

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

2000~2018年我国大气重金属沉降通量时空变化特征

陈其永, 郜允兵, 倪润祥, 潘瑜春, 阎跃观, 杨晶, 刘孝阳, 顾晓鹤



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年9月

第43卷 第9期
Vol.43 No.9

目次

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

2000 ~ 2018 年我国大气重金属沉降通量时空变化特征

陈其永^{1,2}, 郜允兵^{1*}, 倪润祥³, 潘瑜春¹, 阎跃观², 杨晶¹, 刘孝阳⁴, 顾晓鹤¹

(1. 北京市农林科学院信息技术研究中心, 北京 100097; 2. 中国矿业大学(北京)地球科学与测绘工程学院, 北京 100083; 3. 农业农村部农业生态与资源保护总站, 北京 100125; 4. 生态环境部土壤与农业农村生态环境监管技术中心, 北京 100012)

摘要: 大气沉降物中的重金属对土壤环境的影响不容忽视. 为研究我国大气重金属(As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn)沉降通量现状及时空变化特征, 基于中国知网和 Web of Science 数据库收集了 2001 ~ 2021 年公开发表的大气重金属沉降通量文献 99 篇, 各重金属元素监测点 718 ~ 1 672 个. 采用 Meta-analysis 方法计算中国大气重金属沉降通量加权均值, 运用亚组分析法研究了 2000 ~ 2018 年不同时期大气沉降通量时空变化, 对比分析了农业农村区、城市区和工业区等不同类型区的组间差异. 结果表明, 我国大气重金属年沉降通量 [$\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$] 为: $\text{Zn}(96.75) > \text{Pb}(23.37) > \text{Cu}(12.77) > \text{Cr}(11.04) > \text{Ni}(6.61) > \text{As}(2.97) > \text{Cd}(0.48) > \text{Hg}(0.05)$, 2000 ~ 2018 年沉降通量总体估计值高于 1995 ~ 1998 年英国乡村地区; 工业区和城市区的沉降通量显著高于农业农村区, 工业区大气重金属污染较为严重; 长株潭地区 As 和 Cd 的沉降通量较高, 东北地区、珠三角和华北平原大气重金属沉降通量较其它区域严重; 近 20 年来 Cd 的年沉降通量均值在总体均值附近波动, 无明显下降趋势; 其中, 城市区和农业农村区的 Cd 沉降通量呈增加趋势. 本文建议结合区域产业结构特征建立分级分类分区的大气排放精准治理和风险管控措施, 针对当前大气 Cd 沉降通量较大的问题实行更加严格的限制性措施.

关键词: 重金属; 大气沉降; Meta-analysis 方法; 时空变化; 沉降通量

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)09-4413-12 DOI: 10.13227/j.hjxx.202201135

Temporal and Spatial Variation Characteristics of Heavy Metal in Atmospheric Deposition in China from 2000 to 2018

CHEN Qi-yong^{1,2}, GAO Yun-bing^{1*}, NI Run-xiang³, PAN Yu-chun¹, YAN Yue-guan², YANG Jing¹, LIU Xiao-yang⁴, GU Xiao-he¹

(1. Research Center of Information Technology, Beijing Academy of Agriculture and Forestry Sciences, Beijing 100097, China; 2. College of Geoscience and Surveying Engineering, China University of Mining and Technology (Beijing), Beijing 100083, China; 3. Rural Energy and Environment Agency, Ministry of Agriculture and Rural Affairs, Beijing 100125, China; 4. Technical Centre for Soil, Agriculture and Rural Ecology and Environment, Ministry of Ecology and Environment, Beijing 100012, China)

Abstract: Owing to the significant impact of heavy metals in atmospheric deposition on soil, clear knowledge on the present situation and temporal and spatial variation in fluxes of heavy metals in atmospheric deposition all around China is urgently needed. In this study, we collected 99 published papers on deposition fluxes of heavy metals from 2001 to 2021 based on the CNKI and Web of Science database and extracted 718 to 1 672 monitoring points from these papers. The Meta-analysis method was used to calculate the weighted average of deposition fluxes of heavy metals, and the spatial-temporal characteristics in different periods from 2000 to 2018 were studied by subgroup analysis, which compared the differences between different types of areas, such as agricultural and rural areas and urban and industrial areas. The results showed that the annual fluxes of heavy metals in atmospheric deposition [$\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$] in China were as follows: $\text{Zn}(96.75) > \text{Pb}(23.37) > \text{Cu}(12.77) > \text{Cr}(11.04) > \text{Ni}(6.61) > \text{As}(2.97) > \text{Cd}(0.48) > \text{Hg}(0.05)$. Overall, the estimated value of deposition fluxes in China from 2000 to 2018 was higher than that of rural areas in England from 1995 to 1998. The deposition fluxes in industrial areas and urban areas were much higher than those in the agricultural and rural areas, especially the industrial areas where the heavy metal pollution was more serious. The deposition fluxes of As and Cd in the Changsha-Zhuzhou-Xiangtan area were relatively high, whereas the atmospheric deposition of heavy metals in Northeast China, the Pearl River Delta, and North China Plain was more serious than that in the other areas. In the past 20 years, the annual deposition fluxes of Cd fluctuated around the overall average, without an obviously declining trend, whereas the deposition fluxes of Cd in the urban, agricultural, and rural areas showed a trend of growth. These results suggested that precise and risk control measures of atmospheric emissions should be established based on the characteristics of regional industrial structure, which should cover all levels, all types, and all regions. In addition, more restrictive measures should be taken to solve the current problem caused by the higher deposition flux of Cd in atmospheric deposition.

Key words: heavy metal; atmospheric deposition; Meta-analysis method; spatial-temporal analysis; deposition fluxes

随着中国的快速工业化和城镇化快速扩张, 大气污染物排放持续增加, 尤其是大气重金属的排放量快速增长^[1,2], 对土壤环境和人体健康产生重要影响^[3~5]. 大气中的重金属元素多以颗粒态存在, 主要通过化石能源燃烧、冶金工业排放和扬尘等途径进入大气环境^[6]. 重金属经过大气扩散传输最终以干湿沉降的方式返回地表^[7~9], 在表层土壤中不同程度地累积, 进而对排放源周围的生态系统造成持

久性影响. 大气沉降除本身是有害物质外, 还是其他污染物的运载体和反应床^[10], 重金属以松散的形式附着在降尘颗粒表面, 会导致重金属元素的不稳定

收稿日期: 2022-01-15; 修订日期: 2022-01-28

基金项目: 国家自然科学基金项目(42077001); 北京市农林科学院科技创新能力建设专项(KJ CX20200414); 国家重点研发计划项目(2017YFD0801205)

作者简介: 陈其永(1997~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为大气重金属沉降时空变化分析, E-mail: cqi_1010@126.com

* 通信作者, E-mail: gaoyb@nercita.org.cn

性和潜在生物有效性^[11]. 有研究表明, 大气沉降是英国农田土壤重金属的主要来源, 对重金属输入的贡献达到 25% ~ 85%^[12]; Luo 等^[13] 的研究显示, 1999 ~ 2006 年大气沉降对中国土壤中重金属元素 As、Hg、Ni 和 Pb 年输入量的贡献达到 58% ~ 85%, 而农田土壤中积累的重金属会迁移到农产品中, 通过食物链危害人类健康^[14]. 因此, 分析我国大气重金属沉降通量, 对于土壤重金属输入源精准管控具有重要意义.

美国、英国和日本于 20 世纪 70 年代至 90 年代先后建立了大气重金属沉降监测网 AMEP^[15]、EMEP^[16] 和 OSPAR^[17], 系统观测大气重金属沉降的时空变化规律, 以期反映大气重金属沉降对农田土壤、生物和水体的影响. 1999 年中国地质调查局牵头开展多目标区域地球化学调查, 在我国中东部主要农产区, 以土壤为核心, 系统地开展了大气、水、土壤和植物的地球化学循环途径及输入输出通量的调查工作, 以期查清重金属元素来源、迁移途径和生态效应. 由于监测持续时间短, 尚未建立全国性大气重金属沉降的监测, 并不能全面反映大气沉降时间序列变化特征. 近年来, 针对大气重金属沉降中国学者开展了大量研究. 针对农业农村区, 杨忠芳等^[18]、Jiang 等^[19]、Hou 等^[20]、Xia 等^[21] 和王增辉^[22] 分别研究了成都经济区、海南、长江三角洲、松嫩平原和鲁西南平原区的重金属大气沉降通量及其对农田土壤重金属输入的贡献, 结果显示, 大气沉降对农田土壤重金属输入贡献率达到 42% ~ 98%. 针对城市区, 焦荔等^[23]、栾慧君等^[24]、Huang 等^[4] 和张夏等^[25] 分别研究了杭州市、徐州市、广州市和重庆市的重金属大气沉降通量, 结果显示中国城市大气重金属含量偏高, 严重威胁人类生活健康. 上述这些研究多为区域性, 且缺乏长时间序列的时空变化过程监测分析. 如何基于历史研究的文献资料对全国尺度的大气重金属沉降情况进行摸底分析, 对大气和土壤环境精准治理都具有重要现实意义. 通过文献检索方法收集中国大气重金属沉降通量数据^[26~28], 采用文献计量方法进行大气重金属沉降通量时空变化分析是可行方法. Luo 等^[13]、Ni 等^[26] 和 Peng 等^[27] 探讨了大气重金属沉降对我国农业农村区的影响; 王梦梦等^[28] 收集了 1995 ~ 2015 年文献资料, 分析了中国大气重金属沉降特征和时空变化规律. 然而, 随着城市化和工业化的发展以及环保政策的实施, 各污染源向大气中排放的重金属发生了很大的变化. 同时, 由于文献发表的偏倚性, 采用同样的权重计算大气重金属沉降通量均值, 容易过高或过低估计大气重金属沉降通量, 并不能客观反映

我国大气重金属沉降通量现状和时空变化规律, 不利于大气颗粒物排放的精细化管控.

Meta-analysis 是对同一主题下多个研究进行综合分析的方法, 可从宏观区域尺度进行大样本数据的定量分析, 其在土壤重金属时空变化分析有较为成熟应用^[29,30], 可以进行中国大气重金属沉降的时空变化特征分析. 本文通过文献检索, 获取 2001 ~ 2021 年公开发表的文献 99 篇, 提取中国大气 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 沉降数据, 建立中国大气重金属沉降通量数据库. 采用 Meta-analysis 方法将每篇文献按其样点数和采样时长赋予不同的权重, 运用亚组分析评估中国大气重金属沉降通量的时空变化特征, 分析农业农村区、城市区和工业区大气重金属沉降通量差异, 探讨不同类型区的人类活动对重金属大气沉降的影响, 以期对大气重金属污染排放监管及土壤重金属污染治理提供决策依据.

1 材料与方法

1.1 文献数据提取

本文通过关键词在中国知网 (CNKI) 和 Web of Science (WOS) 数据库检索中国大气重金属元素 (As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn) 沉降通量论文. 中国知网数据库采用检索方案: SU = (“重金属” OR “砷” OR “镉” OR “铬” OR “铜” OR “汞” OR “镍” OR “铅” OR “锌”) AND (“大气” NOT “土壤”) AND (“沉降” OR “降尘” OR “干湿沉降” OR “干沉降” OR “湿沉降” OR “可溶降尘物”) NOT (“苔藓”), 共检索出 537 篇中文文献. Web of Science 数据库采用检索方案: TS = (trace element OR toxic element OR heavy metal OR arsenic OR cadmium OR chromium OR copper OR mercury OR nickel OR lead OR zinc) AND TS = (atmospheric NOT soil) AND TS = (deposition OR dustfall OR dust OR bulk deposition) NOT TS = (moss) AND AD = (China OR Chinese) AND LA = (English), 检索出 317 篇英文文献, 共得到 854 篇中英文文献. 设置纳入标准对文章进行筛选, 符合标准的文献纳入到 Meta-analysis 中, 文献筛选标准: ①文献研究区须在中国境内开展的实地监测实验, 样品收集方法为被动采样法, 采集的样品为大气干湿沉降混合样品; ②文献需指明采样点位置、样点数及样点所在行政区; ③大气沉降样品中重金属元素是通过典型酸消解体系和分析方法进行检测分析; ④文献及文献附件中有直接记载或通过计算能够获得研究区大气重金属沉降通量数据.

从符合纳入标准的文献中提取的数据包括:

①发表文章的作者、标题及出版年份;②研究区的类型,根据样点所布设的区域将研究区域分为农业农村区、城市区和工业区;③研究区采样时间(对未明确报道采样时间的文献,以发表时间减去2年为采样时间)、监测时长、采样频率及样点数;④大气重金属沉降通量.对于文献中未明确表示出各重金属元素沉降通量,通过重金属含量和降尘通量计算得到,计算公式如式(1)和式(2)所示:

$$F = C \times D \tag{1}$$

$$F = F_w + F_d \tag{2}$$

式中, F 为干湿沉降通量 [$\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$]; C 为降尘中重金属含量 [$\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$]; D 为降尘通量 [$\text{kg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$]; F_w 为湿沉降通量 [$\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$]; F_d 为干沉降通量 [$\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$]. ⑤研究区所属行政区域,若研究区覆盖多个行政区,将其拆分为多条数据,提取每个行政区的大气重金属沉降通量,则每个行政区为单独研究区.

经过上述文献筛选和数据提取后,建立中国大气重金属沉降通量数据库,所含信息包括文献作者,标题,出版年份,研究区所在省份及市县,采样时间,采样频率,监测时长,样点数,研究区类型及大气 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 沉降通量.数据库中有有效文献 99 篇,共计 208 条大气重金属沉降通

量数据,即 208 个研究区.涵盖 28 个省, 156 个县(区、市)的大气重金属沉降通量数据;文献发表时间跨度为 2001 ~ 2021 年,文献研究的采样时间为 2000 ~ 2018 年.研究区主要集中在人类活动密集区(胡焕庸线右下部,见图 1),且主要分布在长三角(33,研究区数,下同)、珠三角(27)、华北平原(37)、长株潭(22)、东北地区(17)和成渝地区(12),以上 6 个区域占总研究数的 71%,华北平原、长三角和珠三角是我国经济发展最为迅速的地区,而长株潭、成渝地区和东北地区则是矿产资源丰富,工业活动频繁的地区.

1.2 数据分析方法

1.2.1 异常值检验

在矿山、工业聚集地以及电子元器件拆解场等场地内及周边的大气降尘监测往往仅反映局地大气污染物排放的情况,对于区域尺度的大气重金属沉降监测而言属于异常研究区.为保证分析结果的可靠性,避免全国尺度大气重金属沉降通量均值受异常值影响,采用 1.5 倍四分位间距法确定异常值,对数据库中大气重金属沉降通量数据进行异常值检验,剔除无效或异常样本.

$$IQR = Q(3) - Q(1) \tag{3}$$

$$\text{outlier} = \{x \mid x < Q(1) - 1.5 \times IQR, \\ x > Q(3) + 1.5 \times IQR\} \tag{4}$$

式中, $Q(1)$ 为 25% 分位数; $Q(3)$ 为 75% 分位数;

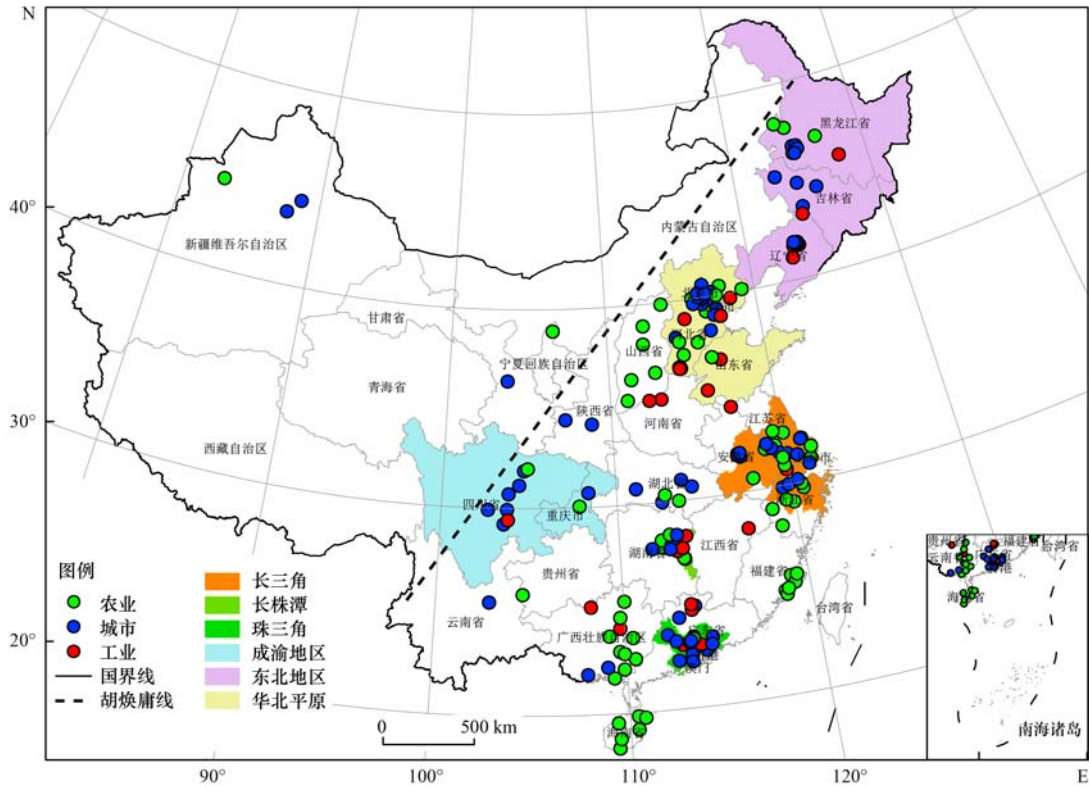


图 1 大气重金属沉降研究区分布

Fig. 1 Spatial distribution of study areas of heavy metals in atmospheric deposition

IQR 为四分位间距; x 为大气重金属沉降通量; outlier 为异常值.

1.2.2 沉降通量计算

大气重金属沉降采样频率大,监测时间成本和经济成本往往较高,以沉降通量时空变化特征分析的文献中监测点数相对稀疏,部分研究甚至仅布设 1~2 监测点^[31, 32]. 为从文献中获取相对大样本量的具有空间代表性和时间连续性的监测数据,增加研究区的空间覆盖度和时间跨度,因此不能采用研究区大气重金属沉降通量的方差作为权重计算依据. 本文综合监测时长、采样周期和样点数等指标作为权重计算的参考值,其研究区样点数越多,监测时长越长其对研究区的大气重金属沉降通量水平代表性则越强,其通量值权重应越大. 因此,权重(W)和加权平均值(F)的计算方法如式(5)和式(6):

$$W_i = T_i \times N_i \tag{5}$$

$$F = \sum_{i=1}^n \left(F_i \times W_i / \sum_{i=1}^n W_i \right) \tag{6}$$

式中, W_i 、 T_i 、 N_i 和 F_i 分别为第 i 个研究区大气重金属沉降通量的权重、监测时长(月)、采样点数和沉降通量 [$\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$]; F 为全国重金属沉降通量 [$\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$].

由于文献发表存在偏好性和选择性,据式(5)计算的研究区权重呈现明显的右偏态分布,说明权重中存在极值现象^[33],会导致全国大气重金属沉降通量加权均值有偏. 为此,采用对数转换方式对研究区重金属沉降通量权重进行处理,进一步消除部分沉降通量极值对总体均值的影响,使其更加符合监测样点多,监测时长越长,所得到的大气重金属沉降

通量的代表性就更大的原则. 加权均值(F)的计算方法如式(7)和式(8):

$$W_i^* = \lg(T_i \times N_i) \tag{7}$$

$$F = \sum_{i=1}^n \left(F_i \times W_i^* / \sum_{i=1}^n W_i^* \right) \tag{8}$$

式中, T_i 、 N_i 和 F_i 与式(5)和式(6)具有相同的含义, W_i^* 为对数化的权重.

2 结果与分析

2.1 重金属沉降通量总体特征

对 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 这 8 种元素大气沉降通量进行探索性分析,计算各元素加权均值,具体统计结果见表 1. 文献样本统计表明, Cd(173) 和 Pb(167) 元素的监测研究相对较高, Hg(95) 和 Ni(100) 元素监测研究相对较少,这与人为活动引起的颗粒物排放中污染物关注度和危害程度有一定关系. As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 的大气沉降通量加权均值分别为 2.97、0.48、11.04、12.77、0.05、6.61、23.37 和 96.75 $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$; 沉降通量范围分别为 0.13~9.14、0.01~1.75、0.14~34.32、0.56~40.04、0.00~0.21、0.19~18.49、0.42~72.35 和 3.40~305.73 $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$; 各元素的变异系数在 68.09%~96.34% 之间,属于中等变异程度. 经 Kolmogorov-Smirnov 双侧显著性检验(显著性水平 = 0.05, K-S 检验)表明,各元素 K-S 检验值 $D > 0$, 双侧显著性 $P < 0.05$, 未通过显著性检验,故不符合正态分布,且各元素的偏态系数 $K > 0.5$, 呈右偏态分布. 各元素大气重金属沉降通量均值大小为: Zn > Pb > Cu > Cr

表 1 中国和其他国家或地区大气重金属沉降通量/ $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$

Table 1 Deposition flux of heavy metals in China and other countries or regions/ $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$

元素	As	Cd	Cr	Cu	Hg	Ni	Pb	Zn	采样年份	文献
文献数/篇	61	84	61	63	44	47	84	67		
研究区数/个	131	173	127	133	95	100	167	145		
样点数	1 642	1 672	1 121	1 185	1 307	718	1 474	1 252		
异常值数	10	19	13	13	11	10	11	9		
最小值	0.13	0.01	0.14	0.56	0.00	0.19	0.42	3.40	2000~2018	本研究
最大值	9.14	1.75	34.32	40.04	0.21	18.49	72.35	305.73		
标准差	2.22	0.40	8.38	8.42	0.05	4.51	17.40	74.15		
变异系数/%	73.32	86.68	80.07	68.09	96.34	71.07	79.32	80.52		
偏度	0.93	1.06	1.18	0.88	1.46	1.12	1.09	1.02		
峰度	0.18	0.50	0.56	0.57	1.49	0.76	0.56	0.24		
K-S 检验(双侧显著性) ¹⁾	0.66	0.50	0.90	0.94	0.50	0.86	0.95	1.00		
加权均值	2.97	0.48	11.04	12.77	0.05	6.61	23.37	96.75		
日本东京湾	2.9	0.39	6.2	16	0.04	6.8	9.9	—	2004~2005	[38]
法国	—	0.009	—	—	0.009	0.362	0.142	2.98	2010~2012	[39]
马萨诸塞州	0.132	0.405	2.7	3.5	—	7.2	2.7	7.8	1992~1993	[40]
西班牙	0.1	0.01	0.9	6.9	—	0.3	0.7	—	2008~2011	[41]
英国	0.31	0.19	0.75	5.7	0.1	1.6	5.4	22.1	1995~1998	[12]
新西兰	—	0.02	2.8	3.5	—	0.95	2.3	103	1999~2001	[42]

1) K-S 检验为 0.05 显著性水平

> Ni > As > Cd > Hg, 与国内外多数研究结果吻合^[34,35], 这个规律可能与地壳中元素含量丰度和工业、交通等人为活动引起的大气污染排放物成分谱有一定关联^[36,37].

从国内外对比来看, 我国大气重金属沉降通量均值远高于 1995 ~ 1998 年英国乡村监测网中大气重金属沉降通量值, 与 2004 年日本东京湾沉降通量接近(表 1). 其中 As 和 Cr 的沉降通量均值是英国的 9 ~ 14 倍, Ni、Pb 和 Zn 的沉降通量均值是英国的 4 倍, Cd 和 Cu 是英国的 2 倍以上, 仅 Hg 的沉降通量均值低于英国. Hg 年沉降通量均值较低可能与我国对大气 Hg 排放的严格控制有关^[43]. 从国内外对比来看, 虽然目前中国大气沉降中的重金属年输入通量普遍高于国外, 但这是由于现阶段中国正处于经济快速发展时期. 20 世纪 70 年代属于瑞典的经济快速发展时期^[44], 其大气 Pb 的年沉降通量为 $15 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 2000 ~ 2018 年属于我国工业经济快

速上升期, 其大气 Pb 的年沉降通量为 $23.37 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$. 由此可见, 大气重金属沉降通量与经济快速发展可能存在一定相关性.

工业、交通、能源和采矿等人类活动是影响研究区内大气重金属沉降通量水平差异的重要因素^[12,45], 按人类活动影响因素的强度将研究区分为农业农村、城市和工业 3 种类型区进行亚组分析. 由图 2 可见, 不同亚组间大气重金属沉降通量均值存在显著差异, 呈现出工业区 > 城市区 > 农业农村区, 城市区均值与总体均值接近. 农业农村区 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 大气沉降通量分别为 1.52 、 0.25 、 8.08 、 6.47 、 0.02 、 3.57 、 12.14 和 $36.59 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 我国农业农村区 Cd 的沉降通量低于 1992 年美国马萨诸塞州 [$0.405 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$], 但仍普遍高于 1995 ~ 1998 年英国乡村地区大气重金属沉降通量均值, 特别是 As 和 Cr 的沉降通量是英国的 4.9 倍和 10.8 倍; 我国城

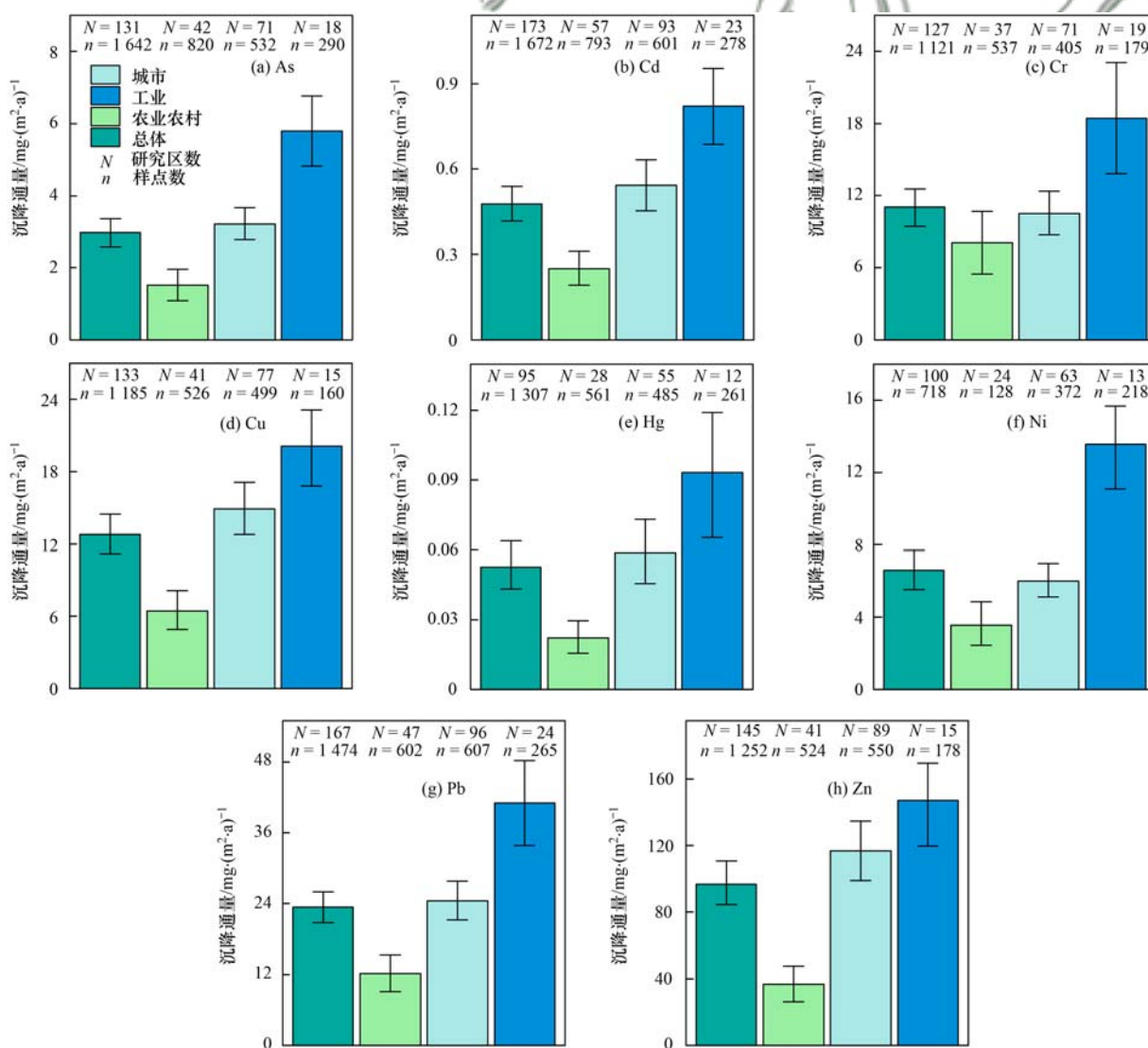


图 2 不同类型区大气重金属沉降通量特征

Fig. 2 Characteristics of deposition fluxes of heavy metals in different types of regions

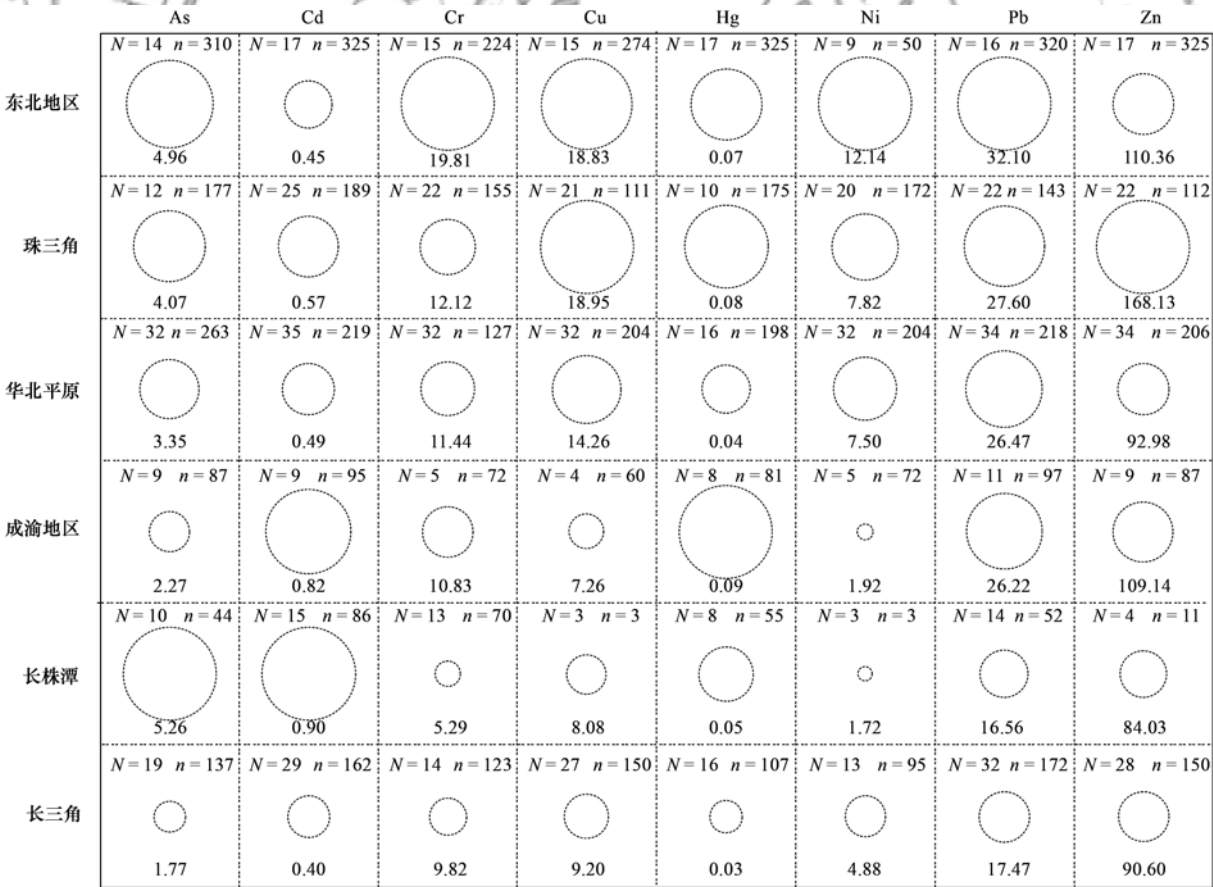
市区大气重金属沉降通量是农业农村区的 1.3 ~ 3.2 倍,其中 As、Cd、Cr、Hg 和 Pb 的沉降通量均值是 2004 年日本东京湾地区的 1.1 ~ 2.5 倍;我国工业区大气重金属沉降通量分别是农业农村区的 2.3 ~ 4.0 倍. 综上研究结果表明,我国大气重金属沉降通量总体上仍与发达国家有较大差距.

2.2 重金属大气沉降通量空间差异性分析

大气重金属沉降通量与人类活动密切相关,由于不同区域间社会经济发展和工业活动水平不同,中国大气重金属沉降通量具有明显的区域异质性. 本文运用 Meta-analysis 亚组分析阐述中国六大区域的重金属沉降通量特征及其差异(图 3). 中国东北地区、珠三角和华北平原总体大气重金属沉降通量较其它区域严重,长三角地区大气重金属沉降通量水平显著低于其它区域. 大气 Cr、Cu、Ni 和 Pb 沉降通量情况呈现出东北地区 > 珠三角 > 华北平原 > 其它 3 个区域; 大气 As 沉降通量呈现出:长株潭 > 东北地区 > 珠三角 > 华北平原 > 成渝地区 > 长三角; 大气 Cd 沉降通量在长株潭 [$0.9 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$] 和成渝地区 [$0.82 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$] 较高,其它 4 个区域空间差异较

小; 大气 Zn 沉降通量在珠三角区域最大为 $168.13 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,显著高于其它区域,且其它区域未有明显的空间差异.

化石燃料燃烧、工业生产和交通运输等人类活动是造成大气中重金属含量增加的主要原因^[46],大气重金属沉降通量与当地经济发展和能源消耗紧密相关^[1,45]. 不同重金属沉降通量也存在显著的空间分异性,东北地区和珠三角 Cr、Cu、Ni 和 Pb 沉降通量较高,而长株潭地区 As 和 Cd 的沉降通量较高. 我国大气重金属沉降通量的空间差异可能与工业结构、气候特征及冬季燃煤有关. 东北地区大气重金属沉降通量总体情况较为严峻,一方面东北地区是我国重要的工业基地,产业结构主要以能源开采和加工等传统重工业为主^[47],能源消耗以煤为主,而燃煤是大气中 As、Cr、Cu、Ni 和 Pb 的主要来源^[37]. 同时,冬季燃煤供暖也是东北地区大气重金属的重要来源,且供暖周期长达 5 ~ 7 个月,每年耗煤约 1.5 亿 t. 其次,东北地区城市样本点较多,采样时间多集中在 2007 ~ 2012 年时间段内,属于经济高速发展时期,这可能也是导致该地区重金属通量均值估算偏高的因素. 珠三角地区大气 Cu 和 Zn 沉降



N 表示研究区数, n 表示样点数, 圆形大小表示沉降通量均值, 数值单位为 $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$

图 3 不同研究区大气重金属沉降通量特征

Fig. 3 Characteristics of deposition fluxes of heavy metals in different study areas

通量显著高于其它地区. 珠三角大气中重金属主要来源是火电行业^[37], 且在能源结构方面煤炭和汽油比例较高^[48], 相对集中的火电厂和工业源排放使得珠三角地区大气颗粒物中 Cu 和 Zn 的浓度显著高于其它地区^[49,50]. 其次, 该区机动车保有量高, 其尾气会排放出大量的 Cu^[51], 也是导致其通量高的一个重要影响因素. 长株潭地区 As 和 Cd 的沉降通量显著高于其他地区, 该地区有色金属矿产资源丰富, 是我国重要的铅锌冶炼、生产加工基地, 据中国统计年鉴数据显示, 2000~2017 年间湖南省铅锌金属的产量共占全国的 21.1%, 而有色金属冶炼是大气 Cd 的主要排放源^[37].

2.3 重金属大气沉降通量变化趋势分析

为探讨大气重金属沉降通量的变化趋势, 对文献数据库按采样时间分组, 计算大气重金属沉降通量 2000~2018 年每年的加权均值. 从文献中提取的所有数据和每年的加权均值如图 4 所示, 其时间变化采用二次多项式回归拟合历年沉降通量均值. 从全国层面来看, 大气 Cr、Cu、Ni 和 Pb 沉降通量呈先升后降趋势, 2008 年前后达到极值; As 和 Cd 历年沉降通量均值在总体均值上下波动; 大气 Hg 和 Zn 沉降通量呈现逐年下降的趋势.

我国不同经济发展阶段及相应的环境保护政策会直接或间接影响大气重金属的时空分布. 由

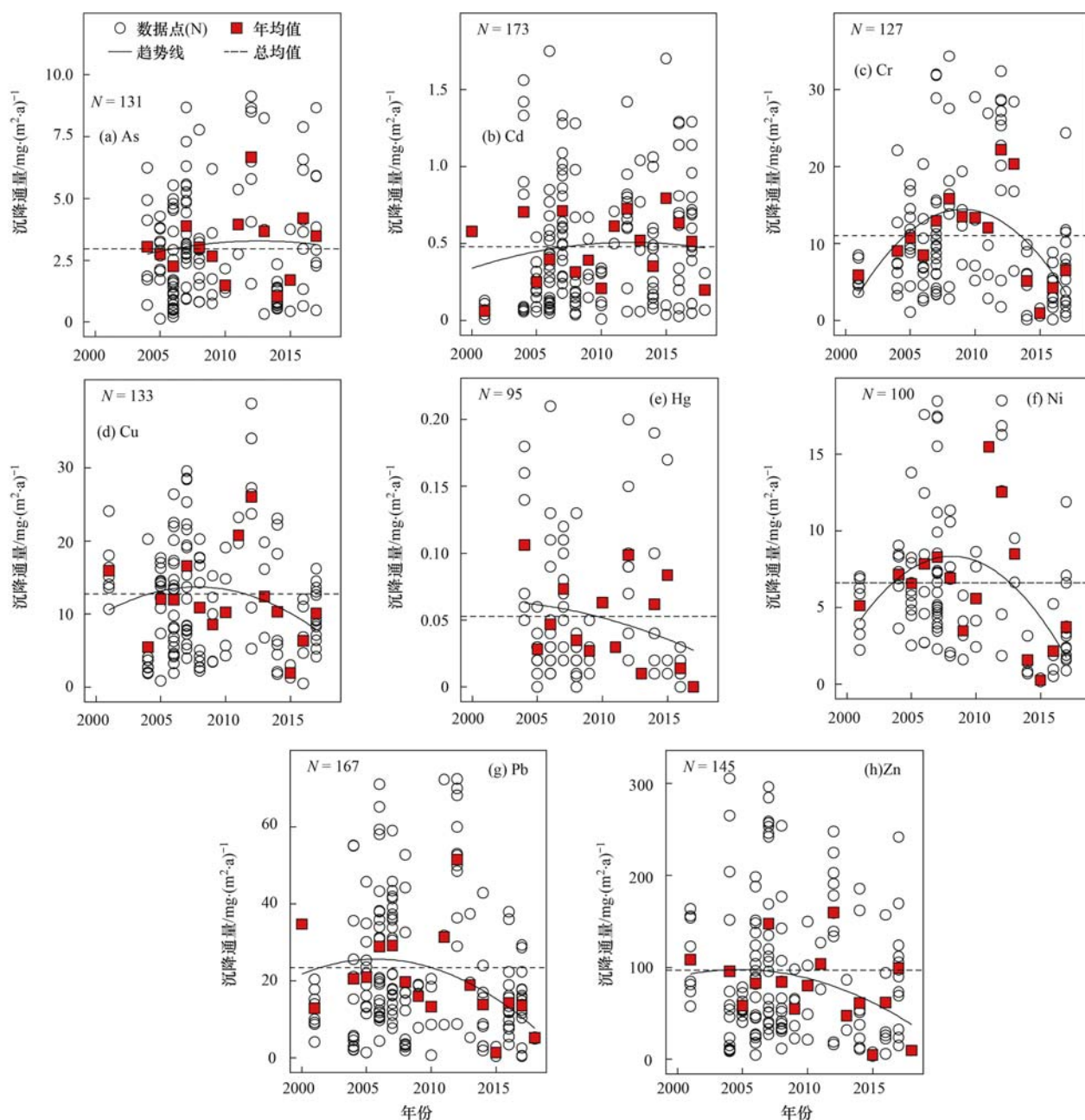


图 4 2000~2018 年重金属大气沉降通量的变化

Fig. 4 Temporal trends of deposition fluxes of heavy metals from 2000 to 2018

于本文收集的文献时间跨度相对较长,结合我国工业发展和城市化进程以及大气污染治理措施和工业排污的提质改造成效分析,将采样时间划分为 2000~2006 年、2007~2012 年和 2013~2018 年这 3 个时间段,对比分析农业农村、城市和工业不同类型区在 3 个时间段大气重金属沉降通量的变化(图 5)。城市型研究区沉降通量离散程度高,大气 Cr、Cu、Ni、Pb 和 Zn 沉降通量均值在 3 个时间段内呈先升后降,而 As 和 Cd 沉降通量在 3 个时间段内呈现以微小幅度上升趋势。工业型研究

区 8 种重金属在 3 个时间段内均呈先升后降,特别是 Hg 从 2007~2012 年的 $0.11 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 下降至 2013~2018 年的 $0.02 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$,下降幅度为 86%,这主要是由于 2010 年以后,中国对各行业大气汞的排放严格控制,针对不同行业分别制定或者更新了对应 Hg 的排放标准。农业农村型研究区大气重金属沉降通量数据离散程度小,数据趋于集中,且数值显著低于城市区和工业区,大气 Cd 的沉降通量均值在 3 个时间段内逐渐增加。

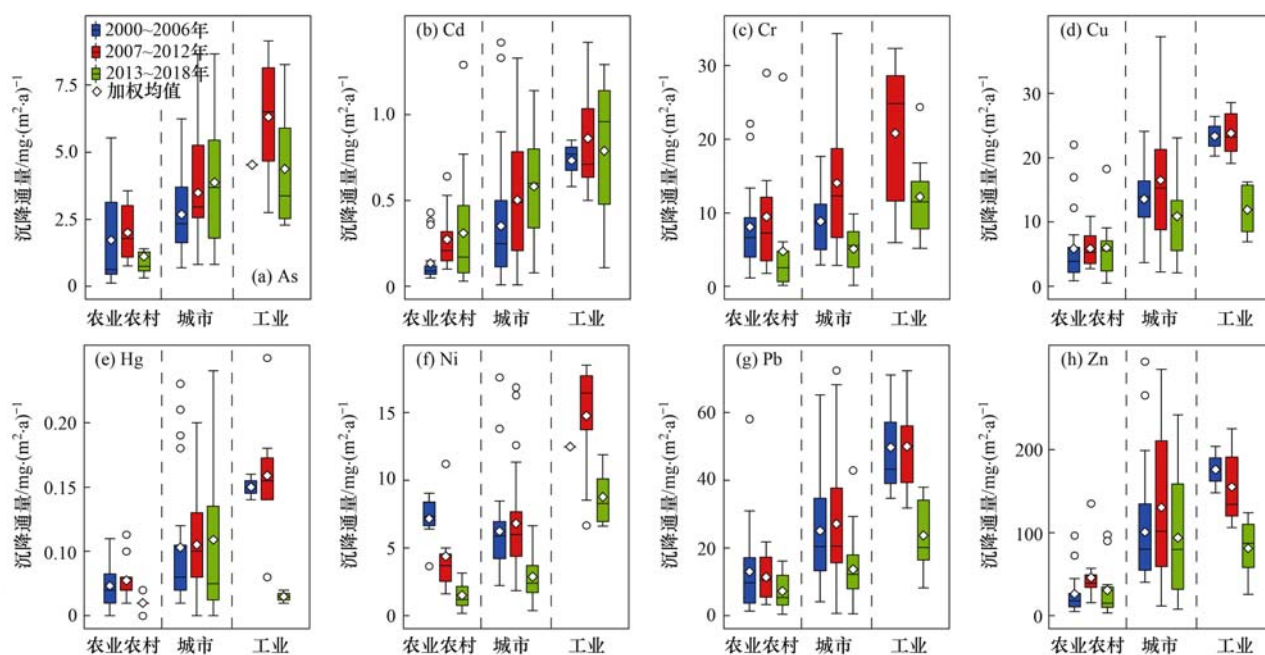


图 5 不同类型区大气重金属沉降通量时间变化趋势

Fig. 5 Temporal trend of deposition fluxes of heavy metals in different types of regions

近年来,随着我国对大气污染防治工作的重视程度不断提高,出台的一系列环境保护和大气污染防治措施已经开始在一定程度上降低了大气中的重金属等污染物排放。2010 年我国出台了更为严格的大气 Hg 排放标准,在废气处理技术提升和污染控制装置进步的双重作用下,全国 Hg 年平均沉降通量由 2006 年 $0.14 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 下降至 2015 年 $0.09 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ [13,26],减少了 35%。高文康等 [52] 的研究发现,《大气污染防治行动计划》(大气十条)实施以来,2013~2014 年期间,京津冀及其周边、长三角、珠三角、成渝和关中地区 $\text{PM}_{2.5}$ 的降幅均超过 10%。大气十条实施后,有研究发现天津地区 Cr、Hg、Pb 和 Zn 沉降量从 2006 年的 0.77、0.11、71 和 $420 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ [53] 分别降至 2014 年的 0.21、0.02、15.58 和 $37.8 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ [54]。我国大气治理工作已初有成效,但 As 和 Cd 大气沉降通量年均值未有明显下降,呈现波动状态,且在城市研究区内呈现出逐渐增加的趋势,在农业农村区大气

Cd 的沉降通量也呈现逐渐增加的趋势。因此,仍需进一步加强我国大气污染防治及环境管理工作的力度,重点关注大气颗粒物排放中 As 和 Cd 的管控,通过制定更为精细的大气污染物排放标准,降低大气重金属的排放总量,保障农产品产地环境安全和农田生态环境系统的可持续发展。

3 讨论

3.1 中国大气重金属沉降通量文献发表偏倚

Meta-analysis 是文献检索、收集和分析的过程,由于文献研究存在发表偏倚性,其统计量的估计值不可避免存在一定偏差 [55]。为避免文献发表偏倚,本文通过多个数据库广泛收集相关文献,以减少单一数据库收录文献不全面的影响,但未涵盖未发表的观测资料,因此存在一定的发表偏倚性。同时,纳入本文研究的文献,多聚焦在经济发达和工业中心区域,这些地区往往人口集中、大气排放污染程度高,广大的西北、西南地区相关研究较少,西藏、青海等省(自治

区)未搜索到相关研究(图 1),文献数据存在一定程度的空间有偏性,在一定程度上会高估我国大气重金属沉降通量. 同一研究区内大气重金属沉降通量数据存在时间断层,研究区监测点数据时间连续性差,导致大气重金属沉降通量仅能反映总体趋势,并不能精确刻画区域通量的时序变化特征.

由于数据中存在异常值,导致数据离散程度变大,采用四分位间距识别异常值,并剔除如株洲工业聚集地^[56]和湖州固废拆解区^[57]大气重金属沉降通

量极高的异常值,降低了标准差,避免异常值对总体结果的影响. 同时,综合考虑大气重金属沉降采样的特性,构建权重计算方法,因此本文各重金属标准差较其他研究相对较小(表 2),可以更加准确和可靠地反映大气重金属沉降通量总体特征. 与其它研究相比,本文按筛选标准确定 99 篇入选文献,获得 208 条数据,文献数、研究区数和样点数高于其它研究,覆盖全国 28 个省,采样时间跨度为 2000 ~ 2018 年,文献来源相对全面,发表偏倚相对较小.

表 2 我国大气重金属沉降通量研究对比/ $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$

Table 2 Comparison of deposition fluxes of heavy metals in China/ $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$

元素	2000 ~ 2018 年(本研究)			2008 ~ 2018 年 ^[27]			2006 ~ 2015 年 ^[26]			1995 ~ 2015 年 ^[28]		
	样点数	加权均值	标准差	样点数	均值	标准差	样点数	均值	标准差	样点数	均值	标准差
As	1 642	2. 97	2. 22	574	3. 39	2. 32	755	3. 37	2. 27	254	2. 54	3. 67
Cd	1 672	0. 48	0. 40	625	0. 59	0. 47	762	0. 41	0. 36	310	0. 37	1. 83
Cr	1 121	11. 04	8. 38	577	22. 32	16. 98	763	16. 14	11. 58	226	10. 38	48. 16
Cu	1 185	12. 77	8. 42	527	16. 23	22. 81	764	11. 56	8. 60	232	10. 99	14. 06
Hg	1 307	0. 05	0. 05	553	0. 07	0. 05	750	0. 09	0. 19	262	0. 07	0. 16
Ni	718	6. 61	4. 51	364	8. 61	11. 43	376	8. 08	9. 89	159	4. 79	12. 85
Pb	1 474	23. 37	17. 40	608	26. 29	17. 65	768	19. 19	13. 89	319	21. 81	63. 34
Zn	1 252	96. 75	74. 15	617	108. 75	95. 49	766	72. 90	90. 61	279	78. 87	304. 82

3.2 大气重金属沉降对土壤环境质量的影响

大气沉降是土壤重金属的重要来源^[45,58],通过大气沉降进入农田土壤中的重金属已经成为部分地区农田土壤重金属的最主要输入方式^[13,59]. 本文假定大气重金属沉降输入均滞留在土壤耕作层(0 ~ 20 cm)中而无任何迁移,以“第一次全国土壤污染状况调查(2005 ~ 2013 年)”的结果为当前土壤重金属质量分数,以土壤环境质量标准(GB 15618-2018)风险筛选值为安全阈值,以大气重金属沉降通量均值作为土壤重金属输入速率,计算仅在大气重金属沉降影响下土壤重金属含量达到安全阈值上限的时间(即安全年限),分析其对农田土壤的潜在风险. 计算公式如式(9):

$$Y_i = M \times (C_{ii} - C_{ib}) / A_i \tag{9}$$

式中, Y_i 为重金属元素(i)的安全年限; M 为每 hm^2 土壤耕作层(0 ~ 20 cm)的质量,取值 $2.25 \times 10^6 \text{ kg} \cdot \text{hm}^{-2}$; C_{ii} 为土壤环境质量标准(pH 6.5 ~ 7.5)

中重金属元素(i)的安全阈值; C_{ib} 为我国土壤中重金属元素(i)的平均含量; A_i 为重金属元素(i)大气沉降通量.

大气沉降对土壤重金属污染的影响计算结果表明(表 3),除 Cd 以外,大气沉降中其它重金属总体上对我国土壤环境质量影响相对较小,安全年限在 250 a 以上. 然而,在农业农村区 Cd 的安全年限仅为 68 a,在城市区和工业区 Cd 的安全年限仅为 31 a 和 21 a,土壤环境质量风险相对较大. 以 2013 ~ 2018 年大气重金属沉降通量为土壤重金属输入速率,农业农村区和城市区的土壤 Cd 安全年限有不同程度缩短,但大气 Cd 沉降通量对土壤环境质量的风险依然较大. 水稻和小麦作为主要粮食作物易对土壤中 Cd 的吸收和富集,大气 Cd 沉降的长期输入易导致农田土壤和农产品污染风险的增加. 因此,亟需对区域污染源排放的颗粒物尤其是可沉降的颗粒物中 Cd 采取积极有效管控措施,制定更精细严

表 3 大气沉降对土壤重金属污染的影响

Table 3 Effects of atmospheric deposition on soil heavy metal pollution

项目	As	Cd	Cr	Cu	Hg	Ni	Pb	Zn
中国土壤重金属均值 ^[60] / $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$	12. 10	0. 23	68. 50	27. 10	0. 09	29. 60	31. 20	79. 00
土壤风险筛选值(pH 6. 5 ~ 7. 5)/ $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$	25. 00	0. 30	200. 00	100. 00	0. 60	100. 00	120. 00	250. 00
农业农村区(2000 ~ 2018 年)安全年限/a	1 910	68	3 662	2 535	5 771	4 437	1 646	1 052
城市区(2000 ~ 2018 年)安全年限/a	905	31	2 808	1 103	1 958	2 635	816	329
工业区(2000 ~ 2018 年)安全年限/a	501	21	1 605	817	1 239	1 168	487	262
农业农村区(2013 ~ 2018 年)安全年限/a	2 597	54	6 206	2 722	11 543	10 518	2 753	1 248
城市区(2013 ~ 2018 年)安全年限/a	748	27	5 797	1 507	1 956	5 505	1 456	410
工业区(2013 ~ 2018 年)安全年限/a	663	21	2 429	1 380	7 695	1 807	843	473

格的大气颗粒物 Cd 排放限量标准,以降低对农田土壤环境质量的影响。

4 结论

(1)中国大气 As、Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 沉降通量分别为 2.97、0.48、11.04、12.77、0.05、6.61、23.37 和 96.75 $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$;现阶段我国各重金属大气沉降通量普遍高于 1995~1998 年英国乡村地区,属于大气重金属沉降通量偏高阶段;不同类型区大气重金属沉降通量存在显著差异,呈现出工业区>城市区>农业农村区。

(2)中国东北地区、珠三角和华北平原大气重金属沉降通量较其它区域严重,长株潭地区 As 和 Cd 的沉降通量较高,长三角地区大气重金属沉降通量低于其它区域,大气沉降通量区域差异性显著,应结合产业结构特点制定分级分类的大气颗粒物排放精准治理和风险管控措施。

(3)中国大气重金属 Cr、Cu、Ni 和 Pb 沉降通量呈先升后降趋势,As 和 Cd 历年沉降通量均值在总体均值附近波动;在 2000~2006 年,2007~2012 年和 2013~2018 年这 3 个时间段内,大气 As 和 Cd 沉降通量在城市区逐渐增加,大气 Cd 沉降通量在农业农村区逐渐增加,农田土壤重金属 Cd 风险不容忽视。

参考文献:

- [1] Tian H Z, Cheng K, Wang Y, *et al.* Temporal and spatial variation characteristics of atmospheric emissions of Cd, Cr, and Pb from coal in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **50**: 157-163.
- [2] Tian H Z, Gao J J, Lu L, *et al.* Temporal trends and spatial variation characteristics of hazardous air pollutant emission inventory from municipal solid waste incineration in China[J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(18): 10364-10371.
- [3] 熊秋林,肖红伟,程朋根,等. 北京表层土壤重金属污染分布及大气沉降贡献[J]. *生态环境学报*, 2021, **30**(4): 816-824.
Xiong Q L, Xiao H W, Cheng P G, *et al.* Pollution distribution of topsoil heavy metals in Beijing and its atmospheric deposition contribution[J]. *Ecology and Environment Sciences*, 2021, **30**(4): 816-824.
- [4] Huang M J, Wang X M, Wang B M, *et al.* Projections of long-term human multimedia exposure to metal(loid)s and the health risks derived from atmospheric deposition: A case study in the Pearl River Delta region, South China [J]. *Environment International*, 2019, **132**, doi: 10.1016/j.envint.2019.105051.
- [5] Ye L M, Huang M J, Zhong B Q, *et al.* Wet and dry deposition fluxes of heavy metals in Pearl River Delta Region (China): Characteristics, ecological risk assessment, and source apportionment[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **70**: 106-123.
- [6] Lei Y, Zhang Q, He K B, *et al.* Primary anthropogenic aerosol emission trends for China, 1990-2005 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(3): 931-954.
- [7] Guo L C, Bao L J, She J W, *et al.* Significance of wet deposition to removal of atmospheric particulate matter and polycyclic aromatic hydrocarbons: A case study in Guangzhou, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **83**: 136-144.
- [8] Liu J K, Zhu L J, Wang H H, *et al.* Dry deposition of particulate matter at an urban forest, wetland and lake surface in Beijing[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **125**: 178-187.
- [9] Zhu J X, Wang Q F, Yu H L, *et al.* Heavy metal deposition through rainfall in Chinese natural terrestrial ecosystems: Evidences from national-scale network monitoring [J]. *Chemosphere*, 2016, **164**: 128-133.
- [10] 胡恭任,戚红璐,于瑞莲,等. 大气降尘中重金属形态分析及生态风险评价[J]. *有色金属*, 2011, **63**(2): 286-291.
Hu G R, Qi H L, Yu R L, *et al.* Speciation analysis of heavy metal in atmospheric dust and ecological risk assessment[J]. *Nonferrous Metals*, 2011, **63**(2): 286-291.
- [11] Marx S K, Kamber B S, McGowan H A. Scavenging of atmospheric trace metal pollutants by mineral dusts: Inter-regional transport of Australian trace metal pollution to New Zealand[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(10): 2460-2478.
- [12] Nicholson F A, Smith S R, Alloway B J, *et al.* An inventory of heavy metals inputs to agricultural soils in England and Wales [J]. *Science of the Total Environment*, 2003, **311**(1-3): 205-219.
- [13] Luo L, Ma Y B, Zhang S Z, *et al.* An inventory of trace element inputs to agricultural soils in China[J]. *Journal of Environmental Management*, 2009, **90**(8): 2524-2530.
- [14] 周荣藻,毕春娟,汪萌,等. 大气沉降对叶菜重金属的污染效应及其健康风险[J]. *华东师范大学学报(自然科学版)*, 2018, (2): 141-150.
Zhou X X, Bi C J, Wang M, *et al.* Pollution effects of atmospheric deposition on heavy metals in leafy vegetables and its health risks [J]. *Journal of East China Normal University (Natural Science)*, 2018, (2): 141-150.
- [15] Conko K M, Rice K C, Kennedy M M. Atmospheric wet deposition of trace elements to a suburban environment, Reston, Virginia, USA[J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**(24): 4025-4033.
- [16] Roy S, Négrel P. A Pb isotope and trace element study of rainwater from the Massif Central (France) [J]. *Science of the Total Environment*, 2001, **277**(1-3): 225-239.
- [17] Takeda K, Marumoto K, Minamikawa T, *et al.* Three-year determination of trace metals and the lead isotope ratio in rain and snow depositions collected in Higashi-Hiroshima, Japan [J]. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**(26): 4525-4535.
- [18] 杨忠芳,侯青叶,余涛,等. 农田生态系统区域生态地球化学评价的示范研究:以成都经济区土壤 Cd 为例[J]. *地学前缘*, 2008, **15**(5): 23-35.
Yang Z F, Hou Q Y, Yu T, *et al.* An example of eco-geochemical assessment for agroecosystems: a study of Cd in Chengdu economic region [J]. *Earth Science Frontiers*, 2008, **15**(5): 23-35.
- [19] Jiang W, Hou Q Y, Yang Z F, *et al.* Annual input fluxes of heavy metals in agricultural soil of Hainan Island, China[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, **21**(13): 7876-7885.
- [20] Hou Q Y, Yang Z F, Ji J F, *et al.* Annual net input fluxes of heavy metals of the agro-ecosystem in the Yangtze River delta,

- China[J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2014, **139**: 68-84.
- [21] Xia X Q, Yang Z F, Cui Y J, *et al.* Soil heavy metal concentrations and their typical input and output fluxes on the southern Song-nen Plain, Heilongjiang Province, China [J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2014, **139**: 85-96.
- [22] 王增辉. 鲁西南平原区大气干湿沉降元素输入通量及来源浅析: 以巨野县为例[J]. *物探与化探*, 2020, **44**(4): 839-846.
- Wang Z H. An analysis of the input flux and source of elements in dry and wet atmospheric deposition of southwest plain of Shandong: a case study of Juye County [J]. *Geophysical and Geochemical Exploration*, 2020, **44**(4): 839-846.
- [23] 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, 80.
- Jiao L, Shen J D, Yao L, *et al.* Pollution characteristics and sources of heavy metals in atmospheric dustfall of Hangzhou[J]. *Environmental Pollution and Control*, 2013, **35**(1): 73-76, 80.
- [24] 栾慧君, 塞古, 徐蕾, 等. 徐州北郊大气降尘重金属污染特征与风险评价[J]. *中国环境科学*, 2020, **40**(11): 4679-4687.
- Luan H J, Sai G, Xu L, *et al.* Characteristics and risk assessment of heavy metals from atmospheric deposition in northern suburban of Xuzhou[J]. *China Environmental Science*, 2020, **40**(11): 4679-4687.
- [25] 张夏, 刘斌, 肖柏林, 等. 重庆主城大气降尘中重金属污染特征及评价[J]. *环境科学*, 2020, **41**(12): 5288-5294.
- Zhang X, Liu B, Xiao B L, *et al.* Pollution characteristics and assessment of heavy metals in atmospheric deposition in core urban areas, Chongqing[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(12): 5288-5294.
- [26] Ni R X, Ma Y B. Current inventory and changes of the input/output balance of trace elements in farmland across China[J]. *PLoS One*, 2018, **13**, doi: 10.1371/journal.pone.0199460.
- [27] Peng H, Chen Y L, Weng L P, *et al.* Comparisons of heavy metal input inventory in agricultural soils in North and South China: A review[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **660**: 776-786.
- [28] 王梦梦, 原梦云, 苏德纯. 我国大气重金属干湿沉降特征及时空变化规律[J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(11): 4085-4096.
- Wang M M, Yuan M Y, Su D C. Characteristics and spatial-temporal variation of heavy metals in atmospheric dry and wet deposition of China[J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(11): 4085-4096.
- [29] Huang Y, Wang L Y, Wang W J, *et al.* Current status of agricultural soil pollution by heavy metals in China: A meta-analysis[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **651**: 3034-3042.
- [30] Shao D W, Zhan Y, Zhou W J, *et al.* Current status and temporal trend of heavy metals in farmland soil of the Yangtze River Delta Region: Field survey and meta-analysis [J]. *Environmental Pollution*, 2016, **219**: 329-336.
- [31] Pan Y P, Liu J, Zhang L, *et al.* Bulk deposition and source apportionment of atmospheric heavy metals and metalloids in agricultural areas of rural Beijing during 2016-2020 [J]. *Atmosphere*, 2021, **12**, doi: 10.3390/atmos12020283.
- [32] Wu Y C, Zhang J P, Ni Z X, *et al.* Atmospheric deposition of trace elements to Daya Bay, South China Sea: Fluxes and sources [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2018, **127**: 672-683.
- [33] Baker R, Jackson D. A new approach to outliers in meta-analysis [J]. *Health Care Management Science*, 2008, **11**(2): 121-131.
- [34] Fernández-Olmo I, Puente M, Montecalvo L, *et al.* Source contribution to the bulk atmospheric deposition of minor and trace elements in a Northern Spanish coastal urban area [J]. *Atmospheric Research*, 2014, **145-146**: 80-91.
- [35] Morselli L, Olivieri P, Brusori B, *et al.* Soluble and insoluble fractions of heavy metals in wet and dry atmospheric depositions in Bologna, Italy[J]. *Environmental Pollution*, 2003, **124**(3): 457-469.
- [36] 魏复盛, 陈静生, 吴燕玉, 等. 中国土壤环境背景值研究[J]. *环境科学*, 1991, **12**(4): 12-19, 94.
- Wei F S, Chen J S, Wu Y Y, *et al.* Study on the background contents on 61 elements of soils in China [J]. *Environmental Science*, 1991, **12**(4): 12-19, 94.
- [37] Tian H Z, Zhu C Y, Gao J J, *et al.* Quantitative assessment of atmospheric emissions of toxic heavy metals from anthropogenic sources in China: historical trend, spatial distribution, uncertainties, and control policies [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(17): 10127-10147.
- [38] Sakata M, Tani Y, Takagi T. Wet and dry deposition fluxes of trace elements in Tokyo Bay [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(23): 5913-5922.
- [39] Connan O, Maro D, Hébert D, *et al.* Wet and dry deposition of particles associated metals (Cd, Pb, Zn, Ni, Hg) in a rural wetland site, Marais Vernier, France [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **67**: 394-403.
- [40] Golomb D, Ryan D, Eby N, *et al.* Atmospheric deposition of toxics onto Massachusetts Bay—I. Metals [J]. *Atmospheric Environment*, 1997, **31**(9): 1349-1359.
- [41] Castillo S, De La Rosa J D, De La Campa A M S, *et al.* Heavy metal deposition fluxes affecting an Atlantic coastal area in the southwest of Spain [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **77**: 509-517.
- [42] Gray C W, McLaren R G, Roberts A H C. Atmospheric accessions of heavy metals to some New Zealand pastoral soils [J]. *Science of the Total Environment*, 2003, **305**(1-3): 105-115.
- [43] 陈敏敏, 王军霞, 张守斌, 等. 中国燃煤电厂汞达标排放分析[J]. *环境污染与防治*, 2016, **38**(2): 106-110.
- Chen M M, Wang J X, Zhang S B, *et al.* Analysis of mercury compliance emission for coal-fired power plants in China [J]. *Environmental Pollution and Control*, 2016, **38**(2): 106-110.
- [44] Renberg I, Brannval M L, Bindler R, 等. 瑞典 4000 年来(公元前 2000 年到公元 2000 年)的大气铅污染史[J]. *AMBIO-人类环境杂志*, 2000, **29**(3): 150-156.
- Renberg I, Brannval M L, Bindler R, *et al.* Atmospheric lead pollution history during four millennia (2000BC to 2000AD) in Sweden [J]. *AMBIO-A Journal of the Human Environment*, 2000, **29**(3): 150-156.
- [45] Pan Y P, Wang Y S. Atmospheric wet and dry deposition of trace elements at ten sites in Northern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14**(14): 20647-20676.
- [46] 郝社锋, 陈素兰, 朱佰万. 城市环境大气降尘重金属研究进展[J]. *地质学刊*, 2012, **36**(4): 418-422.
- Hao S F, Chen S L, Zhu B W. Review on progress of heavy metal elements in atmospheric deposition in urban environment [J]. *Journal of Geology*, 2012, **36**(4): 418-422.

- [47] 刘让群, 牛靖, 姚鹏. 东北地区产业发展的回顾与展望[J]. 区域经济评论, 2021, (3): 143-150.
- Liu R Q, Niu J, Yao P. Retrospect and prospect of industrial development in northeast China[J]. Regional Economic Review, 2021, (3): 143-150.
- [48] 李伟铿, 王雪梅, 张毅强. 珠江三角洲地区工业排放变化对 SO_2 和 NO_x 及其二次污染物浓度的影响[J]. 环境科学研究, 2009, 22(2): 207-214.
- Li W K, Wang X M, Zhang Y Q. Influence of PRD industrial emission variation on concentrations of SO_2 , NO_x and their secondary pollutants[J]. Research of Environmental Sciences, 2009, 22(2): 207-214.
- [49] Hu X, Zhang Y, Ding Z H, *et al.* Bioaccessibility and health risk of arsenic and heavy metals (Cd, Co, Cr, Cu, Ni, Pb, Zn and Mn) in TSP and $\text{PM}_{2.5}$ in Nanjing, China[J]. Atmospheric Environment, 2012, 57: 146-152.
- [50] 张洛红, 范芳, 蒋炜炜, 等. 珠三角地区大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中重金属污染水平及健康风险评价[J]. 环境科学学报, 2017, 37(1): 370-380.
- Zhang L H, Fan F, Jiang W W, *et al.* Concentrations and health risk assessment of heavy metals in atmospheric $\text{PM}_{2.5}$ in the Pearl River Delta Region[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2017, 37(1): 370-380.
- [51] 朱先磊, 张远航, 曾立民, 等. 北京市大气细颗粒物 $\text{PM}_{2.5}$ 的来源研究[J]. 环境科学研究, 2005, 18(5): 1-5.
- Zhu X L, Zhang Y H, Zeng L M, *et al.* Source identification of ambient $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing [J]. Research of Environmental Sciences, 2005, 18(5): 1-5.
- [52] 高文康, 唐贵谦, 吉东生, 等. 2013—2014 年《大气污染防治行动计划》实施效果及对策建议[J]. 环境科学研究, 2016, 29(11): 1567-1574.
- Gao W K, Tang G Q, Ji D S, *et al.* Implementation effects and countermeasures of China's Air Pollution Prevention and Control Action Plan[J]. Research of Environmental Sciences, 2016, 29(11): 1567-1574.
- [53] 侯佳渝, 刘金成, 曹淑萍, 等. 天津市城区大气干湿沉降地球化学研究[J]. 地质调查与研究, 2013, 36(2): 131-135.
- Hou J Y, Liu J C, Cao S P, *et al.* Study on the dry and wet atmospheric deposition in the urban area of Tianjin [J]. Geological Survey and Research, 2013, 36(2): 131-135.
- [54] 王卫星, 曹淑萍, 李攻科, 等. 津北大区干湿沉降重金属元素通量与评价研究[J]. 环境科学与管理, 2017, 42(5): 46-51.
- Wang W X, Cao S P, Li G K, *et al.* Sedimentation flux and its evaluation of dry and wet atmospheric deposition of heavy metal elements in north Tianjin [J]. Environmental Science and Management, 2017, 42(5): 46-51.
- [55] Page M J, Sterne J A C, Higgins J P T, *et al.* Investigating and dealing with publication bias and other reporting biases in meta-analyses of health research: A review [J]. Research Synthesis Methods, 2021, 12(2): 248-259.
- [56] Wang J H, Zhang X, Yang Q, *et al.* Pollution characteristics of atmospheric dustfall and heavy metals in a typical inland heavy industry city in China[J]. Journal of Environmental Sciences, 2018, 71: 283-291.
- [57] 黄春雷, 宋金秋, 潘卫丰. 浙东沿海某地区大气干湿沉降对土壤重金属元素含量的影响[J]. 地质通报, 2011, 30(9): 1434-1441.
- Huang C L, Song J Q, Pan W F. Impact of dry and wet atmospheric deposition on content of heavy metals in soils along coastal areas of eastern Zhejiang Province [J]. Geological Bulletin of China, 2011, 30(9): 1434-1441.
- [58] Hu W Y, Wang H F, Dong L R, *et al.* Source identification of heavy metals in Peri-Urban agricultural soils of southeast China: An integrated approach [J]. Environmental Pollution, 2018, 237: 650-661.
- [59] Shi T R, Ma J, Wu X, *et al.* Inventories of heavy metal inputs and outputs to and from agricultural soils: A review [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2018, 164: 118-124.
- [60] Chen H Y, Teng Y G, Lu S J, *et al.* Contamination features and health risk of soil heavy metals in China[J]. Science of the Total Environment, 2015, 512-513: 143-153.

CONTENTS

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