

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第12期

Vol.37 No.12

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次(卷终)

基于数值计算的细颗粒物采样管路传输损失评估	罗李娜,程真,朱雯斐,张强,楼晟荣,乔利平,晏乃强(4457)
南京北郊重金属气溶胶粒子来源分析	秦鑫,张泽锋,李艳伟,沈艳,赵姝慧(4467)
南京青奥会期间不同天气条件下大气气溶胶中水溶性离子的分布特征	师远哲,安俊琳,王红磊,邹嘉南,王俊秀(4475)
苏州市 PM _{2.5} 中水溶性离子的季节变化及来源分析	王念飞,陈阳,郝庆菊,王欢博,杨复沐,赵晴,薄宇,贺克斌,姚玉刚(4482)
成都西南郊区春季 PM _{2.5} 中元素特征及重金属潜在生态风险评价	杨怀金,杨德容,叶芝祥,张恒德,马学款,汤志亚,毛冬艳(4490)
泉州市大气降尘中稀土元素地球化学特征及来源解析	张棕巍,于瑞莲,胡恭任,胡起超,王晓明(4504)
青奥会期间基于 $\delta^{13}\text{C}$ 观测的大气 CO ₂ 来源解析	徐家平,李旭辉,肖薇,次仁旺姆,温学发,刘寿东,杜雪婷,曹畅(4514)
民航飞机起飞过程气态污染物排放特征分析	韩博,黄佳敏,魏志强(4524)
畜禽养殖场空气中可培养抗生素耐药菌污染特点研究	张兰河,贺雨伟,陈默,高敏,仇天雷,王旭明(4531)
有序介孔材料过滤脱除纳米颗粒物	邢奕,王骥,路培,李子宜,刘应书,于晗(4538)
基于 DOC + CDPF 技术的公交车燃用生物柴油气态物道路排放特性	楼狄明,张允华,谭丕强,胡志远(4545)
亚热带浅水池塘水-气界面甲烷通量特征	龙丽,肖尚斌,张成,张文丽,谢恒,李迎晨,雷丹,穆晓辉,张军伟(4552)
浙江汤浦水库浮游植物季节演替及其影响因子分析	马沛明,施练东,张俊芳,胡菊香,赵先富(4560)
太湖典型沉水植物生理指标对水质的响应	高敏,胡维平,邓建才,胡春华(4570)
利用 UV-vis 及 EEMs 对比冬季完全混合下两个不同特征水库溶解性有机物的光学特性	黄廷林,方开凯,张春华,周石磊,曾明正,龙圣海,李扬,夏超,从海兵(4577)
三峡前置库汉丰湖试运行年水体水质现状及控制效果评估	杨兵,何丙辉,王德宝(4586)
太湖贡湖湾水域抗生素污染特征分析与生态风险评价	武旭跃,邹华,朱荣,王靖国(4596)
滇池不同湖区沉积物正构烷烃的分布特征及其环境意义	余丽燕,韩秀秀,黄晓虎,吴亚林,杨浩,黄涛,余艳红,黄昌春(4605)
洱海入湖河口湿地干湿季沉积物氮、磷、有机质垂向分布特征及污染风险差异性	王书锦,刘云根,王妍,侯磊,张超(4615)
蠡湖表层沉积物氮矿化过程及其赋存形态变化	赵丽,王书航,姜霞,黄晓峰,陈俊伊(4626)
三峡库区表层沉积物重金属含量时空变化特征及潜在生态风险变化趋势研究	卓海华,孙志伟,谭凌智,吴云丽,兰静(4633)
模拟巢湖流域氯菊酯的迁移转化和生态风险	刘亚莉,王继忠,彭书传,陈天虎(4644)
有机质胶体对卡马西平在多孔介质中迁移影响模拟实验	张思,何江涛,朱晓婧(4651)
无机型城市景观水体表观污染的悬浮颗粒物粒度分布特征:以中国运河苏州段为例	李倩倩,潘杨,贡丹燕,黄勇,夏侯刚(4662)
清水江流域岩石风化特征及其碳汇效应	吕婕梅,安艳玲,吴起鑫,吴永贵(4671)
南方典型农田区浅层地下水污染特征	郭卉,虞敏达,何小松,罗岳平(4680)
水化学和环境同位素在示踪枣庄市南部地下水硫酸盐污染源中的应用	马燕华,苏春利,刘伟江,朱亚鹏,李俊霞(4690)
粗放型绿色屋顶对多环芳烃的控制效果	沈庆然,侯娟,李田(4700)
超滤的预处理工艺对比研究:化学混凝与电絮凝	赵凯,杨春风,孙境求,李静,胡承志(4706)
QCM-D 与 AFM 联用解析 EfOM 在 SiO ₂ 改性 PVDF 超滤膜表面的吸附机制	姜家良,王磊,黄丹曦,黄松,朱振亚,徐亚伟,李青青(4712)
群体感应淬灭菌的分离及其膜污染控制性能	赵畅,王文昭,徐期勇(4720)
水力负荷对生物沉淀池污染物净化性能的影响特性	王文东,马翠,刘荟,范银萍,刘国旗,张珂(4727)
外加微量 N ₂ H ₄ 下 SBR 中硝化微生物特性	肖凡颖,张代钧,卢培利(4734)
部分半硝化 AGS-SBR 工艺的启动及其种群结构分析	鲁航,信欣,管蕾,邹长武,余静(4741)
典型油田多环芳烃污染对土壤反硝化微生物群落结构的影响	姚炎红,王明霞,左小虎,李振轮,罗锋,周志峰(4750)
生物强化膜生物反应器(MBR)处理邻苯二甲酸二乙酯(DEP)效果及微生物群落结构分析	张可,关允,罗鸿兵,陈伟,陈佳,陈强(4760)
开闭路条件下沉积物微生物燃料电池阳极细菌群落差异解析	吴义诚,邓全鑫,王泽杰,郑越,李岱霖,赵峰(4768)
全氟辛酸(PFOA)厌氧生物可降解性	李飞,陈轶丹,周真明,廖晓斌,马红芳,苑宝玲(4773)
水肥用量对玉米季土壤 CO ₂ 排放的综合影响	杨硕欢,张保成,王丽,胡田田(4780)
福建西部山地水土流失区土壤呼吸的空间异质性	姚雄,余坤勇,曾琪,杨玉洁,张今朝,刘健(4789)
基于不确定性分析的土壤-水稻系统镉污染综合风险评估	杨阳,陈卫平,李艳玲,王美娥,彭驰(4800)
北京市不同地区土壤中的球囊霉素荧光特征及其与土壤理化性质的关系	柴立伟,刘梦娇,蒋大林,樊灏,曹晓峰,黄艺(4806)
准东煤炭产业区周边土壤重金属污染与健康风险的空间分布特征	刘芳,塔西甫拉提·特依拜,依力亚斯江·努尔麦麦提,王楠,杨春,夏楠,高宇潇(4815)
河北平原潮土中微生物对氮降解特征	张灿灿,庞会从,高太忠,张静,李晓玉,付胜霞(4830)
砷-非对蜈蚣草根不同碳基团的影响	廖晓勇,龚雪刚,阎秀兰,马旭,吴泽赢(4841)
碱性固体对污泥的调质堆肥影响及产品对土壤的改良潜力	蔡函臻,宁西翠,王权,张增强,任秀娜,李荣华,王美净, Mukesh Kumar Awasthi(4848)
不同热解及来源生物炭对西北黄土吸附敌草隆的影响	孙航,蒋煜峰,石磊平,慕仲峰,展惠英(4857)
南丹矿业活动影响区人群头发中重金属含量特征	田美玲,钟雪梅,夏德尚,伏凤艳,陆素芬,李黎,宋波(4867)
Mg-Al-Me (Me = La, Ce, Zr) 复合氧化物制备及其除氟性能	汪爱河,周康根,刘行,陈泉州,刘芳(4874)
铁锰复合氧化物/壳聚糖珠:一种环境友好型除磷吸附剂	付军,范芳,李海宁,张高生(4882)
不同粒径垃圾焚烧飞灰重金属毒性浸出及生物可给性	王春峰,陈冠飞,朱艳臣,姚丹,皇晓晨,王连军(4891)
《环境科学》第37卷(2016年)总目录	(4899)
《环境科学》征稿简则(4466) 《环境科学》征订启事(4699) 信息(4489,4881)	

泉州市大气降尘中稀土元素地球化学特征及来源解析

张棕巍¹, 于瑞莲¹, 胡恭任^{1*}, 胡起超¹, 王晓明²

(1. 华侨大学化工学院环境科学与工程系, 厦门 361021; 2. 核工业北京地质研究院分析测试研究中心, 北京 100029)

摘要: 稀土元素因其特殊的地球化学特性, 具有一定的示踪性质. 为了研究泉州市大气降尘中稀土元素地球化学特征及其来源, 在泉州市不同功能区以及潜在源区共采集降尘样品 34 份, 对 REE 组成特征、配分模式、特征参数进行了分析并结合三角图和特征参数关系图解揭示了其来源. 结果表明, 泉州市大气降尘的 $\sum$ REE 空间分布差异较大, 由高到低顺序为工业区 > 交通繁忙区 > 商业区 > 居住区 > 农业区. 居住区、交通繁忙区、商业区的 $\sum$ REE 变异系数均较小, 显示其来源的一致性. 降尘和潜在源样品中稀土元素的配分曲线均为右倾, 轻稀土相对重稀土富集, 具有明显的 Eu 负异常, 表明研究区大气降尘具有较明显的陆源属性. 各功能区降尘与潜在源的部分 REE 特征参数平均值较接近, 未能揭示空间差异的成因. LaCeV 三角图解表明居住区、交通繁忙区、商业区降尘中 REE 主要受交通源和土壤尘的影响, 其次为燃煤源. δEu - $\sum$ REE 和 $\text{HREE}_N/\text{MREE}_N$ - La_N 关系图解进一步说明汽车尾气排放是交通繁忙区和商业区降尘中 REE 的主要来源. 所有功能区的稀土元素受钢铁厂排放物和水泥尘的影响较小, 且农业区和工业区的稀土来源与其他功能区存在差异.

关键词: 大气降尘; 稀土元素; 地球化学特征; 来源分析; 泉州

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)12-4504-10 DOI: 10.13227/j.hjks.201604150

Geochemical Characteristics and Source Apportionment of Rare Earth Elements in the Dustfall of Quanzhou City

ZHANG Zong-wei¹, YU Rui-lian¹, HU Gong-ren^{1*}, HU Qi-chao¹, WANG Xiao-ming²

(1. Department of Environmental Science and Engineering, College of Chemical Engineering, Huaqiao University, Xiamen 361021, China; 2. Center of Analysis, Beijing Research Institute of Uranium Geology, Beijing 100029, China)

Abstract: Rare earth elements (REE) have certain properties as tracing elements which result in their special geochemical characteristics. In order to study the geochemical characteristics of REE in the dustfall and their sources, 34 dustfall samples were collected in five functional areas and potential source areas of Quanzhou City, then REE compositions, distribution patterns and characteristic parameters were analyzed together with ternary diagrams and characteristic parameter diagrams, for investigating the main provenance. The results showed that $\sum$ REE in the dustfall presented significant spatial difference with the sequence of industrial area > heavy traffic area > commercial area > residential area > agricultural area. The lower coefficient variation of $\sum$ REE in residential, heavy traffic, commercial areas indicated homogeneous sources of REE. The chondrite-normalized REE patterns were all of the rightward inclined type with the enrichment of LREE relative to HREE and showed obvious negative Eu anomalies which indicated that the dustfall in study area had obvious terrigenous property. Some REE characteristic parameters in each functional area were close to the average in potential source areas, failed to reveal the causes for spatial differences. The results of LaCeV diagram demonstrated that REE in the dustfall of residential area, heavy traffic area and commercial area were mainly derived from traffic source and soil dust, followed by coal combustion, δEu vs. $\sum$ REEs diagram and $\text{HREE}_N/\text{MREE}_N$ vs. La_N diagram further explained that vehicle emission was the main anthropogenic source of REE in the dustfall of heavy traffic area and commercial area. The REE in the dustfall of Quanzhou City was less affected by steelworks emissions and cement plant dust and there were additional REE sources in the dustfall of industrial and agricultural area different from other functional areas.

Key words: dustfall; rare earth elements; geochemical characteristics; source apportionment; Quanzhou City

大气降尘是大气污染监测的重要指标^[1]. 我国城市空气污染特征由二氧化硫、氮氧化物类污染逐渐趋向尘类污染, 降尘携带的污染物化学成分复杂, 在沉降后会对土壤、植物、水体等造成二次污染, 危害人体健康^[2].

目前国内外学者主要研究了降尘中重金属的污染评价以及基于富集因子法、多元统计分析、Pb 同

位素示踪法的来源解析^[3~6], 对降尘中稀土元素地球化学特征及来源研究相对缺乏, 稀土元素 (REE)

收稿日期: 2016-04-19; 修订日期: 2016-07-27

基金项目: 国家自然科学基金项目 (21377042, 21477042); 福建省自然科学基金项目 (2016J01065); 华侨大学 2014 级研究生科研创新能力培育项目 (435)

作者简介: 张棕巍 (1992 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为环境监测与评价, E-mail: 17750669760@163.com

* 通讯联系人, E-mail: grhu@hqu.edu.cn

作为一组具有特殊地球化学性质的元素,其组成和分布模式不会被风化作用、运输过程、沉积和成岩作用所影响,在环境过程中较少产生明显的化学分离^[7,8],利用降尘中稀土元素的含量、配分模式和一些重要的稀土元素参数可确定降尘的来源。以往研究普遍利用稀土元素关系图解追踪干旱、半干旱地区沙尘沉降物来源,Xie 等^[9]通过 $\delta\text{Eu}-\sum\text{REEs}$ 、 $\delta\text{Eu}-(\text{LREE}/\text{HREE})$ 和 $(\text{LREE}/\text{HREE})-\text{La}_N$ 关系图判断出哈尔滨沙尘天气的物质起源于科尔沁沙地;Yang 等^[10]结合 $\text{La}_N/\text{Sm}_N-\text{Gd}_N/\text{Yb}_N$ 、 $\text{La}_N/\text{Yb}_N-\text{La}_N$ 和 $\text{HREE}_N/\text{LREE}_N-\text{MREE}_N/\text{MREE}_N^*$ 关系分析出当地表层土壤是北京以及周边地区降尘的主要来源。也有学者探讨了特定条件下城市大气降尘中稀土元素的浓度及富集程度^[11~13],但针对正常天气下城市大气降尘来源解析的研究甚少。稀土元素三角图解法早期被广泛应用于矿物岩石的地球化学特征研究,近年来在识别冶炼、石化、钢铁等工业源以及交通源方面具有很大优势,其研究对象大多为可吸入颗粒物^[14~16],针对大气降尘的较少。Moreno 等^[17~19]分析了墨西哥城市可吸入颗粒物中稀土元素地球化学特征,并用 LaCeSm 、 LaCeV 三角图解识别了使用液态催化转化器的冶炼工业污染源及以 Ce 为汽车尾气处理催化剂的交通源对可吸入大气颗粒物中稀土元素的贡献。Bozlaker 等^[20]和 Celo 等^[21]先后利用 LaCeV 和 RhPdPt 三角图解来判断船舶尾气及汽车尾气对大气颗粒物中稀土元素的贡献。

泉州市地处闽东南沿海中部,是海峡西岸经济繁荣带和厦漳泉经济开发带的重要组成部分,经济的快速发展,煤、燃油、天然气的消耗量不断增加。汽车保有量的激增,使得机动车尾气排放数量增加,泉州地区的空气污染不容忽视。国内外尚未有针对泉州大气降尘中稀土元素的研究,因此本文以泉州市大气降尘为研究对象,拟通过 5 个功能区降尘中稀土元素(除 Y 、 Pm 、 Sc 以外的 14 种 REE)的地球化学特征分析,判别降尘中稀土元素主要来源,以期对泉州市大气污染防治提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 大气降尘样品采集和预处理

在天气保持晴朗干燥至少 3d 后,选择晴朗无大风的天气,在泉州市 5 个功能区共设置 24 个采样点(图 1):交通繁忙区(J2、J3、J9、J15、J3-1、J16),居住区(J1、J7、J13、J52、J53),商业区(J4、J8、

J10、J11、J12、J14),工业区(J231、J232、J233、J17、J18),农业区(J38、J39),每个采样点收集一个样品。对每个采样点,在高度为 1.5~2.0 m 的一定范围内用毛刷扫集玻璃、无油漆脱落的木质及塑料物件表面上的降尘于洁净信封中。所采集的样品在 35℃ 烘干,过 150 目尼龙筛,筛下样装入洁净自封袋保存备用。

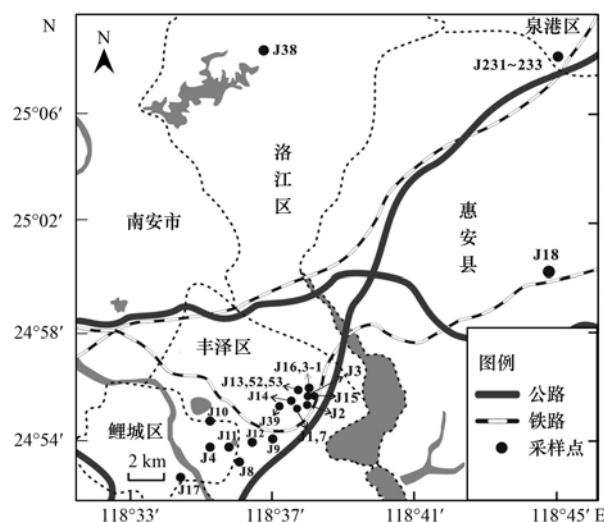


图 1 泉州市大气降尘采样点分布示意

Fig. 1 Schematic graph of sampling points of dustfall in Quanzhou City

1.2 潜在源样品采集

详细调查泉州市交通、工业、建筑等分布状况,结合产业布局、能源消耗等可能存在的潜在稀土元素污染源,采集汽车尾气尘、燃煤热电厂飞灰、水泥厂飞灰、钢铁厂烧结飞灰共 5 种潜在污染源降尘样品,每种潜在污染源布设 2 个采样点。汽车尾气尘(TnP 、 TD)选择大气降尘采样期间晴天静风时间,选取在市区交通流量大的平山隧道以及东海隧道路边收集样品,采样过程中用毛刷扫集隧道两边台阶上的降尘于自封袋中。燃煤热电厂飞灰[$\text{TF}(\text{A})$ 、 $\text{TF}(\text{T})$]、水泥厂飞灰(CC 、 CCF)、钢铁厂烧结飞灰(SSF 、 SFF)采样考虑主导风向,分别在泉州石狮燃煤热电厂、安溪县湖头水泥厂以及钢铁厂的下风地段,采集周围高度为 1.5~2.0 m 建筑物上部的浮尘;同时根据城市建成区及周边 10 km 范围内土壤类型的分布布点,采集两个土壤尘样品(P74-1 、 P74-2)作为自然源。以上潜在源样品均满足分析量及保存备用量要求。

1.3 样品的分析测定

降尘与潜在源样品均用 $\text{HCl}-\text{HNO}_3-\text{HF}-\text{H}_2\text{O}_2$ 微波消解,用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS,

Perkin Elmer ELAN DRC-e)测定稀土元素(La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu)的含量. 分析过程中用土壤标样 ESS-3 进行质

量控制,测定结果与标准给定值的误差在允许范围内,各元素测定相对偏差小于5%,各元素检出限见表1.

表1 稀土元素检出限/ng·mL⁻¹
Table 1 Detection limit of REE/ng·mL⁻¹

La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
0.001 7	0.007 2	0.000 9	0.002 8	0.001 1	0.000 5	0.001 3	0.000 3	0.000 9	0.000 3	0.000 8	0.000 1	0.000 8	0.000 1

2 结果与讨论

2.1 降尘中 REE 组成特征

表2列出了泉州市大气降尘与潜在源中各稀土元素含量、轻稀土总量($\sum$ LREE)、重稀土总量($\sum$ HREE)及稀土总量($\sum$ REE). 交通繁忙区、居住区、商业区、工业区和农业区的 $\sum$ REE平均值分别为209.4、140.1、171.7、333.8和119.9 mg·kg⁻¹. 结合稀土元素箱线图(图2)可以看出,所有功能区降尘中 $\sum$ LREE远高于 $\sum$ HREE,且 $\sum$ LREE、 $\sum$ HREE与 $\sum$ REE均呈现出一致的规律:工业区>交通繁忙区>商业区>居住区>农业区. 工业区5个样品分别采集于泉港区冶炼厂、清濛工业区以及惠安城南中心工业区,涉及的产业主要有金属冶炼、纺织鞋服、生物医药、机电电子、五金汽配、包装印刷等. 已有研究报道稀土材料在医学领域^[22]、纺织加工领域^[23]、化学工业、冶金工业、光电工业^[24]等普遍应用,工业区 $\sum$ REE最高,可能与以上相关工业排放有关. 此外我国在汽车催化剂稀土消耗量也不断增多^[25],La和Ce常分别用于提高燃油尾气净化催化剂的耐热和抗毒性能^[26],随着泉州汽车保有量的激增,汽车尾气净化催化剂中的稀土用量不断增多,导致交通繁忙区呈现较高的 $\sum$ REE.

各功能区大气降尘中稀土元素顺序:Ce>La>Nd>Pr>Sm、Gd>Dy>Er>Yb>Eu>Ho>Tb>Tm、Lu,与稀土元素在上地壳中丰度的排序大体一致,符合自然界元素分布的偶数规则(奥多-哈尔金斯定律),说明降尘中稀土元素含量分布受元素的地壳丰度控制,土壤扬尘是其来源之一. 图2显示居住区、交通繁忙区、商业区的大气降尘中各稀土元素数值范围变化较小,同时 $\sum$ REE变异系数均较小(分别为1.89%、8.02%、10.15%),表明此3个功能区的降尘REE来源相对稳定. 农业区和工

业区的 $\sum$ REE变异系数较大,这两区各自采样点分布在泉州不同的行政区,较为离散,降尘中REE来源相对多样化. 农业区降尘样品分别收集于泉州市丰泽区新埔街西畴农场和洛江区马甲镇蔬菜园,其 $\sum$ REE值比其他功能区要小得多,且远远低于泉州土壤尘 $\sum$ REE平均值(224.6 mg·kg⁻¹),随着稀土化肥的广泛施用,农用稀土很可能是影响农业区降尘中REE的主要因素^[27]. 导致工业区 $\sum$ REE差异较大的原因可能是由于稀土材料已应用于不同类型工业生产,并且所排放的稀土粒子种类数量因工业类型而异^[28]. 通过对比大气降尘和潜在源中稀土元素数据,发现水泥厂飞灰、钢铁厂烧结飞灰中的 $\sum$ REE及 $\sum$ LREE、 $\sum$ HREE远低于大气降尘样品中的相应值,初步推断泉州市大气降尘稀土元素受钢铁厂排放物及水泥尘影响不大.

2.2 REE 配分模式

一般来说,球粒陨石作为地球的原始物质不存在LREE和HREE之间的分异,以其为标准进行标准化能够反映样品相对地球原始物质的分异程度,揭示源区特征^[29]. 为探究不同功能区大气降尘中稀土元素特征差异以及与潜在源的关系,依据Leedy球粒陨石中稀土元素的丰度,将大气降尘及潜在源的稀土元素数据进行球粒陨石归一化^[30],绘制增田-科里尔图,得其配分模式见图3. 整体上所有配分曲线均为右倾,La-Eu部分较陡而Eu-Lu部分相对较缓,LREE相对HREE富集,具有明显的Eu负异常. 所有降尘及潜在源富集轻稀土以及Eu负亏损的地球化学特征与大陆上地壳及世界黄土的稀土元素地球化学特征基本一致^[31]. 已有研究表明,稀土元素配分模式的几何形态具有重要的指示意义^[32]. 交通繁忙区、商业区、居住区大气降尘在稀土元素配分模式上具有较好的一致性,显示其共同的来源属性. 工业区和农业区配分曲线与其他曲线对比差异较大,其来源与其他功能区存在差异.

表 2 泉州市不同功能区大气降尘和潜在源样品中稀土元素含量/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$

Table 2 REE contents in the dustfall from different functional areas and potential sources in Quanzhou City/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$

位置	样号	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy
交通繁忙区	J2	46.54	85.87	7.413	28.66	4.693	0.956 2	5.244	0.504 8	3.879
	J3	47.07	86.66	8.064	28.50	4.741	0.942 7	5.198	0.522 7	3.573
	J9	56.10	111.1	9.446	33.85	5.330	1.086	5.880	0.555 2	3.878
	J15	50.27	92.30	8.752	32.56	5.379	1.144	5.726	0.605 4	3.988
	J3-1	55.02	91.71	9.560	33.08	5.490	1.065	6.012	0.587 2	4.052
	J16	52.01	96.45	9.660	34.73	5.242	1.103	5.773	0.569 0	4.012
	平均值	51.17	94.01	8.816	31.90	5.146	1.049	5.639	0.557 4	3.897
居住区	J1	34.29	61.91	6.504	21.68	3.516	0.832 6	3.998	0.397 2	2.837
	J7	33.43	61.81	6.599	20.47	3.605	0.757 4	3.834	0.367 2	2.698
	J13	35.37	60.60	6.816	21.53	3.390	0.793 5	4.008	0.374 5	2.696
	J52	36.38	65.83	5.836	20.12	3.836	0.740 0	3.214	0.496 0	2.954
	J53	30.20	60.23	6.502	22.32	4.168	0.898 0	3.448	0.570 0	3.320
	平均值	33.94	62.08	6.451	21.22	3.703	0.804 3	3.700	0.441 0	2.901
商业区	J4	35.72	67.10	6.567	21.95	3.679	0.937 4	4.450	0.406 7	2.942
	J8	47.56	86.76	7.754	28.73	4.624	0.946 9	4.981	0.508 7	3.774
	J10	43.99	80.56	6.567	23.44	3.662	0.961 6	4.090	0.566 2	2.984
	J11	47.76	89.16	7.400	26.87	4.385	0.945 8	4.989	0.508 2	3.612
	J12	38.87	71.91	6.920	23.67	3.660	0.795 8	4.225	0.442 1	3.405
	J14	38.90	71.70	7.598	26.75	4.292	0.905 0	4.719	0.459 7	3.548
	平均值	42.13	77.86	7.134	25.23	4.050	0.915 4	4.576	0.481 9	3.377
工业区	J231	109.3	205.6	13.37	44.72	8.706	1.816	7.266	1.096	6.414
	J232	65.06	107.3	7.794	23.30	4.566	0.902 0	4.030	0.578 0	3.376
	J233	158.3	246.6	16.93	35.54	6.954	1.292	6.170	0.706 0	3.936
	J17	73.27	126.6	13.83	49.90	7.265	1.066	8.724	0.789 0	3.269
	J18	64.94	118.3	12.32	44.91	7.288	1.198	8.232	0.859 0	3.606
	平均值	94.16	160.8	12.85	39.67	6.956	1.255	6.884	0.805 6	4.120
农业区	J38	25.14	47.47	5.062	17.30	2.916	0.456 0	2.384	0.370 0	2.192
	J39	31.44	58.45	6.310	22.38	3.694	1.104	3.272	0.460 0	2.616
	平均值	28.29	52.96	5.686	19.84	3.305	0.780 0	2.828	0.415 0	2.404
降尘样品总均值		52.37	93.82	8.482	28.62	4.795	0.985 2	4.995	0.554 1	3.4816
汽车尾气尘	TnP	45.60	89.10	9.330	33.90	5.830	1.020	4.980	0.906 0	3.840
	TD	43.90	84.00	9.300	35.10	6.130	1.170	5.060	1.060	4.370
	平均值	44.75	86.55	9.315	34.50	5.980	1.095	5.020	0.983 0	4.105
燃煤发电厂飞灰	TF(A)	34.40	65.50	8.050	33.00	6.990	1.420	6.140	1.370	7.040
	TF(T)	46.50	76.50	10.40	41.50	7.950	1.400	6.500	1.330	5.650
	平均值	40.45	71.00	9.225	37.25	7.470	1.410	6.320	1.350	6.345
水泥厂飞灰	CC	16.90	31.00	3.490	13.10	2.320	0.4540	2.290	0.460 0	2.080
	CCF	16.20	28.30	3.490	13.10	2.420	0.546 0	1.960	0.391 0	2.050
	平均值	16.55	29.65	3.490	13.10	2.370	0.500 0	2.125	0.425 5	2.065
钢铁厂烧结飞灰	SSF	19.30	30.70	3.980	15.10	2.640	0.599 0	2.410	0.473 0	2.140
	SFF	15.30	27.50	3.300	12.90	2.300	0.528 0	2.020	0.458 0	1.900
	平均值	17.30	29.10	3.640	14.00	2.470	0.563 5	2.215	0.465 5	2.020
土壤尘	P74-1	52.80	89.60	10.20	38.80	6.680	1.410	5.640	1.010	5.710
	P74-2	54.00	92.10	10.20	39.50	6.600	1.350	5.690	1.060	5.830
	平均值	53.40	90.85	10.20	39.15	6.640	1.380	5.665	1.035	5.770
球粒陨石值		0.315	0.813	0.115	0.597	0.192	0.072 2	0.259	0.047 3	0.325
位置	样号	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	$\sum \text{LREE}$	$\sum \text{HREE}$	$\sum \text{REE}$	
交通繁忙区	J2	0.834 7	2.622	0.412 5	2.511	0.437 3	174.1	16.45	190.6	
	J3	0.761 5	2.373	0.405 1	2.345	0.403 0	176.0	15.58	191.6	
	J9	0.878 0	2.968	0.478 4	2.990	0.518 7	216.9	18.15	235.0	
	J15	0.899 5	2.820	0.437 6	2.854	0.500 7	190.4	17.83	208.2	
	J3-1	0.905 9	2.684	0.446 0	2.703	0.489 3	195.9	17.88	213.8	
	J16	0.944 6	2.922	0.434 5	2.781	0.453 0	199.2	17.89	217.1	
	平均值	0.870 7	2.732	0.435 7	2.697	0.467 0	192.1	17.30	209.4	

续表 2

位置	样号	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	$\sum \text{LREE}$	$\sum \text{HREE}$	$\sum \text{REE}$
居住区	J1	0.675 8	2.041	0.308 7	1.874	0.362 1	128.7	12.49	141.2
	J7	0.609 4	1.925	0.295 3	1.850	0.307 7	126.7	11.89	138.6
	J13	0.592 0	1.957	0.290 7	1.722	0.297 2	128.5	11.94	140.4
	J52	0.550 0	1.688	0.232 0	1.552	0.238 0	132.7	10.92	143.7
	J53	0.648 0	2.032	0.280 0	1.806	0.280 0	124.3	12.38	136.7
	平均值	0.615 0	1.929	0.281 3	1.761	0.297 0	128.2	11.93	140.1
商业区	J4	0.695 5	2.185	0.325 0	1.917	0.322 4	136.0	13.24	149.2
	J8	0.812 3	2.483	0.403 2	2.528	0.427 4	176.4	15.92	192.3
	J10	0.632 7	1.911	0.302 6	1.851	0.319 2	159.2	12.66	171.8
	J11	0.760 6	2.538	0.383 1	2.175	0.407 7	176.5	15.37	191.9
	J12	0.785 3	2.373	0.392 6	2.336	0.407 9	145.8	14.37	160.2
	J14	0.770 1	2.370	0.346 2	2.114	0.371 8	150.1	14.70	164.8
	平均值	0.742 8	2.310	0.358 8	2.153	0.376 1	157.3	14.38	171.7
工业区	J231	1.252	4.028	0.534 0	3.608	0.544 0	383.4	24.74	408.2
	J232	0.672 0	2.214	0.3260	2.448	0.408 0	208.9	14.05	222.9
	J233	0.782 0	2.330	0.302 0	1.962	0.310 0	465.5	16.50	482.0
	J17	0.573 0	1.709	0.215 0	1.617	0.241 0	271.9	17.14	289.1
	J18	0.674 0	1.954	0.289 0	1.905	0.329 0	248.9	17.85	266.8
	平均值	0.790 6	2.447	0.333 2	2.308	0.366 4	315.7	18.06	333.8
农业区	J38	0.402 0	1.340	0.168 0	1.164	0.168 0	98.35	8.188	106.5
	J39	0.488 0	1.546	0.182 0	1.204	0.198 0	123.4	9.966	133.3
	平均值	0.445 0	1.443	0.175 0	1.184	0.183 0	110.9	9.077	119.9
降尘样品总均值		0.733 3	2.292	0.341 2	2.159	0.364 2	189.1	14.92	204.0
汽车尾气尘	TnP	0.799 0	2.470	0.449 0	3.470	0.539 0	184.8	17.45	202.2
	TD	0.929 0	2.790	0.503 0	3.510	0.558 0	179.6	18.78	198.4
	平均值	0.864 0	2.630	0.476 0	3.490	0.548 5	182.2	18.12	200.3
燃煤热电厂飞灰	TF(A)	1.470	4.060	0.783 0	4.740	0.772 0	149.4	26.38	175.7
	TF(T)	1.290	3.630	0.717 0	4.220	0.607 0	184.3	23.94	208.2
	平均值	1.380	3.845	0.750 0	4.480	0.689 5	166.8	25.16	192.0
水泥厂飞灰	CC	0.442 0	1.360	0.196 0	1.750	0.241 0	67.26	8.819	76.08
	CCF	0.405 0	1.310	0.299 0	1.630	0.274 0	64.06	8.319	72.38
	平均值	0.423 5	1.335	0.247 5	1.690	0.257 5	65.66	8.569	74.23
钢铁厂烧结飞灰	SSF	0.422 0	1.390	0.235 0	1.770	0.239 0	72.32	9.079	81.40
	SFF	0.423 0	1.060	0.215 0	1.380	0.210 0	61.83	7.666	69.49
	平均值	0.422 5	1.225	0.225 0	1.575	0.224 5	67.07	8.373	75.45
土壤尘	P74-1	1.110	3.600	0.604 0	4.600	0.753 0	199.5	23.03	222.5
	P74-2	1.140	3.620	0.611 0	4.250	0.697 0	203.8	22.90	226.6
	平均值	1.125	3.610	0.607 5	4.425	0.725 0	201.6	22.96	224.6
球粒陨石值		0.072 3	0.213	0.033 3	0.208	0.032 3	2.104	1.190	3.294

通过对比各功能区降尘与潜在源稀土元素配分曲线,发现汽车尾气尘、土壤尘、燃煤热电厂飞灰可能是泉州市大气降尘中稀土元素的主要来源。

2.3 REE 特征参数

利用稀土元素特征参数在一定程度上可以有效区分降尘与潜在污染源的差异,REE 特征参数主要包括 $\sum \text{LREE} / \sum \text{HREE}$ (LR/HR)、 δCe [Ce 异常值 = $\text{Ce}_N / (\text{La}_N \times \text{Pr}_N)^{0.5}$, 下标 N 代表球粒陨石标准化值,下同]、 δEu [Eu 异常值 = $\text{Eu}_N / (\text{Sm}_N \times \text{Gd}_N)^{0.5}$]、 $(\text{La}/\text{Yb})_N$ 、 $(\text{La}/\text{Sm})_N$ 、 $(\text{Gd}/\text{Yb})_N$ 、 $\text{Sm}/$

Nd 、 Eu/Sm 、 La/Ce 、 La/Nd 和 Ce/Nd 等。泉州市不同功能区大气降尘和潜在源稀土元素特征参数平均值见表 3。所有功能区中 LR/HR (10.78 ~ 17.68) 和 $(\text{La}/\text{Yb})_N$ (19.01 ~ 43.38) 平均值都偏高,属轻稀土富集型,被认为是陆源碎屑的标志^[33],表明研究区大气降尘具有较明显的陆源属性;所有功能区的 δEu 平均值范围为 0.57 ~ 0.76,各区域均表现为负异常。工业区和农业区的稀土元素某些特征参数 [LR/HR、 $(\text{La}/\text{Yb})_N$ 、 $(\text{La}/\text{Sm})_N$ 、 $(\text{Gd}/\text{Yb})_N$ 、 La/Nd] 平均值与潜在源相差较大,说明这两区可能存在其他来源。各功能区降尘与潜在源的 δEu 、 $\text{La}/$

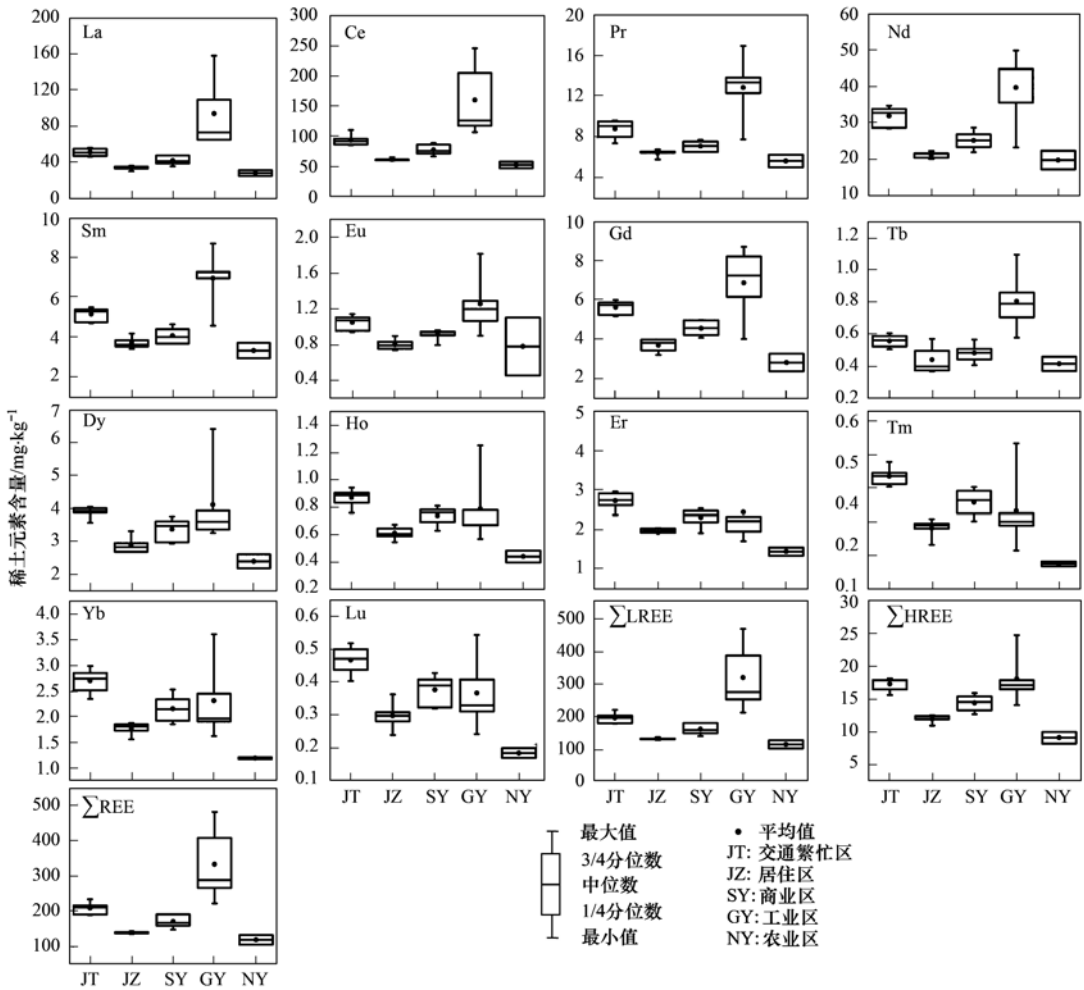


图2 泉州市不同功能区大气降尘稀土元素含量、轻稀土总量(Σ LREE)、重稀土总量(Σ HREE)及稀土总量(Σ REE)箱线图

Fig. 2 Box plot of REE, Σ LREE, Σ HREE and Σ REE contents in the dustfall from different functional areas of Quanzhou City

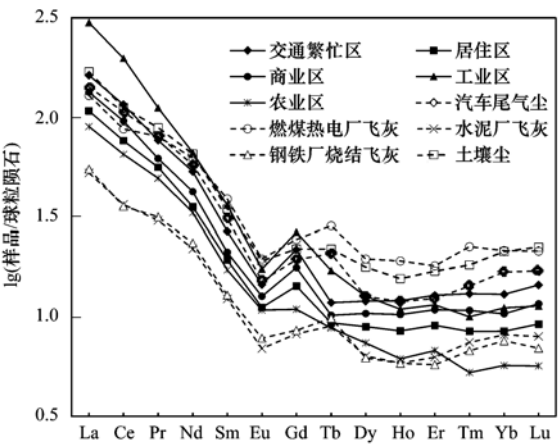


图3 泉州市不同功能区大气降尘和潜在源中稀土元素球粒陨石标准化配分模式

Fig. 3 Chondrite-normalized REE pattern in the dustfall from different functional areas and potential sources in Quanzhou City

Ce、Ce/Nd、Sm/Nd、Eu/Sm 平均值较接近,差异不明显. 为确定泉州市大气降尘稀土元素来源以及各

功能区 REE 空间差异成因,本文引用三角形统计图及特征参数关系图作进一步分析.

2.4 大气降尘中稀土元素来源分析

2.4.1 LaCeV 三角图解判别来源

三角形统计图是一种利用数字坐标形式表示 3 个变量的数字信息图像,常将 3 个变量之和看作单位 1,并用百分比来表示单个变量与整体的结构比例,利用对象在三角图解中的位置信息来反映对象的特征^[34]. 本研究绘制了大气降尘及潜在源中的 LaCeV 三角图(图 4). 由图 4 看出,在燃煤热电厂飞灰、土壤尘、汽车尾气尘所构成的椭圆区域中,La、Ce、V 的百分含量变化分别为 16.87% ~ 25.15%、29.65% ~ 49.15%、25.70% ~ 52.33%. 除了工业区有两个采样点的样品(J17 和 J18)分布在 Ce 百分含量高于 50% 的区域之外,其他降尘样品的 La、Ce、V 各自的百分含量都在以上范围内,而远离水泥厂飞灰和钢铁厂烧结飞

灰,佐证了上文中 REE 组成特征分析结果,同时椭圆区域内样品点更靠近汽车尾气尘和土壤尘,即泉州市不同功能区大气降尘中稀土元素受水泥厂和钢铁厂的影响不大,交通源、土壤源是其主要来源,其次为燃煤源,这与以往对该地区降尘中重金属分析中来源一致^[35,36].

表 3 不同功能区大气降尘和潜在源稀土元素特征参数统计

Table 3 Summary of REE characteristic parameters in the dustfall from different functional areas and potential sources												
项目	类型	LR/HR	δCe	δEu	(La/Yb) _N	(La/Sm) _N	(Gd/Yb) _N	La/Ce	La/Nd	Ce/Nd	Sm/Nd	Eu/Sm
交通繁忙区 <i>n</i> = 6	min	10.59	0.94	0.57	17.61	9.35	1.97	0.51	1.50	2.77	0.15	0.19
	max	11.95	1.13	0.64	20.35	10.53	2.22	0.60	1.66	3.28	0.17	0.21
	mean	11.10	1.04	0.60	19.01	9.94	2.10	0.55	1.61	2.95	0.16	0.20
	CV%	4.46	6.36	3.82	5.39	3.77	5.05	5.59	4.31	6.70	3.81	3.41
居住区 <i>n</i> = 5	min	10.04	0.91	0.63	16.72	7.25	1.91	0.50	1.35	2.70	0.16	0.19
	max	12.15	1.06	0.73	23.44	10.43	2.33	0.58	1.81	3.27	0.19	0.24
	mean	10.78	0.98	0.67	19.42	9.24	2.10	0.55	1.60	2.93	0.17	0.22
	CV%	7.58	5.36	5.79	13.57	12.95	7.16	5.44	10.22	7.57	8.38	8.31
商业区 <i>n</i> = 6	min	10.15	0.98	0.61	16.64	9.06	1.81	0.53	1.45	2.68	0.15	0.20
	max	12.58	1.11	0.77	23.77	12.01	2.32	0.55	1.88	3.44	0.17	0.26
	mean	10.96	1.05	0.66	19.70	10.43	2.14	0.54	1.67	3.09	0.16	0.23
	CV%	8.74	5.00	9.85	13.35	9.74	9.53	1.12	8.61	8.54	2.93	10.78
工业区 <i>n</i> = 5	min	13.95	0.93	0.41	26.58	8.91	1.65	0.53	1.45	2.54	0.15	0.15
	max	28.22	1.26	0.71	80.66	22.76	5.39	0.64	4.45	6.94	0.20	0.21
	mean	17.68	1.08	0.57	43.38	13.71	3.30	0.58	2.52	4.26	0.18	0.18
	CV%	33.58	11.98	21.30	50.68	39.90	47.48	7.61	48.90	42.32	13.13	13.87
农业区 <i>n</i> = 2	min	12.01	0.97	0.53	21.60	8.51	2.05	0.53	1.40	2.61	0.17	0.16
	max	12.38	0.99	0.98	26.11	8.62	2.72	0.54	1.45	2.74	0.17	0.30
	mean	12.20	0.98	0.76	23.86	8.57	2.38	0.53	1.43	2.68	0.17	0.23
	CV%	2.14	0.98	41.69	13.38	0.91	19.87	1.10	2.39	3.49	1.48	44.26
汽车尾气尘 <i>n</i> = 2	min	9.56	0.97	0.58	12.51	7.16	1.44	0.51	1.25	2.39	0.17	0.17
	max	10.59	1.01	0.65	13.14	7.82	1.44	0.52	1.35	2.63	0.17	0.19
	mean	10.08	0.99	0.62	12.82	7.49	1.44	0.52	1.30	2.51	0.17	0.18
燃煤热电厂飞灰 <i>n</i> = 2	min	5.66	0.81	0.60	7.26	4.92	1.30	0.53	1.04	1.84	0.19	0.18
	max	7.70	0.92	0.67	11.02	5.85	1.54	0.61	1.12	1.98	0.21	0.20
	mean	6.68	0.87	0.64	9.14	5.39	1.42	0.57	1.08	1.91	0.20	0.19
水泥厂飞灰 <i>n</i> = 2	min	7.63	0.88	0.61	9.66	6.69	1.20	0.55	1.24	2.16	0.18	0.20
	max	7.70	0.94	0.77	9.94	7.28	1.31	0.57	1.29	2.37	0.18	0.23
	mean	7.66	0.91	0.69	9.80	6.99	1.26	0.56	1.26	2.26	0.18	0.21
钢铁厂烧结飞灰 <i>n</i> = 2	min	7.97	0.82	0.73	10.90	6.65	1.36	0.56	1.19	2.03	0.17	0.23
	max	8.07	0.91	0.76	11.09	7.31	1.46	0.63	1.28	2.13	0.18	0.23
	mean	8.02	0.86	0.75	11.00	6.98	1.41	0.59	1.23	2.08	0.18	0.23
土壤母质层 <i>n</i> = 2	min	8.66	0.90	0.68	11.48	7.90	1.23	0.59	1.36	2.31	0.17	0.20
	max	8.90	0.92	0.71	12.71	8.18	1.34	0.59	1.37	2.33	0.17	0.21
	mean	8.78	0.91	0.69	12.09	8.04	1.28	0.59	1.36	2.32	0.17	0.21

2.4.2 REE 特征参数关系图示踪来源

(1) δEu-∑REE 关系分布 在稀土元素各特征参数中,Eu 异常主要继承了源区母岩的特征,不同母岩类型由于不同成岩过程 δEu 表现出不同的异常状况^[37]. 同时 ∑REE 在不同区域具有差异性,可综合运用 δEu-∑REE 关系图进行源解析^[38]. 泉州市大气降尘与潜在源的 δEu-∑REE 关系图(图 5)显示,除农业区和工业区之外,交通繁忙区、居住区、商业区的大气降尘与汽车尾气尘、土

壤尘、燃煤热电厂飞灰包含的区域较重合,而钢铁厂烧结飞灰及水泥厂飞灰远离该区域,进一步证实 REE 主要来源于土壤扬尘、汽车尾气和燃煤.

(2) HREE_N/MREE_N-La_N 关系分布 因所有样品的中稀土元素(MREE)的值偏高,为了证实从 δEu-∑REE 图所得出结论的可靠性并试图区分各功能区 REE 来源,可定义以下变量来分散 REE 特征参数图中的点: MREE_N(Eu_N + Sm_N + Gd_N + Tb_N + Dy_N), HREE_N(Ho_N + Er_N + Tm_N + Yb_N + Lu_N). La_N 又代表了 REE 球粒陨石标准化曲线中 LREE 的起

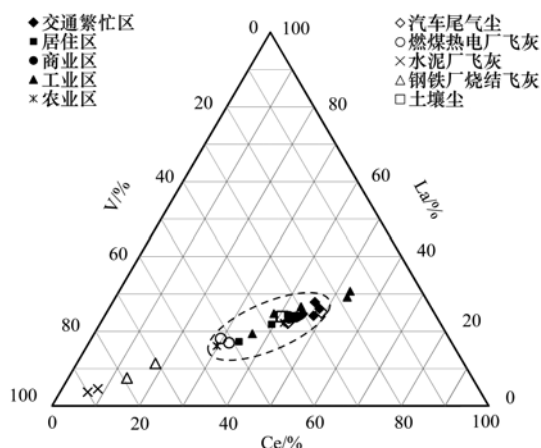


图4 泉州市大气降尘与潜在源样品的 LaCeV 三角图

Fig. 4 Triangle diagram of LaCeV in the dustfall and potential sources of Quanzhou City

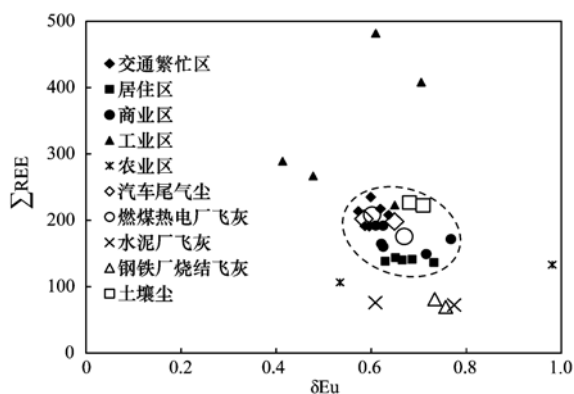


图5 泉州市不同功能区大气降尘与潜在源样品的 δEu - $\sum\text{REE}$ 关系

Fig. 5 Plot of δEu vs. $\sum\text{REEs}$ in the dustfall from different functional areas and potential sources of Quanzhou City

点,以 $\text{HREE}_N/\text{MREE}_N$ 为横坐标, La_N 为纵坐标作图 (图6). 对比图6和图5发现,较为一致的是交通源对商业区和交通繁忙区的稀土元素贡献最大,燃

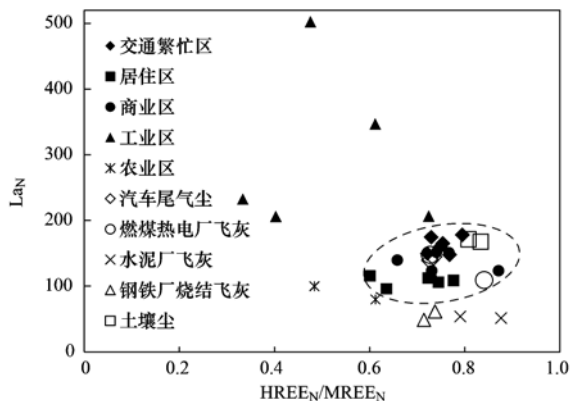
图6 大气降尘与潜在源样品的 $\text{HREE}_N/\text{MREE}_N$ - La_N 关系

Fig. 6 Plot of $\text{HREE}_N/\text{MREE}_N$ vs. La_N in the dustfall from different functional areas and potential sources

煤和土壤尘其次,而所有功能区的稀土元素受钢铁厂排放物和水泥尘的影响较小。

3 结论

(1) 泉州市大气降尘的 $\sum\text{REE}$ 空间分布差异较大,由高到低顺序为工业区 > 交通繁忙区 > 商业区 > 居住区 > 农业区。工业区和交通繁忙区较高的 $\sum\text{REE}$ 与稀土材料在轻工业和汽车催化剂的广泛应用有关。居住区、交通繁忙区、商业区的 $\sum\text{REE}$ 变异系数均较小,显示其来源的稳定性。各功能区降尘样品中稀土含量: $\text{Ce} > \text{La} > \text{Nd} > \text{Pr} > \text{Sm}$ 、 $\text{Gd} > \text{Dy} > \text{Er} > \text{Yb} > \text{Eu} > \text{Ho} > \text{Tb} > \text{Tm}$ 、 Lu ,与地壳中稀土元素的丰度排序大体一致。说明降尘中稀土元素含量分布受元素的地壳丰度控制,土壤扬尘是其来源之一。

(2) 泉州市大气降尘和潜在源中稀土元素的配分曲线均为右倾,轻稀土相对重稀土富集,具有明显的 Eu 负异常,表明研究区大气降尘具有较明显的陆源属性。各功能区降尘与潜在源的部分 REE 特征参数平均值较接近,未能揭示空间差异的成因。三角图解法和 REE 特征参数关系图可以被用来解析不同功能区降尘稀土元素来源。LaCeV 三角图解表明居住区、交通繁忙区、商业区降尘中 REE 主要受交通源和土壤尘的影响,其次为燃煤源。 δEu - $\sum\text{REE}$ 和 $\text{HREE}_N/\text{MREE}_N$ - La_N 关系图解进一步说明汽车尾气排放是交通繁忙区和商业区降尘中 REE 的主要来源。

(3) 对比泉州市大气降尘和潜在源中 REE 组成、配分模式、特征参数以及两种图解来看,所有功能区的稀土元素受钢铁厂排放物和水泥尘的影响较小;农业区和工业区的稀土来源与其他功能区存在差异,仅由此研究还不能确定,需结合其他方法,例如 REE、同位素以及卫星图像的结合等将会是未来大气源解析新的趋势。

参考文献:

- [1] 奚旦立, 孙裕生, 刘秀英. 环境监测[M]. (第四版). 北京: 高等教育出版社, 2010. 146-150.
Xi D L, Sun Y S, Liu X Y. Environmental monitoring [M]. (the four edition). Beijing: Higher Education Press, 2010. 146-150.
- [2] 庞绪贵, 王晓梅, 代杰瑞, 等. 济南市大气降尘地球化学特征及污染源研究[J]. 中国地质, 2014, 41(1): 285-293.
Pang X G, Wang X M, Dai J R, et al. Geochemical characteristics and pollution sources identification of the atmospheric dust-fall in Jinan city[J]. Geology in China, 2014,

- 41(1): 285-293.
- [3] 李萍, 薛粟尹, 王胜利, 等. 兰州市大气降尘重金属污染评价及健康风险评估[J]. 环境科学, 2014, **35**(3): 1021-1028.
- Li P, Xue S Y, Wang S L, *et al.* Pollution evaluation and health risk assessment of heavy metals from atmospheric deposition in Lanzhou[J]. Environmental Science, 2014, **35**(3): 1021-1028.
- [4] Huang S S, Tu J, Liu H Y, *et al.* Multivariate analysis of trace element concentrations in atmospheric deposition in the Yangtze River Delta, East China[J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(36): 5781-5790.
- [5] Mijić Z, Stojić A, Perišić M, *et al.* Seasonal variability and source apportionment of metals in the atmospheric deposition in Belgrade[J]. Atmospheric Environment, 2010, **44**(30): 3630-3637.
- [6] Lee P K, Choi B Y, Kang M J. Assessment of mobility and bio-availability of heavy metals in dry depositions of Asian dust and implications for environmental risk[J]. Chemosphere, 2014, **119**: 1411-1421.
- [7] Nesbitt H W. Mobility and fractionation of rare earth elements during weathering of a granodiorite[J]. Nature, 1979, **279**(5710): 206-210.
- [8] McLennan S M. Rare earth elements in sedimentary rocks; influence of provenance and sedimentary processes[J]. Reviews in Mineralogy and Geochemistry, 1989, **21**(8): 169-200.
- [9] Xie Y Y, Meng J, Guo L F. REE geochemistry of modern eolian dust deposits in Harbin city, Heilongjiang province, China; implications for provenance[J]. CATENA, 2014, **123**: 70-78.
- [10] Yang T, Han G L, Wu Q X, *et al.* Use of rare earth element patterns to trace the provenance of the atmospheric dust near Beijing, China[J]. Environmental Earth Sciences, 2013, **68**(3): 871-879.
- [11] Shaltout A A, Khoder M I, Ei-Abssawy A A, *et al.* Determination of rare earth elements in dust deposited on tree leaves from Greater Cairo using inductively coupled plasma mass spectrometry[J]. Environmental Pollution, 2013, **178**: 197-201.
- [12] 李德成, 王东红, 彭安. 北京西北郊降尘和降雨中稀土元素的浓度分布和来源的初步分析[J]. 环境科学学报, 2001, **21**(5): 640-642.
- Li D C, Wang D H, Peng A. Preliminary estimates of the distribution and source of REEs in dustfall and rain in Northwest skirt Beijing[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2001, **21**(5): 640-642.
- [13] 张崧, 刘平, 靳春胜, 等. 2006 年 4 月 17 日北京特大降尘的地球化学特征[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2008, **28**(3): 35-42.
- Zhang S, Liu P, Jin C S, *et al.* Geochemistry of the heavy dust fall on 17 April 2006 in Beijing[J]. Marine Geology & Quaternary Geology, 2008, **28**(3): 35-42.
- [14] Bozlaker A, Buzcu-Güven B, Fraser M P, *et al.* Insights into PM₁₀ sources in Houston, Texas; role of petroleum refineries in enriching lanthanoid metals during episodic emission events[J]. Atmospheric Environment, 2013, **69**: 109-117.
- [15] Du L, Turner J. Using PM_{2.5} lanthanoid elements and nonparametric wind regression to track petroleum refinery FCC emissions[J]. Science of the Total Environment, 2015, **529**: 65-71.
- [16] Kulkarni P, Chellam S, Fraser M P. Tracking petroleum refinery emission events using lanthanum and lanthanides as elemental markers for PM_{2.5}[J]. Environmental Science & Technology, 2007, **41**(19): 6748-6754.
- [17] Moreno T, Querol X, Alastrey A, *et al.* Identification of FCC refinery at atmospheric pollution events using lanthanoid- and vanadium-bearing aerosols[J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(34): 7851-7861.
- [18] Moreno T, Querol X, Alastrey A, *et al.* Variations in vanadium, nickel and lanthanoid element concentrations in urban air[J]. Science of the Total Environment, 2010, **408**(20): 4569-4579.
- [19] Moreno T, Querol X, Alastrey A, *et al.* Lanthanoid geochemistry of urban atmospheric particulate matter[J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42**(17): 6502-6507.
- [20] Bozlaker A, Spada N J, Fraser M P, *et al.* Elemental characterization of PM_{2.5} and PM₁₀ emitted from light duty vehicles in the Washburn Tunnel of Houston, Texas; release of rhodium, palladium, and platinum[J]. Environmental Science & Technology, 2014, **48**(1): 54-62.
- [21] Celo V, Dabek-Zlotorzynska E, McCurdy M. Chemical characterization of exhaust emissions from selected Canadian marine vessels; the case of trace metals and lanthanoids[J]. Environmental Science & Technology, 2015, **49**(8): 5220-5226.
- [22] 林敏, 赵英, 董宇卿, 等. 稀土上转换发光纳米材料的制备及生物医学应用研究进展[J]. 中国材料进展, 2012, **31**(1): 36-43.
- Lin M, Zhao Y, Dong Y Q, *et al.* Progress in synthesis and biomedical applications of rare earth upconversion luminescent Nano materials[J]. Materials China, 2012, **31**(1): 36-43.
- [23] 查明, 陈宇岳, 林红. 稀土化合物在纺织加工领域的应用[J]. 苏州大学学报(工科版), 2003, **23**(5): 12-15.
- Cha M, Chen Y Y, Lin H. The application of rare earth elements on textile[J]. Journal of Soochow University (Engineering Science Edition), 2003, **23**(5): 12-15.
- [24] 白秀丽, 于鹤. 稀土元素的研究与应用[J]. 长春师范学院学报(自然科学版), 2006, **25**(2): 37-39.
- Bai X L, Yu H. The study and application of thulium element[J]. Journal of Changchun Normal University (Natural Science), 2006, **25**(2): 37-39.
- [25] Zhan W C, Guo Y, Gong X Q, *et al.* Current status and perspectives of rare earth catalytic materials and catalysis[J]. Chinese Journal of Catalysis, 2014, **35**(8): 1238-1250.
- [26] 王静. 稀土在功能材料中的应用与新进展[J]. 化学推进剂与高分子材料, 2003, **1**(5): 29-33.
- Wang J. Applications and new advance of rare earth in functional materials[J]. Chemical Propellants & Polymeric Materials, 2003, **1**(5): 29-33.
- [27] 丁士明, 梁涛, 张自立, 等. 稀土对土壤的生态效应研究进展[J]. 土壤, 2004, **36**(2): 157-163.
- Ding S M, Liang T, Zhang Z L, *et al.* Advances of ecological effect of rare earths on soil[J]. Soils, 2004, **36**(2): 157-163.

- [28] 黄小卫, 李红卫, 王彩凤, 等. 我国稀土工业发展现状及进展[J]. 稀有金属, 2007, **31**(3): 279-288.
Huang X W, Li H W, Wang C F, *et al.* Development status and research progress in rare earth industry in China[J]. Chinese Journal of Rare Metals, 2007, **31**(3): 279-288.
- [29] 曹鹏, 石学法, 李巍然, 等. 安达曼海东南部海域表层沉积物稀土元素特征及其物源指示意义[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2015, **35**(5): 57-67.
Cao P, Shi X F, Li W R, *et al.* Rare earth element geochemistry of surface sediments in southeastern Andaman Sea and implications for provenance[J]. Marine Geology & Quaternary Geology, 2015, **35**(5): 57-67.
- [30] 赵志根. 不同球粒陨石平均值对稀土元素参数的影响——兼论球粒陨石标准[J]. 标准化报道, 2000, **21**(3): 15-16.
Zhao Z G. Effect of different chondrite on the parameter of rare earth elements[J]. Reporting of Standardization, 2000, **21**(3): 15-16.
- [31] Yang X P, Liu Y S, Li C Z, *et al.* Rare earth elements of Aeolian deposits in Northern China and their implications for determining the provenance of dust storms in Beijing [J]. Geomorphology, 2007, **87**(4): 365-377.
- [32] 杨守业, 李从先. REE 示踪沉积物物源研究进展[J]. 地球科学进展, 1999, **14**(2): 164-167.
Yang S Y, Li C X. Research progress in REE tracer for sediment source[J]. Advance in Earth Sciences, 1999, **14**(2): 164-167.
- [33] Henderson P. Rare earth element geochemistry [M]. Amsterdam: Elsevier, 1984. 201-203.
- [34] 郑晓霞, 赵文吉, 郭道宇. 北京大气降尘中微量元素的空间变异[J]. 中国环境科学, 2015, **35**(8): 2251-2260.
Zheng X X, Zhao W J, Guo X Y. Spatial variations of airborne dust trace elements in Beijing[J]. China Environmental Science, 2015, **35**(8): 2251-2260.
- [35] 吴宸熙, 祁士华, 方敏, 等. 福建省泉州湾大气降尘中的重金属元素的沉降特征[J]. 环境科学研究, 2006, **19**(6): 27-30.
Wu C X, Qi S H, Fang M, *et al.* Precipitation characteristics of heavy metal in dustfall to Quanzhou Bay of Fujian Province[J]. Research of Environmental Sciences, 2006, **19**(6): 27-30.
- [36] 胡恭任, 于瑞莲, 林燕萍, 等. TCLP 法评价泉州市大气降尘重金属的生态环境风险[J]. 矿物学报, 2013, **33**(1): 1-9.
Hu G R, Yu R L, Lin Y P, *et al.* Assessment of toxicity of heavy metal contaminated dustfall in Quanzhou City by toxicity characteristic leaching procedure[J]. Acta Mineralogica Sinica, 2013, **33**(1): 1-9.
- [37] Gallet S, Jahn B M, Torii M. Geochemical characterization of the Luochuan loess-paleosol sequence, China, and paleoclimatic implications[J]. Chemical Geology, 1996, **133**(1): 67-88.
- [38] Xu F J, Chen S Y, Qiu L W, *et al.* A preliminary reassessment of $\delta\text{Eu}_N - \sum \text{REEs}$ plot for distinguishing sediment provenances [J]. Journal of Rare Earths, 2012, **30**(1): 94-96.

CONTENTS

Transport Loss Estimation of Fine Particulate Matter in Sampling Tube Based on Numerical Computation	LUO Li-na, CHENG Zhen, ZHU Wen-fei, <i>et al.</i> (4457)
Sources Analysis of Heavy Metal Aerosol Particles in North Suburb of Nanjing	QIN Xin, ZHANG Ze-feng, LI Yan-wei, <i>et al.</i> (4467)
Distribution Characteristics of Water Soluble Ions Under Different Weather Conditions During the Youth Olympic Games in Nanjing	SHI Yuan-zhe, AN Jun-lin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (4475)
Seasonal Variation and Source Analysis of the Water-soluble Inorganic Ions in Fine Particulate Matter in Suzhou	WANG Nian-fei, CHEN Yang, HAO Qing-ju, <i>et al.</i> (4482)
Characteristics of Elements and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} at the Southwest Suburb of Chengdu in Spring	 YANG Huai-jin, YANG De-rong, YE Zhi-xiang, <i>et al.</i> (4490)
Geochemical Characteristics and Source Apportionment of Rare Earth Elements in the Dustfall of Quanzhou City	ZHANG Zong-wei, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (4504)
¹³ C-based Sources Partitioning of Atmospheric CO ₂ During Youth Olympic Games, Nanjing	XU Jia-ping, LI Xu-hui, XIAO Wei, <i>et al.</i> (4514)
Gaseous Emission Characterization of Civil Aviation Aircraft During Takeoff	HAN Bo, HUANG Jia-min, WEI Zhi-qiang (4524)
Pollution Characteristics of Antibiotic Resistant Bacteria from Atmospheric Environment of Animal Feeding Operations	ZHANG Lan-he, HE Yu-wei, CHEN Mo, <i>et al.</i> (4531)
Removing Nano Particles by Filtration Using Materials with Ordered Mesoporous Structure	XING Yi, WANG Cong, LU Pei, <i>et al.</i> (4538)
Emission Characteristics of Gaseous Pollutants from City Bus Fueled with Biodiesel Based on DOC + CDPF Technology in Real Road Conditions	 LOU Di-ming, ZHANG Yun-hua, TAN Pi-qiang, <i>et al.</i> (4545)
Characteristics of Methane Flux Across the Water-air Interface in Subtropical Shallow Ponds	LONG Li, XIAO Shang-bin, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (4552)
Succession of Phytoplankton Assemblages and Its Influencing Factors in Tangpu Reservoir, Zhejiang Province	MA Pei-ming, SHI Lian-dong, ZHANG Jun-fang, <i>et al.</i> (4560)
Responses of Physiological Indices of Typical Submerged Macrophytes to Water Quality in Taihu Lake	GAO Min, HU Wei-ping, DENG Jian-cai, <i>et al.</i> (4570)
Optical Characteristics of Dissolved Organic Matter from Two Different Full Mixed Reservoirs in Winter Based on UV-vis and EEMs	 HUANG Ting-lin, FANG Kai-kai, ZHANG Chun-hua, <i>et al.</i> (4577)
Hanfeng Pre-dam Commissioning Eutrophication Status and Control Evaluation in Three Gorges Reservoir	YANG Bing, HE Bing-hui, WANG De-bao (4586)
Occurrence, Distribution and Ecological Risk of Antibiotics in Surface Water of the Gonghu Bay, Taihu Lake	WU Xu-yue, ZOU Hua, ZHU Rong, <i>et al.</i> (4596)
Distribution Characteristics of <i>n</i> -alkanes in Sediment Core and Implication of Environment in Different Lakes of Dianchi	YU Li-yan, HAN Xiu-xiu, HUANG Xiao-hu, <i>et al.</i> (4605)
Vertical Distribution and Pollution Risk Assessment of Nitrogen, Phosphorus, and Organic Matter in Sediment of Inflowing Rivers of Erhai Lake Estuarine Wetland in Wet and Dry Seasons	 WANG Shu-jin, LIU Yun-gen, WANG Yan, <i>et al.</i> (4615)
Variation of Nitrogen Forms in Sediments of Lihu Lake During Mineralization	 ZHAO Li, WANG Shu-hang, JIANG Xia, <i>et al.</i> (4626)
Temporal and Spatial Variation Characteristics of the Heavy Metals Content in the Surface Sediment and the Potential Ecological Risk Trends in the Three Gorges Reservoir Area	 ZHUO Hai-hua, SUN Zhi-wei, TAN Ling-zhi, <i>et al.</i> (4633)
Modeling the Environmental Behaviors and Ecological Risks of Permethrin in Chaohu Lake	LIU Ya-li, WANG Ji-zhong, PENG Shu-chuan, <i>et al.</i> (4644)
Simulation Experiment; Effect of Organic Colloid on Carbamazepine Transport in Porous Media	ZHANG Si, HE Jiang-tao, ZHU Xiao-jing (4651)
Grain Size Distribution Characteristics of Suspended Particulate Matter as Influenced by the Apparent Pollution in the Inorganic Type Urban Landscape Water: Taking the Canal of Suzhou Section as Example	LI Qian-qian, PAN Yang, GONG Dan-yan, <i>et al.</i> (4662)
Rock Weathering Characteristics and the Atmospheric Carbon Sink in the Chemical Weathering Processes of Qingshuijiang River Basin	LÜ Jie-mei, AN Yan-ling, WU Qi-xin, <i>et al.</i> (4671)
Pollution Characteristics Analysis in Shallow Groundwater of Typical Farmland Area, Southern China	GUO Hui, YU Min-da, HE Xiao-song, <i>et al.</i> (4680)
Identification of Sulfate Sources in the Groundwater System of Zaozhuang; Evidences from Isotopic and Hydrochemical Characteristics	MA Yan-hua, SU Chun-li, LIU Wei-jiang, <i>et al.</i> (4690)
Removal of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons by Extensive Green Roofs	SHEN Qing-ran, HOU Juan, LI Tian (4700)
Comparative Study on Pretreatment Process of Ultrafiltration; Chemical Coagulation and Electrocoagulation	ZHAO Kai, YANG Chun-feng, SUN Jing-qiu, <i>et al.</i> (4706)
Adsorption Mechanisms Analysis of EOM on PVDF Ultrafiltration Membranes Modified by SiO ₂ Using QCM-D and AFM	JIANG Jia-liang, WANG Lei, HUANG Dan-xi, <i>et al.</i> (4712)
Isolation of Quorum Quenching Bacteria and Their Function for Controlling Membrane Biofouling	ZHAO Chang, WANG Wen-zhao, XU Qi-yong (4720)
Effects of Hydraulic Loading Rate on the Removal of Pollutants from an Integrated Biological Settling Tank	WANG Wen-dong, MA Cui, LIU Hui, <i>et al.</i> (4727)
Characteristics of Nitrobacteria in SBR with Trace N ₂ H ₄ Addition	XIAO Peng-ying, ZHANG Dai-jun, LU Pei-li (4734)
Start-up of Partial Nitrification AGS-SBR and Analysis of Its Microbial Community Composition	LU Hang, XIN Xin, GUAN Lei, <i>et al.</i> (4741)
Effects of PAHs Pollution on the Community Structure of Denitrifiers in a Typical Oilfield	YAO Yan-hong, WANG Ming-xia, ZUO Xiao-hu, <i>et al.</i> (4750)
Performance and Microbial Community Analysis of Bioaugmented Treatment of Diethyl Phthalate (DEP) in Membrane Bioreactor	ZHANG Ke, GUAN Yun, LUO Hong-bing, <i>et al.</i> (4760)
Comparative Analysis of the Bacterial Community on Anodic Biofilms in Sediment Microbial Fuel Cell Under Open and Closed Circuits	 WU Yi-cheng, DENG Quan-xin, WANG Ze-jie, <i>et al.</i> (4768)
Anaerobic Biodegradability of Perfluorooctanoic Acid (PFOA)	LI Fei, CHEN Yi-dan, ZHOU Zhen-ming, <i>et al.</i> (4773)
Comprehensive Effects of the Application of Water and Fertilizer Amount on CO ₂ Emission from Soils of Summer-maize Field	YANG Shuo-huan, ZHANG Bao-cheng, WANG Li, <i>et al.</i> (4780)
Spatial Heterogeneity of Soil Respiration in the Soil Erosion Area of West Mountains in Fujian Province, China	YAO Xiong, YU Kun-yong, ZENG Qi, <i>et al.</i> (4789)
Comprehensive Risk Evaluation of Cadmium in Soil-rice System Based on Uncertainty Analysis	YANG Yang, CHEN Wei-ping, LI Yan-ling, <i>et al.</i> (4800)
Fluorescence Properties of Glomalin and Its Relationship with Soil Physicochemical Characteristics in Different Regions of Beijing City	 CHAI Li-wei, LIU Meng-jiao, JIANG Da-lin, <i>et al.</i> (4806)
Spatial Distribution Characteristics of Heavy Metal Pollution and Health Risk in Soil Around the Coal Industrial Area of East Junggar Basin	 LIU Fang, Tashpolat Tiyp, Ilyas Nurmamat, <i>et al.</i> (4815)
Characteristics of Microbial Nitrogen Degradation in Fluvio-aquic Soil of Hebei Plain	ZHANG Can-can, PANG Hui-cong, GAO Tai-zhong, <i>et al.</i> (4830)
Influence of Arsenate and Phenanthrene on Carbon-groups of <i>Pteris vittata</i> L. Roots	LIAO Xiao-yong, GONG Xue-gang, YAN Xiu-lan, <i>et al.</i> (4841)
Effect of Alkali Solids Amendment on Sewage Sludge Aerobic Composting and the Potential of Related Products on Infertile Soil Amelioration	 CAI Han-zhen, NING Xi-cui, WANG Quan, <i>et al.</i> (4848)
Adsorption and Influential Factors of Diuron on the Loess Soil by Adding Different Biochar Prepared at Varying Temperatures	SUN Hang, JIANG Yu-feng, SHI Lei-ping, <i>et al.</i> (4857)
Characteristics of Heavy Metal Contents in Human Hairs of Mine Contaminated Areas in Nandan County	TIAN Mei-ling, ZHONG Xue-mei, XIA De-shang, <i>et al.</i> (4867)
Preparation of Mg-Al-Me (Me = La, Ce, Zr) Composite Oxides for Efficient Fluoride Uptake	WANG Ai-he, ZHOU Kang-gen, LIU Xing, <i>et al.</i> (4874)
Fe-Mn Binary Oxide Impregnated Chitosan Bead (FMCB): An Environmental Friendly Sorbent for Phosphate Removal	FU Jun, FAN Fang, LI Hai-ning, <i>et al.</i> (4882)
Leaching Toxicity and Bioaccessibility of Heavy Metals in MSWI Fly Ash with Various Particle Sizes	WANG Chun-feng, CHEN Guan-fei, ZHU Yan-chen, <i>et al.</i> (4891)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

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

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2016年12月15日 第37卷 第12期(卷终)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 12 Dec. 15, 2016

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

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行