

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第7期

Vol.39 No.7

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

近20年来中国典型区域PM _{2.5} 时空演变过程	罗毅,邓琼飞,杨昆,杨扬,商春雪,喻臻钰 (3003)
西安市PM _{2.5} 健康损害价值评估	魏国茹,史兴民 (3014)
河北香河亚微米气溶胶组分特性、来源及其演变规律分析	江琪,王飞,孙业乐 (3022)
南京北郊秋季PM _{2.5} 碳质组分污染特征及来源分析	徐足飞,曹芳,高嵩,鲍孟盈,石一凡,章炎麟,刘晓妍,范美益,张雯淇,卞航,刘寿东 (3033)
临安夏季霾和清洁天气PM _{2.5} 化学组成特征比较	梁林林,孙俊英,张养梅,刘畅,徐婉筠,张根,刘旭艳,马千里 (3042)
盘锦市秋冬季节PM _{2.5} 中碳组分特征及来源解析	张蕾,姬亚芹,张军,王士宝,李越洋,赵静琦,张伟 (3051)
南京冬季气溶胶光学特性及黑碳光吸收增强效应	黄聪聪,马嫣,郑军 (3057)
夏季青岛大气粗细粒子中微量元素的浓度、溶解度及干沉降通量	李鹏志,李茜,石金辉,高会旺,姚小红 (3067)
太原市夏季降水中溶解态重金属特征及来源	叶艾玲,程明超,张璐,何秋生,郭利利,王新明 (3075)
杭州地区大气CO ₂ 体积分数变化特征及影响因素	浦静姣,徐宏辉,姜瑜君,杜荣光,齐冰 (3082)
典型工业源VOCs治理现状及排放组成特征	景盛翱,王红丽,朱海林,杨强,卢滨,夏阳,余传冠,陶士康,李莉,楼晟荣,黄成,唐伟,井宝莉 (3090)
地级市域工业VOCs排放源产排特性及其控制技术应用现状:以秦皇岛市为例	胡旭睿,虎啸宇,王灿 (3096)
青霉素发酵尾气VOCs污染特征及健康风险评价	郭斌,么瑞静,张硕,马磊,康江,王姗姗 (3102)
轻型汽油车尾气OC和EC排放因子实测研究	黄成,胡馨遥,鲁君 (3110)
南京市大气降尘重金属污染水平及风险评价	田春晖,杨若杼,古丽扎尔·依力哈木,钱新,王金花,李慧明 (3118)
西安城区路面细颗粒灰尘重金属污染水平及来源分析	石栋奇,卢新卫 (3126)
三峡库区主要河流秋季pCO ₂ 及其影响因素	罗佳宸,毛蓉,李思悦 (3134)
泾河支流地表水地下水的水化学特征及其控制因素	寇永朝,华琨,李洲,李志 (3142)
生物滞留对城市地表径流磷的去除途径	李立青,刘雨倩,杨佳敏,王娟 (3150)
淀山湖浮游植物功能群演替特征及其与环境因子的关系	杨丽,张玮,尚光霞,张军毅,王丽卿,魏华 (3158)
抚仙湖硅藻群落的时空变化特征及其与水环境的关系	李蕊,陈光杰,康文刚,陈丽,王教元,陈小林,刘园园,冯钟,张涛 (3168)
蓝藻水华及其降解对沉积物-水微界面的影响	王永平,谢瑞,晁建颖,姬昌辉,于剑 (3179)
生物炭对人工湿地植物根系形态特征及净化能力的影响	徐德福,潘潜澄,李映雪,陈晓艺,王佳俊,周磊 (3187)
Mn-Co/蜂窝陶瓷催化剂制备及催化臭氧化对苯二酚效能	张兰河,高伟国,陈子成,张海丰,王旭明 (3194)
Fe/Cu双金属活化过一硫酸盐降解四环素的机制	李晶,鲍建国,杜江坤,冷一非,孔淑琼 (3203)
铈酸盐改性钛酸纳米片对水中Cd(II)的吸附行为及机制	康丽,刘文,刘晓娜,刘宏芳,李一菲 (3212)
铁锰原位氧化产物吸附微量磷的实验	蔡言安,毕学军,张嘉凝,董杨,刘文哲 (3222)
制备方法对铁钛复合氧化物磷吸附性能的影响:共沉淀法与机械物理混合法	仲艳,王建燕,陈静,张高生 (3230)
电导率对厌氧产酸、正渗透与微生物燃料电池耦合工艺运行性能的影响	陆宇琴,刘金梦,王新华,李秀芬,李晔 (3240)
不同磷浓度下生物除磷颗粒系统的COD需求	李冬,曹美忠,郭跃洲,梅宁,李帅,张杰 (3247)
基质浓度对ABR反应器SAD协同脱氮除碳效能影响	张敏,姜滢,汪瑶琪,韦佳敏,陈重军,沈耀良 (3254)
采用含硫铁化学污泥作为反硝化电子供体进行焦化废水中总氮深度去除	付炳炳,潘建新,马景德,王丰,吴海珍,韦朝海 (3262)
间歇曝气下短程硝化耦合污泥微膨胀稳定性	高春娣,孙大阳,安冉,赵楠,焦二龙,祝海兵 (3271)
基于高通量测序的SBR反应器丝状膨胀污泥菌群分析	洪颖,姚俊芹,马斌,徐双,张彦江 (3279)
纳米零价铁(NZVI)对厌氧产甲烷活性、污泥特性和微生物群落结构的影响	苏润华,丁丽雨,任洪强 (3286)
气水比对后置固相反硝化滤池工艺脱氮及微生物群落影响	张千,吉芳英,付旭芳,陈晴空 (3297)
活性污泥胞外多聚物提取方法的比较	孙秀玥,唐珠,杨新萍 (3306)
耐冷嗜碱蒙氏假单胞菌H97的鉴定及其好氧反硝化特性	蔡茜,何腾霞,冶青,李振轮 (3314)
PFOS前体物质(PreFOSs)降解菌的分离鉴定及其降解特性	赵淑艳,周涛,王博慧,梁田坤,柳丽芬 (3321)
采油井场土壤微生物群落结构分布	蔡萍萍,宁卓,何泽,张敏,石建省 (3329)
铜尾矿坝不同恢复年限土壤理化性质和酶活性的特征	王瑞宏,贾彤,曹苗文,柴宝峰 (3339)
广西某赤泥堆场周边土壤重金属污染风险	郭颖,李玉冰,薛生国,廖嘉欣,王琼丽,吴川 (3349)
邻苯二甲酸酯在重庆市城市土壤中的污染分布特征及来源分析	杨志豪,何明靖,杨婷,卢俊峰,魏世强 (3358)
成都平原区水稻土有机碳剖面分布特征及影响因素	李珊,李启权,王昌全,张浩,肖怡,唐嘉玲,代天飞,李一丁 (3365)
塔里木盆地北缘绿洲不同连作年限棉田土壤有机碳、无机碳含量与环境因子的相关性	赵晶晶,贡璐,安申群,李杨梅,陈新 (3373)
塔里木盆地北缘绿洲4种土地利用方式土壤有机碳组分分布特征及其与土壤环境因子的关系	安申群,贡璐,李杨梅,陈新,孙力 (3382)
高原喀斯特土壤有机碳短期稳定的温度作用机制	唐国勇,张春华,刘方炎,马艳 (3391)
施硼对水稻幼苗吸收和分泌砷的影响	朱毅,孙国新,陈正,胡莹,郑瑞伦 (3400)
不同改良剂对铅镉污染农田水稻重金属积累和产量影响的比较分析	胡雪芳,田志清,梁亮,陈俊德,张志民,朱祥民,王士奎 (3409)
南京大气臭氧浓度的季节变化及其对主要作物影响的评估	赵辉,郑有飞,魏莉,关清 (3418)
三峡库区涪陵和忠县两地居民发汞含量水平及影响因素分析	程楠,谢青,樊宇飞,王永敏,张成,王定勇 (3426)
人粪便好氧堆肥过程中典型抗生素的消减特性	时红蕾,王文昌,李倩 (3434)
COD/SO ₄ ²⁻ 对青霉素菌渣厌氧消化影响	强虹,李玉友,裴梦富 (3443)
果蔬类垃圾主发酵堆肥产物储放和利用的恶臭释放特征	何品晶,蒋宁玲,徐贤,韦顺艳,邵立明,吕凡 (3452)
曾用抗生素磺胺二甲嘧啶对稻田NH ₃ 挥发的影响	庞炳坤,张敬沙,吴杰,李志琳,蒋静艳 (3460)
《环境科学》征订启事(3141)	
《环境科学》征稿简则(3202)	
信息(3229, 3433, 3451)	

夏季青岛大气粗细粒子中微量元素的浓度、溶解度及干沉降通量

李鹏志¹, 李茜¹, 石金辉^{1,2*}, 高会旺^{1,2}, 姚小红^{1,2}

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

摘要: 利用2016年6~7月在青岛采集的PM_{2.5}和总悬浮颗粒物(TSP)样品,分析其中12种微量元素总态和溶解态浓度,讨论了微量元素在粗、细粒子中的浓度及溶解度的分布特征,并估算了微量元素的沉降通量。结果表明,青岛气溶胶中地壳元素Al、Fe、Sr、Mn、Ba总态浓度的55%~60%集中在粗粒子中,人为元素Cr、Ni、V、Zn、Pb、As、Cd的65%~85%集中在细粒子中。但无论是地壳元素还是人为元素其溶解态浓度均主要分布在细粒子中,Al、Fe、Mn、Ba在细粒子中的占比为50%~80%,Cr、Ni、V、Zn、Pb、As、Cd的为70%~90%。微量元素溶解度在细粒子中的高于粗粒子中的,细粒子中微量元素的溶解态浓度与酸组分呈显著正相关,溶解度与pH呈显著负相关,表明酸化作用可能是影响细粒子中微量元素溶解度的主控因子。不同微量元素的总沉降通量中溶解态部分的贡献不同,Al和Fe溶解态部分的贡献仅为1%~2%,Sr、Ba、Cr、Pb的约为30%~40%,Mn、Ni、V、Zn、As、Cd的约为50%~60%。大气沉降的溶解态Fe可支持(194±150)mg·(m²·d)⁻¹浮游植物碳的生产,对黄海初级生产力的贡献约为10%。

关键词: 溶解度; 干沉降通量; 微量元素; 气溶胶; 细粒子; 粗粒子; 青岛

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)07-3067-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201712231

Concentration, Solubility, and Dry Deposition Flux of Trace Elements in Fine and Coarse Particles in Qingdao During Summer

LI Peng-zhi¹, LI Qian¹, SHI Jin-hui^{1,2*}, GAO Hui-wang^{1,2}, YAO Xiao-hong^{1,2}

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

Abstract: PM_{2.5} and total suspended particulate (TSP) samples were synchronously collected in Qingdao from June to July 2016. The total and water-soluble concentrations of 12 trace elements in these samples were analyzed to investigate their distribution characteristics in fine and coarse particles as well as their dry deposition fluxes. The results showed that the total mass concentrations of Al, Fe, Sr, Mn, and Ba, which are expected to mainly originate from crustal sources, were generally distributed in the coarse particles, and the part mass in the coarse mode accounted for 55%-60% of their total concentrations. Cr, Ni, V, Zn, Pb, As, and Cd, which mainly originate from anthropogenic contributors, generally existed in fine particles where the part mass accounted for 65%-85% of their total concentrations. The soluble mass concentrations of trace elements, whether from crustal or anthropogenic sources, were mainly distributed in the fine particles. The proportions of Al, Fe, Mn, and Ba in soluble mass concentration existing in the fine particles were 50%-80% and 70%-90% for Cr, Ni, V, Zn, Pb, As, and Cd. The solubility of trace elements was higher in fine particles than in coarse particles. The soluble concentrations of trace elements exhibited a positive correlation with acid compounds, and the solubility exhibited a negative correlation with pH in the fine particles, implying that acidification processes play a key role in determining the solubility of trace elements in fine particles. The soluble fractions in the total dry deposition flux of Al and Fe were only 1%-2%; that of Sr, Ba, Cr, and Pb were about 30%-40%; and that of Mn, Ni, V, Zn, As, and Cd were about 50%-60%. The atmospheric deposition of soluble Fe supported phytoplankton carbon production of (194±150) mg·(m²·d)⁻¹, contributing about 10% of the primary productivity in the Yellow Sea.

Key words: solubility; dry deposition flux; trace elements; aerosol; fine particle; coarse particle; Qingdao

大气气溶胶中的微量元素通过干湿沉降进入海洋,对海洋生态系统有着重要影响^[1,2]。如微量元素Fe会在很大程度上影响海洋的初级生产和固碳能力^[3,4],Zn和Mn等微量元素可以通过参与不同的酶过程而影响海洋生物的生长和生物群落结构^[5],而As、Cd、Cr、Ni、Pb等微量元素则对海洋生物的生长有不同程度的抑制、甚至毒害作用,进

而可能影响生物的群落结构^[6]。大气沉降是海洋中微量元素的重要来源,对维持海水中Fe、Zn、Mn等微量元素的浓度起着重要作用,因此大气微量元素

收稿日期: 2017-12-27; 修订日期: 2018-01-08

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(41210008)

作者简介: 李鹏志(1992~),男,硕士研究生,主要研究方向为大气环境化学,E-mail:lp_zhi@163.com

* 通信作者,E-mail:engroup@ouc.edu.cn

沉降对海洋初级生产力的影响正在受到广泛关注。

气溶胶中的微量元素仅溶解态部分被认为能对海洋生物产生直接影响,微量元素溶解态浓度与其总浓度的百分比称为溶解度^[7]。微量元素溶解度在世界各地的报道中变化范围很大,这是由于微量元素溶解度受到各种物理和化学因素的共同影响,如气溶胶来源和化学组成^[8]、粒径谱分布^[9]、大气酸化过程^[10]等。不同粒径气溶胶沉降速率不同^[11, 12],分析不同粒径气溶胶中微量元素的溶解态浓度和溶解度,不仅有助于认识大气气溶胶中微量元素溶解度的控制因素,而且有助于准确评估大气微量元素沉降对海洋生态系统的影响。因此,本文利用2016年6~7月在黄海近岸城市青岛采集的PM_{2.5}和总悬浮颗粒物(TSP)样品,分析其中12种微量元素的总态和溶解态浓度,讨论了微量元素的浓度及溶解度在粗、细粒子中的分布特征,并估算了溶解态微量元素的干沉降通量。

1 材料与方法

1.1 样品采集

采样地点位于青岛市崂山区中国海洋大学校园内,距离海岸线约7 km,周围无明显的工业污染源。TSP和PM_{2.5}样品均采用KC-1000大流量气溶胶采样器(青岛崂山电子公司)采集,后者在采样器中配置PM_{2.5}切割头,采样流量为1.05 m³·min⁻¹,采样膜为预先酸洗过的Whatman 41纤维滤膜。采样时间为2016年6月21日~7月20日,PM_{2.5}和TSP样品同步采集,每个样品采集时间为24 h(当日09:00至次日09:00),共采集样品28对。本文分析中将空气动力学直径2.5 μm作为粗、细粒子的分界,>2.5 μm粗粒子浓度由TSP与PM_{2.5}差减得到。采样结束后,在超净台中小心取出滤膜,对折后放入洁净的聚乙烯封口袋中,于-20℃冷冻保存。采样时记录同期的气象参数。观测期间,青岛气温平均为24.3℃,相对湿度为84%,风速为2.8 m·s⁻¹,主导风向为东南风,期间多次出现短时降雨,降雨总量约为85 mm。

1.2 样品预处理

分析前,取出样品膜放入干燥器中,平衡后称重,结合采样前膜的质量和采样体积,计算样品中颗粒物质量浓度(μg·m⁻³)。用陶瓷刀截取8 cm²样品膜,放入聚四氟乙烯高压消解罐中,加入2 mL浓HNO₃和0.5 mL浓HF,密封后于180℃下消解至完全。取出消解罐内胆于180℃加热赶酸,残渣用2%

HNO₃溶解后定容用于微量元素总态浓度分析;截取18 cm²样品膜用15 mL Milli-Q水(电阻率18.2 MΩ·cm)于0℃下超声萃取1 h,萃取液经0.45 μm滤膜过滤,取出1.0 mL滤液测定pH值(梅特勒-托利多S20Seven Easy pH计,InLab Micro微电极),剩余滤液采用称重法酸化定容后用于微量元素溶解态浓度分析;截取24 cm²样品膜,用15 mL Milli-Q水于0℃下超声萃取1 h,萃取液经0.45 μm滤膜过滤定容后用于水溶性离子浓度分析。经预处理的样品溶液4℃下保存,并在48 h内完成分析。样品分析时,现场空白膜与样品膜相同方法处理。为检验微量元素总态浓度分析时样品的消解效率,取一定量的土壤成分分析标准物质(GBW07408,地球物理地球化学勘查研究所。因无气溶胶标准样,以土壤标准样代替)与样品膜相同方法消解。样品处理过程中所用试剂均为优级纯,所用器皿均预先经过酸洗以去除可能的干扰。

1.3 样品分析

样品中Al、Fe、Sr、Mn、Ba、Cr、Ni、V、Zn、Pb、As、Cd等12种微量元素浓度采用Agilent 7500c ICP-MS进行分析。方法检出限Fe为3.7 μg·L⁻¹,其他元素检出限均<0.09 μg·L⁻¹。为保证分析质量,每分析10个样品加测一与样品浓度接近的标准溶液,重复分析时各微量元素浓度的相对标准偏差为0.9%~4.5%。GBW07408标准物质中12种微量元素的消解回收率为90%~105%。现场空白样品同时被分析,空白浓度为样品中的0.1%~3%。样品中水溶性离子浓度采用Dionex ICS-3000离子色谱仪进行分析,样品分析方法及质量控制等详见文献[13]。

2 结果与讨论

2.1 青岛大气粗、细粒子中微量元素总态和溶解态浓度

采样期间,青岛大气气溶胶中粗粒子的质量浓度为12.7~124.1 μg·m⁻³,平均为(44.0±22.6) μg·m⁻³,细粒子的质量浓度为10.9~100.1 μg·m⁻³,平均为(42.9±20.9) μg·m⁻³,明显低于2015年1~3月在青岛观测的74.8 μg·m⁻³和69.0 μg·m⁻³的结果^[14],但粗、细粒子的质量分数各占50%与1~3月的结果基本一致。微量元素的总态浓度在粗、细粒子中的分布呈现两种类型(图1),一类是Al、Fe、Sr、Mn和Ba,其总态浓度在粗粒子中的高于细粒子中的,另一类是Cr、Ni、V、Zn、Pb、

As 和 Cd, 其总态浓度在细粒子中的高于粗粒子中的。微量元素在粗、细粒子中的总态浓度均以 Al 的最高, 平均为 $700.1 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $548.9 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 其次是 Fe, 分别为 $475.6 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $347.3 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 二者对总微量元素的贡献在粗、细粒子中分别为 93.3% 和 84.9%。Mn 和 Ba 在粗粒子中的浓度约为 $14 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 在细粒子中的浓度为 $11 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右。Sr 在粗、细粒子中的浓度均较低, 分别约为 $4.2 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $3.1 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。平均而言, Al、Fe、Sr、Mn 和 Ba 在粗粒子上的质量分数约为 55% ~ 60%。Zn 在粗、细粒子中的总态浓度也较高, 尤其是在细粒子中的浓度平均为 $91.7 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 明显高于粗粒子中的 $37.7 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。Pb 和 V 在细粒子中的浓度分别约为 $22.5 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $9.4 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 也明显高于粗粒子中 $8.2 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $2.2 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。Cr、Ni、As 和 Cd 在粗、细粒子中的浓度均较低, 但细粒子中的浓度明显高于粗粒子中的。总体而言, Zn、Pb、V、As、Cd、Cr 和 Ni 在细粒子上的质量分数约为 65% ~ 85%。Guo 等^[15] 在东海花鸟岛大气气溶胶中也观测到超过 50% 的 Al、Fe、Ba、Sr 出现在 $>3.3 \mu\text{m}$ 的粗粒子上, 超过 60% 的 Zn、Pb、Ni、V 富集在 $0.43 \sim 3.3 \mu\text{m}$ 的细粒子中。

不同的微量元素在粗、细粒子上总态浓度分布的差异可能与元素的来源不同有关。Al 是典型的地壳元素, 以 Al 作为地壳源参比元素, 计算粗、细粒子中微量元素富集因子 (EF) 以判断元素的地壳源和人为源的相对贡献。结果显示 Fe、Sr、Mn、Ba 的 EF 在粗、细粒子中约为 1 ~ 3, 且其与 Al 均存在显著的相关关系 (r 为 0.7 ~ 0.9, $P < 0.01$), 表明这些元素在粗、细粒子中均主要来自地壳源的贡献 (图 2); Cr、Ni、V 在粗粒子中的 EF 约为 2 ~ 3, 表明其主要受到地壳源的贡献, 而细粒子中的为 6 ~ 16, 存在一定程度的富集, 表明其受到人为源的影响, 如 V 可能来自船舶重油燃烧的贡献^[16]; Zn、Pb、As 和 Cd 在粗、细粒子中的 EF 均远大于 1, 且细粒子中的 EF 约为 200 ~ 700 明显高于其在粗粒子中的 60 ~ 200, 表明 Zn、Pb、As 和 Cd 主要来自人为源的贡献, 且更多地富集在细粒子中。

青岛大气中微量元素溶解态浓度的分布特征与总态的不同, 基本呈现细粒子中的高于粗粒子中的 (图 3)。地壳元素 Al 和 Fe 的溶解态浓度在细粒子中分别为 $18.9 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $12.7 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 明显高于在粗粒子中的 $11.0 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $3.9 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 其在细粒子上的质量分数分别约为 70% 和 80%。Mn 和 Ba

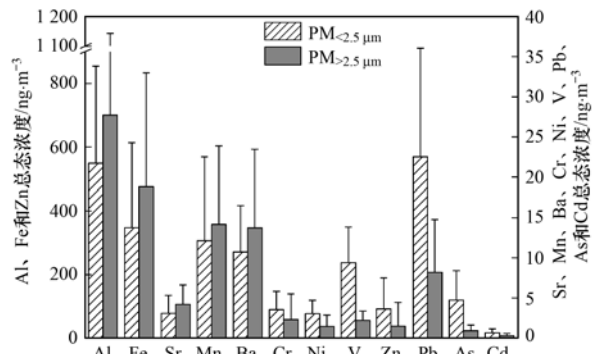


图 1 青岛大气粗、细粒子中微量元素的总态浓度

Fig. 1 Total concentrations of trace elements in the fine and coarse particles collected from Qingdao

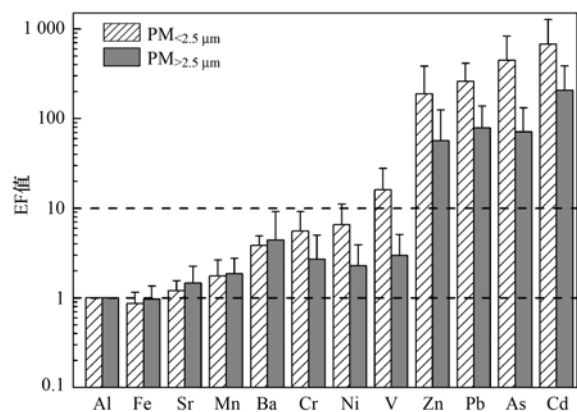


图 2 青岛大气粗、细粒子中微量元素的富集因子 (EF)

Fig. 2 Enrichment factors of trace elements in the fine and coarse particles collected from Qingdao

在细粒子中的浓度略高于粗粒子中的, 分别为 $6.9 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $3.5 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。溶解态 Sr 的浓度在粗、细粒子中的分布与总态的相似, 其在粗粒子上的质量分数也约为 60%。受人为源影响的元素 Zn 的溶解态浓度在粗、细粒子中均最高, 平均为 $15.9 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $54.9 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 在细粒子上的质量分数约为 80%。Cr、Ni、V、Pb、As、Cd 的溶解态浓度在粗粒子中均低于 $4 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 在细粒子均低于 $10 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 在细粒子上的质量分数约为 70% ~ 90%。这些结果表明, 不仅受人为源影响的元素其溶解态部分主要富集在细粒子中, 主要来自地壳源的元素 Al 和 Fe 的溶解态部分也主要富集在细粒子中。

2.2 青岛大气粗、细粒子中微量元素溶解度及酸化作用的影响

青岛大气气溶胶中微量元素溶解度的分布呈现细粒子中的高于粗粒子中的 (图 4)。尽管气溶胶中 Al 的总态浓度最高, 但其溶解度最低, 基本在 1% ~ 5% 之间, 细粒子中的平均为 3.8%, 高于粗粒子中的 2.2%。Oooki 等^[17] 研究亚洲沙尘气溶胶时也发现

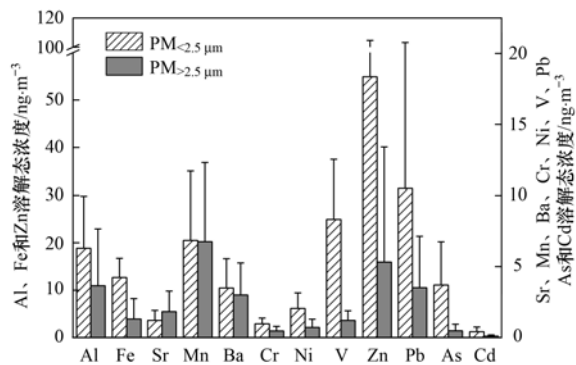


图3 青岛大气粗、细粒子中微量元素溶解态浓度

Fig. 3 Soluble concentrations of trace elements in the fine and coarse particles collected from Qingdao

Al 溶解度在 $>3.3 \mu\text{m}$ 粗粒子中较低,为 $<0.5\%$,而在 $<3.3 \mu\text{m}$ 细粒子中较高,为 $3\% \sim 4\%$. Fe 在细粒子中的溶解度为 $2.0\% \sim 8.0\%$,平均为 5.3% ,而在粗粒子中为 $0.2\% \sim 1.5\%$,平均为 1.0% . 这与青岛冬春季气溶胶中 $<2.1 \mu\text{m}$ 细粒子中 Fe 溶解度为 $2\% \sim 5\%$,而 $>2.1 \mu\text{m}$ 粗粒子中基本 $<0.5\%$ 的结果相似^[18]. 地壳元素 Sr、Mn、Ba 的溶解度显著高于 Al 和 Fe,在细粒子中的溶解度为 $40\% \sim 60\%$,粗粒子中的为 $35\% \sim 50\%$. 受人为源影响的元素均有较高的溶解度,其中 Cr、Pb 的溶解度在细粒子中的为 $35\% \sim 45\%$,略高于粗粒子中的 $30\% \sim 40\%$; Ni、V、Zn、As、Cd 在细粒子中的溶解度为 $65\% \sim 90\%$,明显高于粗粒子中的 $45\% \sim 60\%$.

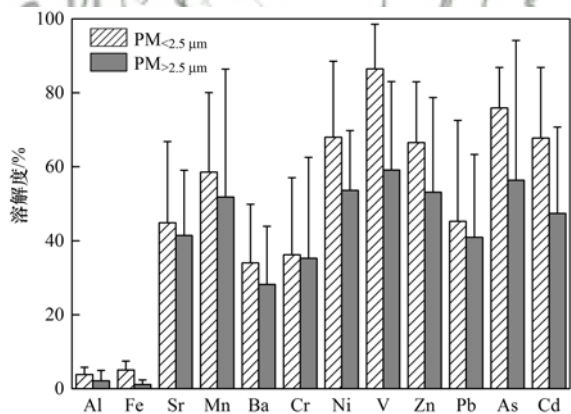


图4 青岛大气粗、细粒子中微量元素溶解度

Fig. 4 Solubility of trace elements in the fine and coarse particles collected from Qingdao

青岛大气中微量元素溶解度在粗、细粒子中的分布不同可能是由于矿物气溶胶在远距离传输过程中与酸性污染物混合,细粒子较之粗粒子更大的比表面积为矿物颗粒与酸组分的反应提供了更大的场所,从而增加了细粒子中微量元素的溶解度^[19, 20]. 最近对单颗粒的研究已证实人为污染气体在颗粒物

表面形成的 SO_4^{2-} 酸组分可使矿物气溶胶中不溶态 Fe 转化为可溶态 $\text{Fe}^{[21]}$. 气溶胶中酸性组分主要有 SO_4^{2-} 和 NO_3^- ,由于海盐粒子对气溶胶中 SO_4^{2-} 有一定贡献,因此为分析人为污染的影响,本文利用非海盐(nss) SO_4^{2-} 的浓度:

$$[\text{nss-SO}_4^{2-}] = [\text{SO}_4^{2-}] - 0.2455 \times [\text{Na}^+]$$

其中0.2455是海水中 SO_4^{2-} 与 Na^+ 的质量比值.

分析青岛大气粗、细粒子中溶解态微量元素与酸组分浓度 ($[2\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-]$) 之间关系,发现细粒子中除含量较低的 Sr、Cr、Ni 和 V 外,其余微量元素均与酸组分存在显著相关关系(图5),但粗粒子中仅 Al、Ba、Zn 和 Pb 与酸组分存在一定的相关关系(r 为 $0.6 \sim 0.8$, $P < 0.01$),这表明酸组分可能主要对细粒子中微量元素的溶解起到一定促进作用. 已有研究报道, $\text{PM}_{2.5}$ 中溶解态 Fe 浓度在 pH4.7 溶出介质中比 pH8.13 介质中高 21% ^[22],在 pH < 3 的环境下, pH 每降低 1 个单位, Fe 溶解度会有数量级的增加^[23]. 因此,为进一步分析青岛大气气溶胶酸度对微量元素溶解度的影响,本研究测定了 $\text{PM}_{2.5}$ 和 TSP 萃取液的 pH 值以表征气溶胶酸度. 结果显示, $\text{PM}_{2.5}$ 萃取液的 pH 值平均为 5.26,比 TSP 萃取液的 pH 值约低 0.7 个单位. 分析细粒子中微量元素溶解度与 pH 关系,发现 Al、Fe、Mn、Ba、Zn 和 Pb 的溶解度与 pH 存在显著的负相关关系(图6),表明青岛细粒子中这些微量元素溶解度随着气溶胶酸度的增加而增加,但气溶胶酸度变化对不同元素溶解度的提升程度不同. 如当气溶胶萃取液的 pH 由 6 降至 4 时,地壳元素 Fe 的溶解度约由 3% 升至 8% ,而人为元素 Zn 的溶解度约由 56% 升至 84% . 李茜等^[24] 在研究青岛雨水中微量元素溶解度时也发现,随着雨水 pH 的降低不同微量元素溶解度的增幅不同.

2.3 青岛大气微量元素的沉降通量及其对海洋初级生产力的贡献

为估算黄海近岸大气微量元素的干沉降通量 [F , $\mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$],利用方程(1)计算:

$$F = 0.864 \times (C_c V_c + C_f V_f) \quad (1)$$

式中, C_c 和 C_f 为粗、细粒子中微量元素的总态或溶解态浓度 ($\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$), V_c 和 V_f 为粗、细粒子干沉降速率 ($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$). 不同粒径颗粒物的沉降速率不同,本文参考文献[11, 12]中颗粒物粒径与沉降速率的关系, V_c 和 V_f 分别选取 $2 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ 和 $0.1 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$.

采样期间,青岛大气颗粒物的沉降通量为 24.0

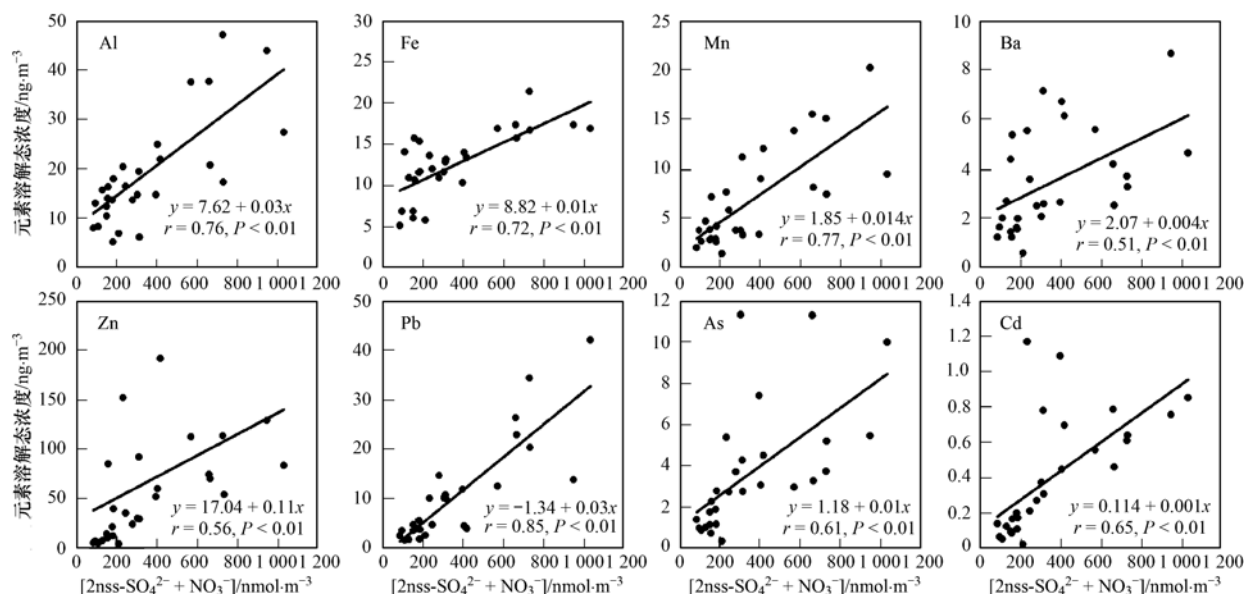


图5 青岛大气细粒子中溶解态微量元素与酸性组分关系

Fig. 5 Correlations of soluble trace elements and acid species in the fine particles collected from Qingdao

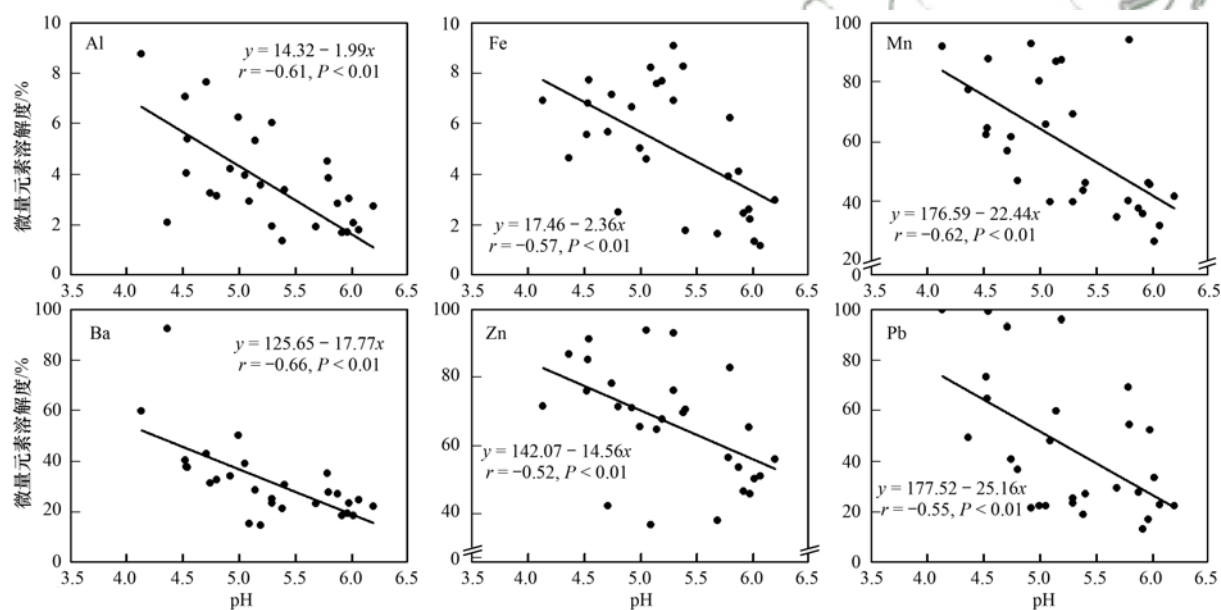


图6 青岛大气细粒子中微量元素溶解度与 pH 关系

Fig. 6 Correlations of solubility of trace elements and pH in the fine particles collected from Qingdao

$\sim 223.2 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 平均为 $(79.7 \pm 40.4) \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 低于 2002 年 6 月观测的 $110 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ [25], 这可能是因为观测期间多次出现短时降雨, 湿清除作用较为明显. 对于微量元素的总态沉降通量, 其中地壳元素 Al 和 Fe 的最高, 平均分别为 $1257.2 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $851.9 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, Mn 和 Ba 的基本相当, 约为 $25 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, Sr 的较低, 为 $7.5 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ (表 1). 人为元素 Zn 和 Pb 的总态沉降通量相对较高, 分别为 $73.1 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $16.1 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$,

Cr、Ni、V、As、Cd 的较低, 均 $< 5 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 与青岛 2001 年 7 月模型分析的结果相比 [26], 本研究中 Al、Fe、Mn、Pb、Zn 的沉降通量明显较低, 这可能与采样期间降雨的湿清除作用有关. 对于溶解态微量元素的沉降通量, 地壳元素 Al、Mn 和 Fe 的沉降通量较高, 分别为 20.6 、 12.3 和 $7.3 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, Ba 和 Sr 的较低, 约为 $3 \sim 5 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 人为元素 Zn 和 Pb 的溶解态沉降通量较高, 分别为 $32.3 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $7.0 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, Cr、Ni、V、As、Cd 的较低, 约为 < 3

$\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 与冬、春季东海($25^\circ\text{N}\sim 32^\circ\text{N}$, 126°E 以西)大气溶解态微量元素的沉降通量相比^[27], 青岛大气 Al、Fe 的沉降通量较低, 但人为元素 Zn、Pb、Cr、Ni、V、As 等的沉降通量明显高于东海, 这可能是因为东海在采样期间出现了沙尘天气的缘故.

青岛大气颗粒物的沉降通量以粗粒子的沉降通量占主导, 约为 95%. 微量元素的总态沉降通量也主要来自粗粒子的贡献, 粗粒子中地壳元素沉降通量的相对贡献约为 93%~96%, 人为元素的贡献约为 75%~90%. 微量元素的溶解态沉降通量也主要来自粗粒子贡献, 粗粒子中地壳元素 Al 和 Fe 沉降通量的相对贡献分别为 85% 和 77%, Mn、Ba 和 Sr 的约为 90%~95%, 人为元素的为 70%~85%. 粗粒子中溶解态微量元素沉降通量的相对贡献与总态的相比有所降低, 这与微量元素溶解态部分主要存

在于细粒子中有关.

大气沉降的微量元素通过调节浮游植物的生长而影响海洋初级生产力, 但这种影响通常只取决于溶解态部分的沉降通量^[28]. 不同微量元素的总沉降通量中溶解态部分所占的比例不同, 地壳元素 Al 和 Fe 的溶解态沉降通量在总沉降通量中仅占 1%~2%, Sr、Ba、Cr、Pb 的约占 30%~40%, Mn、Ni、V、Zn、As、Cd 的约占 50%~60% (图 7). 若大气沉降的溶解态 Fe 能被海洋浮游植物完全利用, 以浮游植物细胞中 Fe:C 比值为 $8\ \mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$ 计算^[29], 则观测期间大气沉降的溶解态 Fe 最多可支持黄海 (194 ± 150) $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 碳的初级生产. 夏季黄海的初级生产力约为 $2060\ \text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ ^[30], 因此大气沉降的溶解态 Fe 对黄海初级生产力的贡献约为 10%.

表 1 青岛大气总态和溶解态微量元素的干沉降通量及与文献值比较/ $\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$

Table 1 Atmospheric dry deposition fluxes of total and soluble trace elements in Qingdao and comparison with references/ $\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$

元素	青岛($\text{PM}_{<2.5}$)		青岛($\text{PM}_{>2.5}$)		青岛($\text{PM}_{<2.5}+\text{PM}_{>2.5}$)		青岛总态沉降通量 ^[26]	东海溶解态沉降通量 ^[27]
	总态沉降通量	溶解态沉降通量	总态沉降通量	溶解态沉降通量	总态沉降通量	溶解态沉降通量		
Al	47.4 ± 25.9	1.6 ± 0.9	$1\ 209\pm 752$	18.9 ± 20.3	$1\ 257\pm 760$	20.6 ± 20.6	3 100	40
Fe	30.0 ± 22.6	1.1 ± 0.4	822 ± 607	6.2 ± 5.6	852 ± 616	7.3 ± 5.6	3 520	39
Sr	0.3 ± 0.2	0.1 ± 0.1	7.2 ± 4.1	3.2 ± 2.4	7.5 ± 4.2	3.3 ± 2.5	—	—
Mn	1.2 ± 0.9	0.6 ± 0.4	24.5 ± 16.5	11.7 ± 9.4	25.5 ± 17.0	12.3 ± 9.7	63	6.7
Ba	1.0 ± 0.7	0.3 ± 0.2	23.7 ± 16.5	5.2 ± 3.8	24.6 ± 16.9	5.5 ± 4.0	—	1.4
Cr	0.3 ± 0.2	0.1 ± 0.1	4.0 ± 5.4	0.8 ± 0.6	4.3 ± 5.4	0.9 ± 0.6	—	0.2
Ni	0.3 ± 0.1	0.2 ± 0.1	2.5 ± 2.4	1.2 ± 1.0	2.8 ± 2.4	1.4 ± 1.0	—	0.2
V	0.8 ± 0.4	0.7 ± 0.4	3.8 ± 2.0	2.1 ± 1.1	4.6 ± 2.1	2.8 ± 1.3	—	1.5
Zn	7.9 ± 8.4	4.7 ± 4.2	65.2 ± 127.4	27.5 ± 41.1	73.1 ± 133	32.3 ± 43.7	240	19.0
Pb	1.9 ± 1.2	0.9 ± 0.9	14.1 ± 11.2	6.1 ± 6.2	16.1 ± 11.7	7.0 ± 6.7	140	2.5
As	0.4 ± 0.3	0.3 ± 0.3	1.5 ± 1.2	0.8 ± 0.8	1.9 ± 1.4	1.1 ± 1.0	—	0.4
Cd	0.05 ± 0.04	0.03 ± 0.02	0.4 ± 0.5	0.2 ± 0.1	0.5 ± 0.5	0.2 ± 0.2	—	0.2

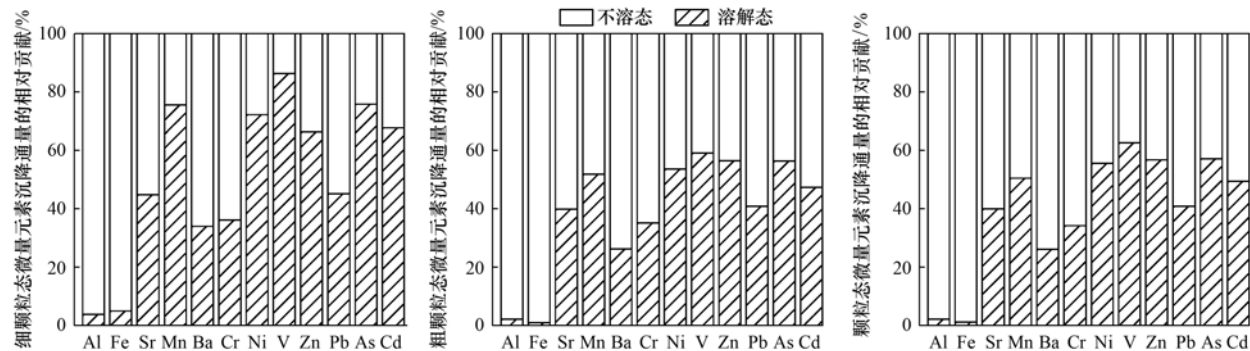


图 7 青岛大气微量元素沉降通量中溶解态和不溶态部分的相对贡献

Fig. 7 Relative contribution of the soluble and insoluble fractions to dry deposition fluxes of trace elements in Qingdao

3 结论

(1) 青岛大气气溶胶中微量元素总态浓度在

粗、细粒子中呈现两种分布特征, Al、Fe、Sr、Mn、Ba 等地壳元素的 55%~60% 集中在粗粒子中, Cr、Ni、V、Zn、Pb、As、Cd 等人为元素的 65%~85%

集中在细粒子中。微量元素溶解态浓度的分布主要集中在细粒子中, Fe、Al、Mn、Ba 在细粒子中的质量分数为 50% ~ 80%, Cr、Ni、V、Zn、Pb、As、Cd 的为 70% ~ 90%。

(2) 微量元素溶解度的分布呈现细粒子中的高于粗粒子中的。细粒子中微量元素的溶解态浓度与酸组分存在显著的正相关关系, 溶解度与 pH 存在显著的负相关关系, 表明酸化作用可能是控制细粒子中微量元素溶解度的主要因子。

(3) 不同微量元素的总沉降通量中溶解态部分的贡献不同, Al 和 Fe 溶解态沉降通量的贡献仅为 1% ~ 2%, Sr、Ba、Cr、Pb 的约为 30% ~ 40%, Mn、Ni、V、Zn、As、Cd 的约为 50% ~ 60%。大气沉降的溶解态 Fe 可支持黄海 (194 ± 150) $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 碳的初级生产, 对黄海初级生产力的贡献约为 10%。

参考文献:

- [1] Butler A. Acquisition and utilization of transition metal ions by marine organisms[J]. *Science*, 1998, **281**(5374): 207-210.
- [2] Morel F M M, Price N M. The biogeochemical cycles of trace metals in the oceans[J]. *Science*, 2003, **300**(5621): 944-947.
- [3] Tagliabue A, Bowie A R, Boyd P W, *et al.* The integral role of iron in ocean biogeochemistry[J]. *Nature*, 2017, **543**(7643): 51-59.
- [4] Winton V H L, Bowie A R, Edwards R, *et al.* Fractional iron solubility of atmospheric iron inputs to the Southern Ocean[J]. *Marine Chemistry*, 2015, **177**: 20-32.
- [5] Paytan A, Mackey K R M, Chen Y, *et al.* Toxicity of atmospheric aerosols on marine phytoplankton[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2009, **106**(12): 4601-4605.
- [6] Echeveste P, Tovar-Sánchez A, Agustí S. Tolerance of polar phytoplankton communities to metals[J]. *Environmental Pollution*, 2014, **185**: 188-195.
- [7] Baker A R, Croot P L. Atmospheric and marine controls on aerosol iron solubility in seawater[J]. *Marine Chemistry*, 2010, **120**(1-4): 4-13.
- [8] Hsu S C, Liu S C, Arimoto R, *et al.* Effects of acidic processing, transport history, and dust and sea salt loadings on the dissolution of iron from Asian dust[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2010, **115**(D19): D19313.
- [9] Baker A R, Jickells T D. Mineral particle size as a control on aerosol iron solubility[J]. *Geophysical Research Letters*, 2006, **33**(17): L17608.
- [10] Zhang T R, Shi J H, Gao H W, *et al.* Impact of source and atmospheric processing on Fe solubility in aerosols over the Yellow Sea, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **75**: 249-256.
- [11] Sweet C W, Weiss A, Vermette S J. Atmospheric deposition of trace metals at three sites near the great lakes[J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 1998, **103**(1-4): 423-439.
- [12] Duce R A, Liss P S, Merrill J T, *et al.* The atmospheric input of trace species to the world ocean[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 1991, **5**(3): 193-259.
- [13] 李非非, 石金辉, 李丽平, 等. 青岛大气中 HNO_3 、 HNO_2 和 NH_3 的浓度及其影响因素[J]. *环境科学学报*, 2013, **33**(10): 2671-2678.
- [14] Li F F, Shi J H, Li L P, *et al.* Concentration and impact factors of atmospheric nitric acid, nitrous acid and ammonia in Qingdao, China[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, **33**(10): 2671-2678.
- [15] 张丽, 孟亚, 张爱滨, 等. 青岛市郊雾霾天大气 $\text{PM}_{2.5}$ 和 TSP 污染特征比较[J]. *城市环境与城市生态*, 2016, **29**(1): 21-27.
- [16] Zhang L, Meng Y, Zhang A B, *et al.* Comparative study on pollution characteristics of $\text{PM}_{2.5}$ and total suspended particulate in Qingdao suburban area[J]. *Urban Environment & Urban Ecology*, 2016, **29**(1): 21-27.
- [17] Guo L, Chen Y, Wang F J, *et al.* Effects of Asian dust on the atmospheric input of trace elements to the East China Sea[J]. *Marine Chemistry*, 2014, **163**: 19-27.
- [18] Sholkovitz E R, Sedwick P N, Church T M. Influence of anthropogenic combustion emissions on the deposition of soluble aerosol iron to the ocean: empirical estimates for island sites in the North Atlantic[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2009, **73**(14): 3981-4003.
- [19] Ooki A, Nishioka J, Ono T, *et al.* Size dependence of iron solubility of Asian mineral dust particles[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2009, **114**(D3): D03202.
- [20] 孟亚, 李鹏志, 曹婉婉, 等. 青岛大气气溶胶中微量元素浓度及溶解度的粒径谱分布[J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(3): 851-858.
- [21] Meng Y, Li P Z, Cao W W, *et al.* Size distributions of particulate trace elements in mass concentration and their size-dependent solubility in the atmosphere in Qingdao, China[J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(3): 851-858.
- [22] Srinivas B, Sarin M M, Rengarajan R. Atmospheric transport of mineral dust from the Indo-Gangetic Plain; temporal variability, acid processing, and iron solubility[J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2014, **15**(8): 3226-3243.
- [23] Hsu S C, Gong G C, Shiah F K, *et al.* Sources, solubility, and acid processing of aerosol iron and phosphorous over the South China Sea; East Asian dust and pollution outflows vs. Southeast Asian biomass burning[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2014, **14**(15): 21433-21472.
- [24] Li W J, Xu L, Liu X H, *et al.* Air pollution-aerosol interactions produce more bioavailable iron for ocean ecosystems[J]. *Science Advances*, 2017, **3**(3): e1601749.
- [25] Ravelo-Pérez L M, Rodríguez S, Galindo L, *et al.* Soluble iron dust export in the high altitude Saharan Air Layer[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **133**: 49-59.
- [26] Shi Z B, Krom M D, Jickells T D, *et al.* Impacts on iron solubility in the mineral dust by processes in the source region and the atmosphere: a review[J]. *Aeolian Research*, 2012, **5**: 21-42.
- [27] 李茜, 石金辉, 李鹏志, 等. 青岛大气降水中微量元素的浓

- 度及溶解度[J]. 环境科学, 2018, **39**(4): 1520-1526.
- Li Q, Shi J H, Li P Z, *et al.* Concentration and solubility of trace elements in atmospheric precipitation in Qingdao [J]. Environmental Science, 2018, **39**(4): 1520-1526.
- [25] Zhang R J, Wang M X, Sheng L F, *et al.* Seasonal characterization of dust days, mass concentration and dry deposition of atmospheric aerosols over Qingdao, China [J]. China Particuology, 2004, **2**(5): 196-199.
- [26] Qi J H, Li P L, Li X G, *et al.* Estimation of dry deposition fluxes of particulate species to the water surface in the Qingdao area, using a model and surrogate surfaces [J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(11): 2081-2088.
- [27] Hsu S C, Wong G T F, Gong G C, *et al.* Sources, solubility, and dry deposition of aerosol trace elements over the East China Sea [J]. Marine Chemistry, 2010, **120**(1-4): 116-127.
- [28] Winton V H L, Edwards R, Bowie A R, *et al.* Dry season aerosol iron solubility in tropical northern Australia [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, **16**(19): 12829-12848.
- [29] Okin G S, Baker A R, Tegen I, *et al.* Impacts of atmospheric nutrient deposition on marine productivity: roles of nitrogen, phosphorus, and iron [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2011, **25**(2): GB2022.
- [30] 林志裕, 童金炉, 陈敏, 等. 夏季黄、东海初级生产力的分布及其变化[J]. 同位素, 2011, **24**(S1): 95-101.
- Lin Z Y, Tong J L, Chen M, *et al.* Distribution of primary production in the Yellow Sea and the East China Sea in summer [J]. Journal of Isotopes, 2011, **24**(S1): 95-101.



CONTENTS

Spatial-Temporal Change Evolution of PM _{2.5} in Typical Regions of China in Recent 20 Years	LUO Yi, DENG Qiong-fei, YANG Kun, <i>et al.</i>	(3003)
Evaluation the Extent of Health Damage Caused by PM _{2.5} Particulate in Xi'an City	WEI Guo-ru, SHI Xing-min	(3014)
Analysis of Chemical Composition, Source and Evolution of Submicron Particles in Xianghe, Hebei Province	JIANG Qi, WANG Fei, SUN Ye-le	(3022)
Characteristics and Source Analysis of Carbonaceous Components of PM _{2.5} During Autumn in the Northern Suburb of Nanjing	XU Zu-fei, CAO Fang, GAO Song, <i>et al.</i>	(3033)
Comparison of Chemical Components Characteristics of PM _{2.5} Between Haze and Clean Periods During Summertime in Lin'an	LIANG Lin-lin, SUN Jun-ying, ZHANG Yang-mei, <i>et al.</i>	(3042)
Characteristics and Sources of Carbon Components in PM _{2.5} During Autumn and Winter in Panjin City	ZHANG Lei, JI Ya-qin, ZHANG Jun, <i>et al.</i>	(3051)
Aerosol Optical Properties and Light Absorption Enhancement of EC During Wintertime in Nanjing	HUANG Cong-cong, MA Yan, ZHENG Jun	(3057)
Concentration, Solubility, and Dry Deposition Flux of Trace Elements in Fine and Coarse Particles in Qingdao During Summer	LI Peng-zhi, LI Qian, SHI Jin-hui, <i>et al.</i>	(3067)
Characteristics and Sources of Dissolved Heavy Metals in Summer Precipitation of Taiyuan City, China	YE Ai-ling, CHENG Ming-chao, ZHANG Lu, <i>et al.</i>	(3075)
Characteristics of and Factors Affecting Atmospheric CO ₂ Concentration in Hangzhou	PU Jing-jiao, XU Hong-hui, JIANG Yu-jun, <i>et al.</i>	(3082)
Treatment Status and Emission Characteristics of Volatile Organic Compounds from Typical Industrial Sources	JING Sheng-ao, WANG Hong-li, ZHU Hai-lin, <i>et al.</i>	(3090)
Characteristics of Industrial VOCs Emission Sources and Control Technology Application in a Prefecture-level City Region-Based on Qinhuangdao City	HU Xu-rui, HU Xiao-yu, WANG Can	(3096)
Pollution Condition and Health Risk Assessment of VOCs in Fermentation Exhaust from Penicillin Production	GUO Bin, YAO Rui-jing, ZHANG Shuo, <i>et al.</i>	(3102)
Measurements of OC and EC Emission Factors for Light-duty Gasoline Vehicles	HUANG Cheng, HU Qing-yao, LU Jun	(3110)
Pollution Levels and Risk Assessment of Heavy Metals from Atmospheric Deposition in Nanjing	TIAN Chun-hui, YANG Ruo-zhu, Gulizhaer Yilihamu, <i>et al.</i>	(3118)
Contamination Levels and Source Analysis of Heavy Metals in the Finer Particles of Urban Road Dust from Xi'an, China	SHI Dong-qi, LU Xin-wei	(3126)
pCO ₂ in the Main Rivers of the Three Gorges Reservoir and Its Influencing Factors	LUO Jia-chen, MAO Rong, LI Si-yue	(3134)
Major Ionic Features and Their Possible Controls in the Surface Water and Groundwater of the Jinghe River	KOU Yong-chao, KUA Kun, LI Zhou, <i>et al.</i>	(3142)
Urban Runoff Phosphorus Removal Pathways in Bioretention Systems	LI Li-qing, LIU Yu-qing, YANG Jia-min, <i>et al.</i>	(3150)
Succession Characteristics of Phytoplankton Functional Groups and Their Relationships with Environmental Factors in Dianshan Lake, Shanghai	YANG Li, ZHANG Wei, SHANG Guang-xia, <i>et al.</i>	(3158)
Spatio-temporal Variations of Diatom Community and Their Relationship with Water Environment in Fuxian Lake	LI Rui, CHEN Guang-jie, KANG Wen-gang, <i>et al.</i>	(3168)
Effects of Algal Blooms and Their Degradation on the Sediment-water Micro-interface	WANG Yong-ping, XIE Rui, CHAO Jian-ying, <i>et al.</i>	(3179)
Effect of Biochar on Root Morphological Characteristics of Wetland Plants and Purification Capacity of Constructed Wetland	XU De-fu, PAN Qian-cheng, LI Ying-xue, <i>et al.</i>	(3187)
Preparation of Mn-Co/Ceramic Honeycomb Catalyst and Its Performance on Catalytic Ozonation of Hydroquinone	ZHANG Lan-he, GAO Wei-wei, CHEN Zi-cheng, <i>et al.</i>	(3194)
Degradation Mechanism of Tetracycline Using Fe/Cu Oxides as Heterogeneous Activators of Peroxymonosulfate	LI Jing, BAO Jian-guo, DU Jiang-kun, <i>et al.</i>	(3203)
Behavior and Mechanisms of Cd(II) Adsorption from Water by Niobate-Modified Titanate Nanosheets	KANG Li, LIU Wen, LIU Xiao-na, <i>et al.</i>	(3212)
Trace Amounts of Phosphorus Removal Based on the in-suit Oxidation Products of Iron or Manganese in a Biofilter	CAI Yan-an, BI Xue-jun, ZHANG Jia-ning, <i>et al.</i>	(3222)
Effect of Preparation Methods on Phosphate Adsorption by Iron-Titanium Binary Oxide: Coprecipitation and Physical Mixing	ZHONG Yan, WANG Jiang-yan, CHEN Jing, <i>et al.</i>	(3230)
Effects of Conductivity on Performance of a Combined System of Anaerobic Acidification, Forward Osmosis, and a Microbial Fuel Cell	LU Yu-qin, LIU Jin-meng, WANG Xin-hua, <i>et al.</i>	(3240)
COD Requirement for Biological Phosphorus Removal Granule System Under Different Phosphorus Concentrations	LI Dong, CAO Mei-zhong, GUO Yue-zhou, <i>et al.</i>	(3247)
Effect of Substrate Concentration on SAD Collaborative Nitrogen and Carbon Removal Efficiency in an ABR Reactor	ZHANG Min, JIANG Ying, WANG Yao-qi, <i>et al.</i>	(3254)
Evaluation of Advanced Nitrogen Removal from Coking Wastewater Using Sulfide Iron-containing Sludge as a Denitrification Electron Donor	FU Bing-bing, PAN Jian-xin, MA Jing-de, <i>et al.</i>	(3262)
Stability of Nitrification Combined with Limited Filamentous Bulking Under Intermittent Aeration	GAO Chun-di, SUN Da-yang, AN Ran, <i>et al.</i>	(3271)
Filamentous Sludge Microbial Community of a SBR Reactor Based on High-throughput Sequencing	HONG Ying, YAO Jun-qin, MA Bin, <i>et al.</i>	(3279)
Impact of Nano Zero-Valent Iron (NZVI) on Methanogenic Activity, Physiological Traits, and Microbial Community Structure in Anaerobic Digestion	SU Run-hua, DING Li-li, REN Hong-qiang	(3286)
Effects of Gas/Water Ratio on the Characteristics of Nitrogen Removal and the Microbial Community in Post Solid-Phase Denitrification Biofilter Process	ZHANG Qian, JI Fang-ying, FU Xu-fang, <i>et al.</i>	(3297)
Comparison of Extraction Methods of Extracellular Polymeric Substances from Activated Sludge	SUN Xiu-yue, TANG Zhu, YANG Xin-ping	(3306)
Identification and Characterization of a Hypothermic Alkaliphilic Aerobic Denitrifying Bacterium <i>Pseudomonas monteilii</i> Strain H97	CAI Xi, HE Teng-xia, YE Qing, <i>et al.</i>	(3314)
Isolation, Identification, and Biodegradation Behaviors of a Perfluorooctane Sulfonic Acid Precursor (PreFOSs) Degrading Bacterium from Contaminated Soil	ZHAO Shu-yan, ZHOU Tao, WANG Bo-hui, <i>et al.</i>	(3321)
Microbial Community Distributions in Soils of an Oil Exploitation Site	CAI Ping-ping, NING Zhuo, HE Ze, <i>et al.</i>	(3329)
Characteristics of Soil Physicochemical Properties and Enzyme Activities over Different Reclaimed Years in a Copper Tailings Dam	WANG Rui-hong, JIA Tong, CAO Miao-wen, <i>et al.</i>	(3339)
Risk Analysis of Heavy Metal Contamination in Farmland Soil Around a Bauxite Residue Disposal Area in Guangxi	GUO Ying, LI Yu-bing, XUE Sheng-guo, <i>et al.</i>	(3349)
Occurrence and Distribution of Phthalate Esters in Urban Soils of Chongqing City	YANG Zhi-hao, HE Ming-jing, YANG Ting, <i>et al.</i>	(3358)
Profile Distribution of Paddy Soil Organic Carbon and Its Influencing Factors in Chengdu Plain	LI Shan, LI Qi-quan, WANG Chang-quan, <i>et al.</i>	(3365)
Correlation Between Soil Organic and Inorganic Carbon and Environmental Factors in Cotton Fields in Different Continuous Cropping Years in the Oasis of the Northern Tarim Basin	ZHAO Jing-jing, GONG Lu, AN Shen-qun, <i>et al.</i>	(3373)
Soil Organic Carbon Components and Their Correlation with Soil Physicochemical Factors in Four Different Land Use Types of the Northern Tarim Basin	AN Shen-qun, GONG Lu, LI Yang-mei, <i>et al.</i>	(3382)
Short-term Mechanism of Warming-induced Stability for Organic Carbon in the Karst Plateau Soil	TANG Guo-yong, ZHANG Chun-hua, LIU Fang-yan, <i>et al.</i>	(3391)
Effects of Boron Treatment on Arsenic Uptake and Efflux in Rice Seedlings	ZHU Yi, SUN Guo-xin, CHEN Zheng, <i>et al.</i>	(3400)
Comparative Analysis of Different Soil Amendment Treatments on Rice Heavy Metal Accumulation and Yield Effect in Pb and Cd Contaminated Farmland	HU Xue-fang, TIAN Zhi-qing, LIANG liang, <i>et al.</i>	(3409)
Seasonal Variation in Surface Ozone and Its Effect on the Winter Wheat and Rice in Nanjing, China	ZHAO Hui, ZHENG You-fei, WEI Li, <i>et al.</i>	(3418)
Hair Mercury Concentrations in Residents of Fuling and Zhongxian in the Three Gorges Reservoir Region and Their Influence Factors	CHENG Nan, XIE Qing, FAN Yu-fei, <i>et al.</i>	(3426)
Removal of Typical Antibiotics During Aerobic Composting of Human Feces	SHI Hong-lei, WANG Xiao-chang, LI Qian	(3434)
Effect of COD/SO ₄ ²⁻ Ratio on Anaerobic Digestion of Penicillin Bacterial Residues	QIANG Hong, LI Yu-you, PEI Meng-fu	(3443)
Characteristics of Odor Emissions from Fresh Compost During Storage and Application	HE Pin-jing, JIANG Ning-ling, XU Xian, <i>et al.</i>	(3452)
Effects of the Veterinary Antibiotic Sulfamethazine on Ammonia Volatilization from a Paddy Field Treated with Conventional Synthetic Fertilizer and Manure	PANG Bing-kun, ZHANG Jing-sha, WU Jie, <i>et al.</i>	(3460)