with pollutant aerosols[J]. Journal of Fudan University (Natural Science), 2009, **48**(5): 585-592.
- [30] 周明煜, 曲绍厚, 宋锡铭, 等. 北京地区一次尘暴过程的气溶胶特征[J]. 环境科学学报, 1981, **1**(3): 207-219.
- Zhou M Y, Qu S H, Song X M, *et al.* Some properties of the aerosols during a dust storm over Beijing area[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 1981, **1**(3): 207-219.
- [31] 温玉璞, 杨东贞, 杨绍晋, 等. 北京地区一次尘暴气溶胶的化学组成及其来源[J]. 应用气象学报, 1993, **4**(3): 370-378.
- Wen Y P, Yang D Z, Yang S J, *et al.* Chemical composition and origin of a duststorm over Beijing [J]. Quarterly Journal of Applied Meteorology, 1993, **4**(3): 370-378.
- [32] 全浩. 关于中国西北地区沙尘暴及其黄沙气溶胶高空传输路线的探讨[J]. 环境科学, 1993, **14**(5): 60-64.
- [33] 姚青, 孙玫玲, 张长春, 等. 天津大气气溶胶化学组分的粒

- 径分布和垂直分布[J]. 气象科技, 2008, **36**(6): 692-696.
- Yao Q, Sun M L, Zhang C C, *et al.* Size distribution and vertical variation of atmospheric aerosol in Tianjin [J]. Meteorological Science and Technology, 2008, **36**(6): 692-696.
- [34] Wang Y, Zhuang G S, Tang A H, *et al.* The ion chemistry and the source of PM_{2.5} aerosol in Beijing [J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(21): 3771-3784.
- [35] Horvath H, Kasahara M, Pesava P. The size distribution and composition of the atmospheric aerosol at a rural and nearby urban location[J]. Journal of Aerosol Science, 1996, **27**(3): 417-435.
- [36] 陈立奇, 王志红, 杨绪林, 等. 台湾海峡西部海域大气中金属的特征 I. 金属的浓度和粒度分布[J]. 海洋学报, 1998, **20**(6): 31-38.
- Chen L Q, Wang Z H, Yang X L, *et al.* Characteristics of metals in atmosphere over the western Taiwan Strait I. Concentrations and distributions[J]. Acta Oceanologica Sinica, 1998, **20**(6): 31-38.
- [37] Moreno T, Alastuey A, Querol X, *et al.* The identification of metallic elements in airborne particulate matter derived from fossil fuels at Puertollano, Spain [J]. International Journal of Coal Geology, 2007, **71**(2-3): 122-128.
- [38] Duce R A, Arimoto R, Ray B J, *et al.* Atmospheric trace elements at Enewetak Atoll: 1. Concentrations, sources, and temporal variability [J]. Journal of Geophysical Research: Oceans, 1983, **88**(C9): 5321-5342.
- [39] 李犇, 朱赖民, 张菲菲, 等. 白令海峡及其附近海域气溶胶中金属元素含量特征[J]. 环境科学研究, 2007, **20**(3): 1-9.
- Li B, Zhu L M, Zhang F F, *et al.* Characteristic analysis of trace element concentrations in aerosol of Bering Strait and the neighboring sea area [J]. Research of Environmental Sciences, 2007, **20**(3): 1-9.
- [40] 付丹. 中国近海至南大洋大气 NO_x 及气溶胶中金属元素和 PAHs 分布特征及源解析[D]. 青岛: 国家海洋局第一海洋研究所, 2017.
- Fu D. Distribution characteristic and source apportionment of atmospheric NO_x and metal elements and PAHs in aerosol from offshore of China to Southern Ocean [D]. Qingdao: The First Institute of Oceanography, State Oceanic Administration, 2017.
- [41] 庄国顺, 郭敬华, 袁蕙, 等. 2000 年我国沙尘暴的组成、来源、粒径分布及其对全球环境的影响[J]. 科学通报, 2001, **46**(3): 191-197.
- [42] 崔文岭. 沙尘气溶胶自北向南长途传输过程中化学特征的演化及其与污染气溶胶的混合机理[D]. 上海: 复旦大学, 2009.
- [43] 刘新罡, 张远航. 广州市大气气溶胶散射吸湿增长因子的观测研究[J]. 中国环境科学, 2009, **29**(11): 1128-1133.
- Liu X G, Zhang Y H. Research on the measurement of aerosol hygroscopic growth factor in Guangzhou City [J]. China Environmental Science, 2009, **29**(11): 1128-1133.

CONTENTS

Source Apportionment and Mixing State of Single Particles in the Nanjing Jiangbei New Area	YU Xing-na, SHI Zheng, MA Jia, <i>et al.</i> (1521)
Characteristics of Carbonaceous Aerosol Pollution in PM _{2.5} in Xi'an	MU Zhen, CHEN Qing-cai, WANG Yu-qin, <i>et al.</i> (1529)
Chemical Composition Characteristics and Source Apportionment of PM _{2.5} During Winter in Taiyuan	LIU Su, MA Tong, YANG Yan, <i>et al.</i> (1537)
Seasonal Variation and Source Analysis of Water-soluble Inorganic Ions in Fine Particulate Matter in Zhengzhou	YAN Guang-xuan, ZHANG Jing-wen, LEI Hao-jie, <i>et al.</i> (1545)
Elemental Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric PM _{2.5} in a Suburb of Zhuhai City	YANG Yi-hong, JIA Yan, BIAN Guo-jian, <i>et al.</i> (1553)
Impact of a Dust Event on the Size Distribution of Metal Elements in Atmospheric Aerosols at a Coastal Region and over the Ocean	JIN Tong-jun, QI Jian-hua, XI Zi-yan, <i>et al.</i> (1562)
CALPUFF Modeling of the Influence of Typical Industrial Emissions on PM _{2.5} in an Urban Area Considering the SOA Transformation Mechanism	GAO Shuang, BO Xin, MA Yan, <i>et al.</i> (1575)
Variation in Pollutant Concentrations and Correlation Analysis with the Vegetation Index in Beijing-Tianjin-Hebei	SUN Shuang, LI Ling-jun, ZHAO Wen-ji, <i>et al.</i> (1585)
Estimation of Coal Consumption and the Emission of Related Contaminants in the Plain Area Around Beijing During 2015-2017	ZHAO Wen-hui, LI Ling-jun, LU Hai-feng, <i>et al.</i> (1594)
Column-integrated Aerosol Optical Properties Determined Using Ground-based Sun Photometry Measurements in the Hangzhou Region	QI Bing, CHE Hui-zheng, XU Ting-ting, <i>et al.</i> (1604)
Speciated VOCs Emission Inventory and Ozone Formation Potential in Sichuan Province	ZHOU Zi-hang, DENG Ye, TAN Qin-wen, <i>et al.</i> (1613)
Characterization of Volatile Organic Compounds from Cooking Emissions	GAO Ya-qin, WANG Hong-li, XU Rui-zhe, <i>et al.</i> (1627)
Analysis of Peroxyacetyl Nitrate and Ozone During a Typical Photochemical Pollution Process at the Panyu Atmospheric Composition Station	ZOU Yu, DENG Xue-jiao, LI Fei, <i>et al.</i> (1634)
Characteristics and Interannual Variation of Chemical Components in Typical Road Dust in Beijing	HU Yue-qi, LI Meng, YAN Xu, <i>et al.</i> (1645)
Sources Analysis and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the PM _{2.5} Fraction of Fugitive Dust in Nanchang City	YU Rui-lian, ZHENG Quan, LIU Xian-rong, <i>et al.</i> (1656)
Methods and Application of Road Fugitive Dust Emission Factor Localization	FAN Shou-bin, YANG Tao, WANG Kai, <i>et al.</i> (1664)
Characterization of Tailpipe Emissions from in-use Excavators	MA Shuai, ZHANG Kai-shan, WANG Fan, <i>et al.</i> (1670)
Microbial Properties of Different Size Aerosols at Human Average Respiratory Height During Fog-haze Days	YANG Tang, HAN Yun-ping, LI Lin, <i>et al.</i> (1680)
Modification and Performance Tests of Visibility Parameterizations for Haze Days	ZHAO Xiu-juan, LI Zi-ming, XU Jing (1688)
Application of Support Vector Machine Regression in Ozone Forecasting	SU Xiao-qian, AN Jun-lin, ZHANG Yu-xin, <i>et al.</i> (1697)
Analysis of PHEV CO ₂ Emission Based on China's Grid Structure and Travelling Patterns in Mega Cities	HAO Xu, WANG He-wu, LI Wei-feng, <i>et al.</i> (1705)
Sources of Nitrate in Groundwater and Its Environmental Effects in Karst Trough Valleys: A Case Study of an Underground River System in the Longfeng Trough Valley, Chongqing	DUAN Shi-hui, JIANG Yong-jun, ZHANG Yuan-zhu, <i>et al.</i> (1715)
Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Phthalate Esters (PAEs) in the Surface Water of Jiaozhou Bay	LIU Cheng, SUN Cui-zhu, ZHANG Ge, <i>et al.</i> (1726)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Sediments of Zhanjiang Bay	PENG Shi-yun, PENG Ping-an, KONG De-ming, <i>et al.</i> (1734)
Analysis of the Optical Properties and Factors Influencing DOM in an Ecological Purification System: A Case Study of Yanlong Lake in Spring	MA Rui, LI Xuan, WANG Lian, <i>et al.</i> (1742)
Analysis of the Relationship Between Dissolved Organic Matter (DOM) and Watershed Land-use Based on Three-dimensional Fluorescence-Parallel Factor (EEM-PARAFAC) Analysis	LI Yun, WEI Hong-jie, WANG Kan, <i>et al.</i> (1751)
Analysis of the Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Emissions from Agricultural Non-point Sources on Hanfeng Lake Basin	XIE Jing-chao, ZHAO Xiu-lan, HE Bing-hui, <i>et al.</i> (1760)
Simulation of the Migration and Leaching of Nitrate Nitrogen in the Farmland Soil Profile in a Hilly Area of Taihang Mountain with the RZWQM Model	ZHENG Wen-bo, WANG Shi-qin, LIU Bing-xia, <i>et al.</i> (1770)
Spatial Distribution Characteristics of Nutrients and Chlorophyll A in the Lancang River Basin Under Cascade Reservoirs	CHENG Bao, WANG Xue, MA Jin-chuan, <i>et al.</i> (1779)
Nutrient Distribution of Overlying Water in Tidal Marshes in Five Estuaries and Bays of the Fuzhou Region in Autumn	HE Lu-lu, YANG Ping, TAN Li-shan, <i>et al.</i> (1788)
Distribution and Environmental Risk of Pharmaceutically Active Compounds in the Traditionally Aqueous Phase of Effluent-receiving Rivers	WANG Shuo, LIU Jian-chao, ZHENG Chao-ya, <i>et al.</i> (1797)
Effects of a Green Roof on Stormwater Regulation and Cost-benefit Analysis	LI Jun-sheng, YIN Hai-wei, KONG Fan-hua, <i>et al.</i> (1803)
Ultrasonically Activated Persulfate Degrades Typical Odors in Water	SUN Xin, SUN Jie, LI Peng-fei, <i>et al.</i> (1811)
Metal Organic Framework MIL-53(Fe) as a Photocatalyst for Visible-light Catalytic Reduction of U(VI) in Aqueous Solution	YAN Zeng-yuan, XI Hai-ling, YUAN Li-yong (1819)
Effects and Differences of the Release of Dissolved Organic and Inorganic Phosphorus in Different Sediments Covered by Different Materials of Erhai Lake	GONG Jia-jian, NI Zhao-kui, XIAO Shang-bin, <i>et al.</i> (1826)
Phosphate Removal Using Rice Husk Biochars Modified with Lanthanum Hydroxide	XU Run, SHI Cheng-hao, TANG Qian, <i>et al.</i> (1834)
Characteristics and Heavy Metal Adsorption Performance of Sewage Sludge-derived Biochar from Co-pyrolysis with Transition Metals	CHEN Tan, ZHOU Ze-yu, MENG Rui-hong, <i>et al.</i> (1842)
Adsorption, Reclaim, and Regeneration of Cd by Magnetic Calcium Dihydrogen Phosphate Nanoparticles	LI Yu-jiao, YANG Zhi-min, CHEN Yu-cheng, <i>et al.</i> (1849)
Effect of Hematite on the Inhibition of Hydrogen Sulfide Formation and Its Mechanism During Anaerobic Digestion and Methanogenesis of Sulfate Wastewater	HUANG Shao-fu, YE Jie, ZHOU Shun-gui (1857)
Pollutant Removal Performance and Membrane Fouling Characteristics in Marine Aquaculture Wastewater Treatment by a Microalgae Membrane Reactor	MA Hang, LI Zhi-peng, LIU Feng, <i>et al.</i> (1865)
Pre-precipitation of Sewage-SNAD Granular Sludge Process Test	LI Dong, CUI Ya-qian, ZHAO Shi-xun, <i>et al.</i> (1871)
Impact of Actual Domestic Sewage and Simulated Wastewater on an Aerobic Granular Sludge System	LI Dong, WANG Ying-qiao, LI Shuai, <i>et al.</i> (1878)
Nitrogen Removal Performance of a Sulfur/Pyrite Autotrophic Denitrification System	ZHOU Ya, MAI Wen-ning, LIANG Jia-wei, <i>et al.</i> (1885)
Nitrogen Removal by Heterotrophic Nitrifying Bacterium <i>Pseudomonas putida</i> YH and Its Kinetic Characteristics	WANG Xu-hui, YANG Lei, REN Yong-xiang, <i>et al.</i> (1892)
Effect of Sludge Retention Time and pH on the Denitrifying Phosphorus Removal Process	WEI Jia-min, HUANG Hui-min, CHENG Cheng, <i>et al.</i> (1900)
Microbial Community of Granular Sludge in an ANAMMOX-EGSB Reactor Under Saline Conditions	WANG Han, LI Han-xiang, CHEN You-peng, <i>et al.</i> (1906)
Effect of Intracellular Carbon Source (PHA) Storage on the Mixed Growth Microbial Community Resistance to Low Temperature	YANG Jian-peng, ZHANG Jian, TIAN Qing, <i>et al.</i> (1914)
Contents and Forms of Phosphorus in the Municipal Sewage Sludge of China	WANG Chao, LIU Qing-wei, ZHI Yin, <i>et al.</i> (1922)
Contamination Characteristics and Safety Risk Assessment of Perfluorinated Alkylated Substances in Aquatic Products from Guangzhou	WANG Xu-feng, WANG Qiang, LI Zhi-guang, <i>et al.</i> (1931)
Characteristics of the Dissolved Nitrous Oxide (N ₂ O) Concentrations and Influencing Factors in a Representative Agricultural Headwater Stream in the Upper Reach of the Yangtze River	TIAN Lin-lin, WANG Zheng, HU Lei, <i>et al.</i> (1939)
CH ₄ Uptake in Different Saline-alkaline Soils in Hetao Irrigation District, Inner Mongolia	YANG Wen-zhu, JIAO Yan, YANG Ming-de, <i>et al.</i> (1950)
Allocation and Stabilization Responses of Rice Photosynthetic Carbon in the Plant-Soil System to Phosphorus Application	WANG Ying-ying, XIAO Mou-liang, ZHANG Yun, <i>et al.</i> (1957)
Effect of Soil Moisture and Temperature on the Soil Inorganic Carbon Release of Brown Limestone Soil in the Karst Region of Southwestern China	XU Xue-chi, HUANG Yuan, HE Xun-yang, <i>et al.</i> (1965)
Temporal and Spatial Dynamics of Soil Microbial Biomass Carbon and Its Influencing Factors on an Eroded Slope in the Hilly Loess Plateau Region	QIN Qian, ZHU Shi-shuo, XIA Bin, <i>et al.</i> (1973)
Composition, Characteristics, and Accumulation of Antibiotics in the Soil in Agricultural Land	KONG Chen-chen, ZHANG Shi-wen, NIE Chao-jia, <i>et al.</i> (1981)
VOCs and Odors Control and Development in Pharmaceutical Fermentation Industry	WANG Dong-sheng, ZHU Xin-meng, YANG Xiao-fang, <i>et al.</i> (1990)