

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.6

第40卷 第6期

目次

北京城区大气金属元素干湿沉降特征	张国忠, 潘月鹏, 田世丽, 王永宏, 熊秋林, 李广, 顾梦娜, 吕雪梅, 倪雪, 何月欣, 黄威, 刘博文, 王跃思	(2493)
北京城郊 PM _{2.5} 中金属元素的污染特征及潜在生态风险评价	徐静, 李杏茹, 张兰, 陈曦, 杨阳, 刘永桥, 赵清	(2501)
上海城区二次气溶胶的形成: 光化学氧化与液相反应对二次气溶胶形成的影响	高杰, 乔利平, 楼晟荣, 严茹莎, 周敏, 刘瑜存, 冯加良, 黄丹丹	(2510)
天津市 2017 年重污染过程二次无机化学污染特征分析	徐虹, 肖致美, 陈魁, 李立伟, 杨宁, 高璟赞, 李源, 孔君, 毕温凯, 邓小文	(2519)
典型非金属矿物制造工艺过程源成分谱特征	赵雪艳, 于高峰, 王信梧, 张向炎, 殷宝辉, 刘盈盈, 王歆华, 杨文, 赵若杰	(2526)
垃圾焚烧厂排放颗粒物组分粒径分布特征	余卓君, 吴建会, 张裕芬, 张进生, 冯银厂, 李蒲	(2533)
天津市春季样方法道路扬尘碳组分特征及来源分析	马妍, 姬亚芹, 国纪良, 赵静琦, 李越洋, 王士宝, 张蕾	(2540)
霾天气下城市气溶胶吸湿性的观测	杨素英, 田芷洁, 张铁凝, 于兴娜, 李艳伟, 安俊琳, 赵秀勇, 李岩, 王梓航, 吴尚	(2546)
宁东能源化工基地大气 PM _{2.5} 中硝基多环芳烃污染特征及呼吸暴露风险	刘攀亮, 剧媛丽, 毛潇萱, 黄韬, 高宏, 马建民	(2556)
2014 ~ 2016 年间郑州市控制 PM ₁₀ 和 PM _{2.5} 污染的健康效益评估	韩士杰, 王佳, 燕启社, 杨留明, 赵庆炎, 王申博, 李晨, 张轶舜, 张瑞芹	(2565)
1990 ~ 2017 年中国地区气溶胶光学厚度的时空分布及其主要影响类型	刘莹, 林爱文, 覃文敏, 何利杰, 李霄	(2572)
北京春季一次霾-沙天气污染特性与成因分析	王耀庭, 李青春, 郑祚芳, 窦有俊	(2582)
江苏省内河船舶大气污染物排放清单及特征	徐文文, 殷承启, 许雪记, 张玮	(2595)
亚热带稻区大气 NO ₂ 、HNO ₃ 及硝态氮污染特征及干湿沉降	欧阳秀琴, 王波, 沈健林, 朱潇, 王杰飞, 李勇, 吴金水	(2607)
长江源区降水氢氧稳定同位素特征及水汽来源	汪少勇, 王巧丽, 吴锦奎, 何晓波, 丁永建, 王利辉, 胡召富	(2615)
基于高山湖泊沉积记录的贵州北部大气重金属污染历史重建	梁梦瑶, 刘恩峰, 张恩楼, 纪明, 李小林	(2624)
青岛 4 个海水浴场微塑料的分布特征	罗雅丹, 林千惠, 贾芳丽, 徐功娣, 李锋民	(2631)
鄱阳湖湿地候鸟栖息地微塑料污染特征	刘淑丽, 简敏菲, 周隆胤, 李文华, 吴希恩, 饶丹	(2639)
三峡库区消落带土壤溶解性有机质溯源: 基于氮/碳比值的线性双端元源负荷分析	江韬, Joeri Kaal, 梁俭, 刘江, 张耀玲, 王定勇, 魏世强, 赵铮	(2647)
水生生物光合作用对雪玉洞岩溶水体中 CDOM 的影响	范佳鑫, 蒋勇军, 贺秋芳, 王家楠, 何瑞亮, 张彩云, 马丽娜, 汪啟容	(2657)
水化学和环境同位素对济南东源饮用水源地地下水演化过程的指示	张雅, 苏春利, 马燕华, 刘伟江	(2667)
崇左响水地区地下水水质分析及健康风险评价	周巾枚, 蒋忠诚, 徐光黎, 覃小群, 黄奇波, 张连凯	(2675)
云南荞麦地流域地下水水化学特征及物质来源分析	张勇, 郭纯青, 朱彦光, 于爽	(2686)
鄱阳湖流域多尺度 C、N 输送通量及其水质参数变化特征	陆瑶, 高扬, 贾璐杰, 宋贤威, 陈世博, 马明真, 郝卓	(2696)
合流制面源污染传输过程与污染源解析	房金秀, 谢文霞, 朱玉玺, 沈雷, 马玉坤, 李佳, 姜智绘, 李叙勇, 赵洪涛	(2705)
强化浅基质层干植草沟对道路径流的脱氮效果	段进凯, 李田, 张佳炜	(2715)
水源水库暴雨径流过程水体锰的迁移及其影响	邓立凡, 黄廷林, 李楠, 李凯, 吕晓龙, 毛雪静	(2722)
巢湖十五里河沉积物磷吸收潜力及对外源碳的响应	李如忠, 鲍琴, 张瑞钢, 陈慧	(2730)
金盆水库沉积物磷的来源及分布特征	毛雪静, 黄廷林, 李楠, 徐金兰, 苏露, 吕晓龙, 邓立凡	(2738)
水库水体热分层的水质及细菌群落分布特征	王禹冰, 王晓燕, 庞树江, 杨晓明, 刘洋	(2745)
不同水温分层水库沉积物间隙水营养盐垂向分布与细菌群落结构的关系	王慎, 张思思, 许尤, 官卓宇, 杨正健, 刘德富, 马骏	(2753)
表面流人工湿地长期运行后的底泥营养盐累积特征与释放规律	朱伊梦, 姜翠玲, 朱立琴, 杜观超, 高旭, 陈红卫, 李峰东, 张海阔, 张雪, 秦文凯, 李一平	(2764)
针铁矿改性生物炭对砷吸附性能	朱司航, 赵晶晶, 尹英杰, 商建英, 陈冲, 瞿婷	(2773)
改性稻壳生物炭对水溶液中甲基橙的吸附效果与机制	史月月, 单锐, 袁浩然	(2783)
厌氧膜生物反应器处理含盐废水运行效能及膜污染特性	闫欢沙, 许振钰, 金春姬, 邵梦雨, 郭亮, 赵阳国	(2793)
污水处理厂出水有机磷污染特征及强化去除	王小东, 王子文, 陈明飞, 王燕, 王硕, 李激	(2800)
碱度对沸石序批式反应器亚硝化的影响	王瑞鑫, 陈婧, 汪晓军, 胡浩林, Karasuta Chayangkun	(2807)
活性污泥物理结构对呼吸过程的影响	郭耀, 李志华, 杨成建, 王慧娟, 李亚明, 姜阳	(2813)
好氧颗粒污泥处理畜禽养殖沼液污染物的特性	廖杰, 叶嘉琦, 曾志超, 刘琳, 徐开钦, 刘超翔	(2821)
快速城市化区河流温室内空气排放的时空特征及驱动因素	刘婷婷, 王晓峰, 袁兴中, 龚小杰, 侯春丽	(2827)
生物炭对潜流人工湿地污染物去除及 NO ₃ 排放影响	邓朝仁, 梁银坤, 黄磊, 方丹丹, 陈玉成, 杜刚	(2840)
曾用抗生素磺胺二甲嘧啶对稻田 N ₂ O 排放的影响及其微生物机制	吴杰, 李志琳, 徐佳迎, 王珏, 蒋静艳	(2847)
不同施氮水平对紫花苜蓿草地土壤呼吸和土壤生化性质的影响	胡伟, 张亚红, 李鹏, 张鹏, 李满友, 尤璟涛, 田水泉	(2858)
典型城市化区域土壤重金属污染的空间特征与风险评价	何博, 赵慧, 王铁宇, 孟晶, 肖荣波, 刘胜然, 周云桥, 史斌	(2869)
西南高锡地质背景区农田土壤与农作物的重金属富集特征	刘意章, 肖唐付, 熊燕, 宁增平, 双燕, 李航, 马良, 陈海燕	(2877)
基于 GIS 和受体模型的枸杞地土壤重金属空间分布特征及来源解析	白一茹, 张兴, 赵云鹏, 王幼奇, 钟艳霞	(2885)
喀斯特地区小尺度农业土壤砷的空间分布及污染评价	汪花, 刘秀明, 刘方, 唐启琳, 王世杰	(2895)
黄土高原不同植被带人工刺槐林土壤团聚体稳定性及其化学计量特征	瞿晴, 徐红伟, 吴旋, 孟敏, 王国梁, 薛蓑	(2904)
秸秆还田配施氮肥对喀斯特农田微生物群落及有机碳矿化的影响	徐学池, 苏以荣, 王桂红, 刘坤平, 胡亚军, 陈香碧, 郑小东, 何寻阳	(2912)
生物炭施用及老化对紫色土中抗生素吸附特征的影响	阴文敏, 关卓, 刘琛, 何杨, 杨飞, 唐翔宇	(2920)
稳定性同位素 DNA-SIP 示踪中性紫色土的氨氧化过程	刘天琳, 王智慧, 闫小娟, 赵永鹏, 贾仲君, 蒋先军	(2930)
纳米银和银离子对土壤中硝化微生物及其氨氧化速率的影响	伍玲丽, 张旭, 舒慧慧, 张丽, 司友斌	(2939)
农田沟道土壤中锰氨氧化 (Mn-ANAMMOX) 过程的探究	陈湜, 李正魁, 覃云斌, 丁帮环, 陈志浩	(2948)
污泥四要素含量对蚯蚓堆肥中氨氧化菌群的影响	吴颖, 黄魁, 夏慧, 陈景阳	(2954)
《环境科学》征订启事		(2929)
《环境科学》征稿简则		(2947)
信息		(2646, 2656, 2857)

北京城区大气金属元素干湿沉降特征

张国忠^{1,2}, 潘月鹏², 田世丽², 王永宏², 熊秋林³, 李广¹, 顾梦娜², 吕雪梅², 倪雪², 何月欣², 黄威², 刘博文², 王跃思^{1,2*}

(1. 甘肃农业大学林学院, 兰州 730070; 2. 中国科学院大气物理研究所, 大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029; 3. 东华理工大学测绘工程学院, 南昌 330013)

摘要: 为研究北京市大气中金属元素的干湿沉降特征, 评估不同观测方法的差异性, 于2014年5月至2015年4月在北京城区同步采集了混合沉降和湿沉降样品. 利用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)测定了样品中19种金属(Na、Mg、Al、K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Cu、Zn、As、Se、Mo、Cd、Sb、Tl、Th和U)的浓度. 结果表明, 混合沉降样品中各金属浓度[7 160.68 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ (Ca) ~ 0.02 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ (Th)]普遍高于湿沉降样品[4 237.74 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ (Ca) ~ 0.01 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ (Th)]. 两种样品中相同金属的富集因子差异较小, 其中Cu、As、Tl、Zn、Cd、Se和Sb的富集因子均大于100, 表明这些重金属主要来自人为污染源. 气团轨迹分析表明, 北京城区降水过程主要受偏南气团的影响, 其中来自西南气团的降水样品中Ca、Mg、Fe、Al、Cu、Mo、U和Th等金属浓度较高, 而来自南部的气团K、Zn、Mn、Sb、Cd和Tl等金属浓度较高. 观测期间大气中金属元素的混合沉降通量变化于3 591.35 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Ca) ~ 0.01 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Th), 湿沉降通量变化于1 847.78 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Ca) ~ 0.01 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Th). 混合沉降与湿沉降差减得到19种金属的干沉降通量变化于1 743.57 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Ca) ~ 0.01 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Th). 大气颗粒物的粒径大小对金属的干湿沉降过程具有重要影响.

关键词: 大气污染; 金属; 干沉降; 湿沉降; 混合沉降

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)06-2493-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201810180

Concurrent Measurement of Wet and Bulk Deposition of Trace Metals in Urban Beijing

ZHANG Guo-zhong^{1,2}, PAN Yue-peng², TIAN Shi-li², WANG Yong-hong², XIONG Qiu-lin³, LI Guang¹, GU Meng-na², LÜ Xue-mei², NI Xue², HE Yue-xin², HUANG Wei², LIU Bo-wen², WANG Yue-si^{1,2*}

(1. College of Forestry, Gansu Agricultural University, Lanzhou 730070, China; 2. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 3. Faculty of Geomatics, East China University of Technology, Nanchang 330013, China)

Abstract: To characterize the dry and wet deposition of atmospheric trace elements in urban Beijing, both active and passive samplers were used to collect bulk and wet sedimentation samples between May 2014 and April 2015. The concentrations of 19 trace elements (Na, Mg, Al, K, Ca, V, Cr, Mn, Fe, Cu, Zn, As, Se, Mo, Cd, Sb, Tl, Th, and U) in the samples were analyzed by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). The results show that the concentrations of metals in bulk deposition samples [7 160.68 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ (Ca)-0.02 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ (Th)] were generally higher than those in wet deposition samples [4 237.74 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ (Ca)-0.01 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ (Th)], but the enrichment factors of each metal in the two kinds of samples were less different. Of note, the enrichment factors of Cu, As, Tl, Zn, Cd, Se, and Sb were all larger than 100, thus indicating that these heavy metals were mainly from anthropogenic sources. The statistical analysis of the air mass trajectory shows that the precipitation chemistry in urban Beijing is mainly affected by southward air flows. The air mass originating from the southwest region always had higher concentrations of Ca, Mg, Fe, Al, Cu, Mo, U, and Th, whereas the air mass from the south had higher concentrations of K, Zn, Mn, Sb, Cd, and Tl. During the observation period, the bulk deposition fluxes of metals varied from 3 591.35 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Ca)-0.01 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Th), and wet deposition fluxes varied from 1 847.78 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Ca)-0.01 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Th). The dry deposition fluxes of the 19 metals varied from 1 743.57 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Ca)-0.01 $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Th). The particle size has important implications in the evaluation of the relative importance of dry deposition versus wet deposition during the scavenging of trace elements in air.

Key words: atmospheric pollution; heavy metal; dry deposition; wet deposition; bulk deposition

与硫酸盐、硝酸盐、铵盐和有机物相比, 大气金属浓度较低, 但由于其危害较大, 是一类备受关注的污染物. 大气中的金属元素多以颗粒态存在, 主要通过化石燃料燃烧、冶金工业排放、扬尘等途径进入大气环境^[1], 经过在大气中的扩散传输最终以干湿沉降的方式返回地表^[2], 进而对排放源周围的生态系统造成持久性影响^[3]. 以往研究认为, 湿沉降是

大气中金属的主要清除途径, 国内外的研究也多以湿沉降为主^[4]. 然而, 近年来也有研究认为干沉降在

收稿日期: 2018-10-23; 修订日期: 2018-12-29

基金项目: 国家重点研发计划项目(2016YFD0800302, 2016YFC0201802)

作者简介: 张国忠(1987~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为大气沉降, 生态与环境, E-mail: zhangguozhong@dq.cern.ac.cn

* 通信作者, E-mail: wys@dq.cern.ac.cn

大气金属的清除过程中占主导地位^[5]. 关于“大气中金属的沉降过程是以干沉降为主还是湿沉降为主”存在一定的争议,而这种争议不仅与研究区域和污染状况有关^[6],还与不同的观测方法有关^[7].

大气金属沉降的观测方法主要是湿沉降和混合沉降两种方法. 混合沉降采样方法是将采样容器完全暴露在大气中被动收集降水. 湿沉降采样方法需要依靠传感器响应降水事件,只在降水事件发生时采集降水. 相比之下,大气金属干沉降采样方法相对缺乏,以往主要以固体^[8]或液体^[9]代用面为主. 固体代用面(干法采样)主要采用玻璃、陶瓷等材料;液体代用面(湿法采样)主要采用水、乙二醇等. 然而,代用面也存在一定的局限性. 比如,黏性介质的代用面往往造成干沉降的高估,而光滑介质的代用面会低估干沉降通量^[10].

为避免代用面法的局限性,探寻一种简便合理的干沉降观测方法尤为重要. 由于被动采样获得的混合沉降样品包含了颗粒物和雨水中的金属,因而可以表征金属的大气沉降总量. 而主动采样获得的雨水样品表征的是湿沉降,通过混合沉降和湿沉降这两种采样方法差减即可间接估算大气中金属以颗粒物相态发生的干沉降通量. 这种间接法曾被应用于湖泊、近海和森林下垫面水溶性无机盐干沉降通量的估算^[11, 12],但很少用于城市地区大气金属干沉降通量的估算研究.

京津冀大气重金属污染比较严重^[13],干湿沉降量较大^[14]. 作为京津冀典型的大城市,北京大气重金属湿沉降研究较多,干沉降的报道较少,且因观测方法不同导致结论各异^[14, 15]. 本文采用主动采样和被动采样两种方法同步收集大气沉降样品(同步观测法),研究北京城区大气中金属的干湿沉降特征,结果有助于认知大气中金属元素的清除过程,评估大气重金属沉降的生态环境效应.

1 材料与方法

1.1 采样方法

采样点位于中国科学院大气物理研究所铁塔分部(39°58'N, 116°22'E),站点周围无局地污染源. 被动采样器(不锈钢,直径 20 cm,高 1.5 m)和主动采样器(APS-2B 型,模压聚乙烯,直径 30 cm,高 1.4 m,长沙湘蓝科学仪器有限公司)均置于办公楼楼顶(楼高约 6 m). 采样严格按照中国气象局颁布的地面气象观测规范进行. 采样时用量筒准确量取降水体积,每种采样法收集的样品各用 2 个 50 mL 的 PET 小瓶冷冻保存,一个月内完成分析. 每次样品采集后,用去离子水(电阻率 18.2 MΩ·cm)

冲洗采样设备,以防止残留对下次样品产生影响. 在 2014 年 5 月~2015 年 4 月观测期内共收集混合沉降 33 个,湿沉降 29 个. 降水量小于 1 mm 时,自动采样器的降水感应器有时不能感应到降水,导致两种采样方式的样品数量不相等.

1.2 分析方法

1.2.1 样品前处理

取解冻后的样品 20mL 并用硝酸(Sigma-aldrich,德国)调节 pH 值约等于 1,静置 24 h 后取其上清液待测.

1.2.2 样品分析

采用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS 7500ce, Agilent)分析样品中的 Be(铍)、Na(钠)、Mg(镁)、Al(铝)、K(钾)、Ca(钙)、V(钒)、Cr(铬)、Mn(锰)、Fe(铁)、Co(钴)、Ni(镍)、Cu(铜)、Zn(锌)、As(砷)、Se(硒)、Mo(钼)、Cd(镉)、Sb(锑)、Ba(钡)、Tl(铊)、Pb(铅)、Th(钍)、U(铀)和 Ag(银)等 25 种金属. 每个样品测试 3 次,根据内标元素 [⁴⁵Sc(钪)、⁷³Ge(锗)、¹¹⁵In(铟)和 ²⁰⁹Bi(铋)、Part #5188-6525, Agilent] 相对标准偏差(RSD)来控制仪器测试的稳定性,要求内标元素 RSD < 3%,否则重新测试样品. 测试过程中每 10 个样品为一组. 每组样品测试结束后,测试一次标准样品,若元素 RSD > 5%,则对仪器进行重新调谐、标定并重测本组样品. 实验分析过程质量控制和质量保障技术方法参考文献[14]. Be、Co、Ni、Ba、Pb 和 Ag 这 6 种金属没有通过数据质量控制,所以本文只讨论 19 种金属的沉降规律.

1.2.3 干沉降通量的估算方法

同步观测法估算大气金属干沉降量的原理是:干沉降量等于总沉降量减去湿沉降量^[16]. 绝大部分金属无气态干沉降^[17],多以颗粒物的相态直接沉降或被雨水清除,所以混合沉降采样法表征的是大气金属沉降总量;主动采样器只在降水事件发生时采集样品,其余时间处于关闭状态,因而排除了干沉降的影响,表征的是湿沉降量. 混合沉降通量减去湿沉降通量在理论上等于两次降水事件之间的干沉降量. 干沉降的估算公式如下:

$$df(i) = tf(i) - wf(i) \quad (1)$$

式中, $df(i)$ 为金属 i 在相邻两次降雨事件之间干沉降量, $tf(i)$ 和 $wf(i)$ 分别表示金属 i 混合沉降量及湿沉降量, $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2}$.

假定在两次降水之间污染物以干沉降的方式被均匀清除,则每日的金属干沉降量计算公式如下:

$$Df(i) = df(i)/t \quad (2)$$

式中, $Df(i)$ 为金属 i 在相邻两次降水过程之间日均

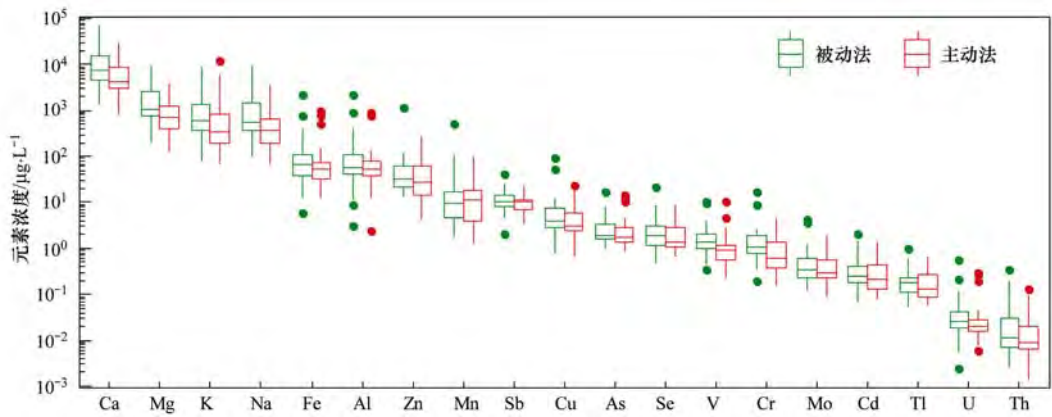
干沉降通量, $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, t 为相邻两次降水过程间隔时间, d. 分别累加全年降水 $\text{df}(i)$ 、 $\text{tf}(i)$ 和 $\text{wf}(i)$ 得到金属 i 年干沉降通量、年总沉降通量和年湿沉降通量; $\text{mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$.

2 结果与讨论

2.1 混合沉降和湿沉降中金属元素的浓度水平及富集特征

图 1 为混合沉降和湿沉降样品浓度统计. 可以看出, 两种样品中金属浓度大小次序一致: Ca 浓度

最高, 其次是 Mg、K、Na、Fe 和 Al, 而 Zn、Cu、As、Cr 和 Cd 等重金属浓度较低(表 1). 然而, 混合沉降各金属浓度普遍高于湿沉降. 这是因为混合沉降样品中金属浓度水平不但受湿沉降影响, 也受干沉降的影响. 另外, 混合沉降样品金属浓度的离群值比湿沉降多. 通过对逐次降水样品分析, 发现当降水间隔天数增多时, 干沉降量相应增大; 并且降水量较小时, 降水对金属浓度的稀释作用减弱^[5]; 两者共同导致混合沉降样品的金属浓度显著高于同期采集的湿沉降样品.



箱体表示正常范围(上限、上四分位数、中位数、下四分位数以及下限);
点表示离群值(大于上四分位数 1.5 倍的四分位距或小于下四分位数 -1.5 倍的四分位距)

图 1 不同采样方式大气沉降样品金属浓度

Fig. 1 Concentration of trace elements in precipitation by different sampling methods

表 1 不同采样方式沉降样品金属浓度统计量/ $\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$

Table 1 Statistics for precipitation trace elemental concentrations in bulk and wet depositions/ $\mu\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$

元素	被动法			主动法		
	加权平均值	最大值	最小值	加权平均值	最大值	最小值
Ca	7 160.68 ± 16 179.02	70 630.00	1 379.00	4 237.74 ± 6 831.48	29 920.00	833.90
Mg	1 148.6 ± 2 266.2	9 577.00	189.30	619.56 ± 965.74	3 862.00	131.10
K	889.5 ± 1 957.73	8 531.00	81.45	641.17 ± 2 390.09	11 930.00	68.81
Na	619.26 ± 1 784.03	9 410.00	101.20	324.29 ± 750.03	3 520.00	65.67
Fe	82.78 ± 416.1	2 205.00	5.76	75.33 ± 223.37	949.90	12.04
Al	79.69 ± 419.42	2 167.00	3.02	80.39 ± 245.25	909.10	2.48
Zn	41.49 ± 201.47	1 116.00	13.16	40.39 ± 57.86	294.00	4.16
Mn	14.88 ± 91.99	497.10	1.69	14.4 ± 23.23	98.36	1.30
Sb	12.57 ± 7.42	40.95	2.05	11.82 ± 6.09	24.07	3.31
Cu	4.94 ± 18.74	93.63	0.78	3.57 ± 5.5	23.39	0.66
As	2.3 ± 3.23	17.48	0.97	2.32 ± 3.42	14.46	0.85
Se	1.95 ± 4.18	22.49	0.49	1.78 ± 1.92	8.50	0.67
V	1.46 ± 2.38	10.61	0.34	1.13 ± 2	10.14	0.23
Cr	1.29 ± 3.33	17.20	0.15	0.9 ± 1.18	4.61	0.18
Mo	0.41 ± 0.96	4.37	0.12	0.3 ± 0.46	1.97	0.09
Cd	0.27 ± 0.44	2.11	0.07	0.3 ± 0.31	1.39	0.08
Tl	0.18 ± 0.2	1.01	0.05	0.17 ± 0.15	0.66	0.06
U	0.03 ± 0.1	0.55	0.002 5	0.03 ± 0.07	0.29	0.001 0
Th	0.02 ± 0.07	0.36	0.000 9	0.01 ± 0.03	0.13	0.001 4

为了解沉降样品中各金属的污染水平, 以 Al 为参比, 计算各金属的富集因子(EF)^[18], 计算公式为:

$$\text{EF}(i) = (c_i/c_{\text{Al}})_{\text{precipitation}} / (c_i/c_{\text{Al}})_{\text{crust}} \quad (3)$$

式中, $\text{EF}(i)$ 为金属 i 的富集因子, $(c_i/c_{\text{Al}})_{\text{precipitation}}$ 为沉降样品中金属 i 与 Al 的加权平均浓度之比,

$(c_i/c_{Al})_{crust}$ 为地壳中金属 i 与 Al 浓度之比值. 值得注意的是, 本研究对降水样品用硝酸酸化 ($pH \approx 1$), 在一定程度上不能完全提取沉降样品中的金属元素, 会低估某些金属的浓度水平. 但该方法对重金属的提取效果要优于矿物元素, 因而本研究用富集因子可以近似表征重金属元素的富集程度.

为排除背景值空间异质性的影响^[19], 选择北京市各金属的土壤背景值进行 EF 估算. 金属富集

因子计算结果如图 2 所示, 混合沉降和湿沉降同一金属 EF 在同一量级范围内, 其中 Fe、Al、Th 和 U 的 $EF < 10$, 表明这 4 种金属富集不明显, 主要来自于地壳源; Cr、V、Mn、Na、K、Mg 和 Mo 等金属 EF 值范围在 $10 \sim 100$, 呈现中度富集; Cu、As、Ca、Tl、Zn、Cd、Se 和 Sb 等金属的 $EF > 100$, 尤其是 Cd、Se 和 Sb 这 3 种金属的 $EF > 1\,000$, 表明这些重金属已经严重富集, 主要来自人为污染源.

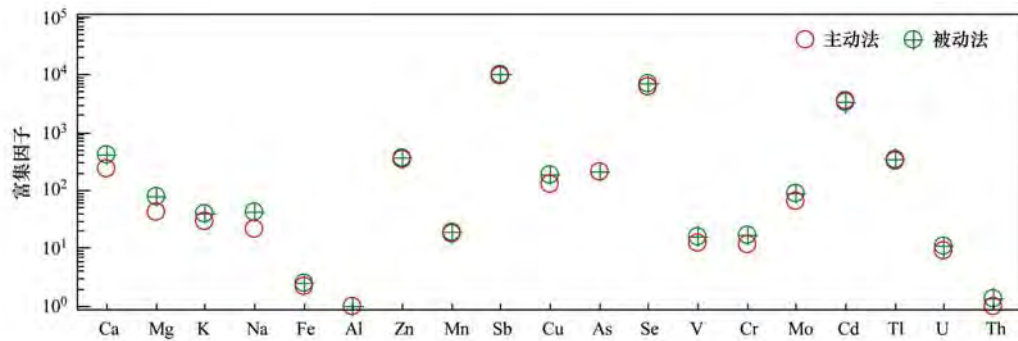


图 2 不同采样方式沉降样品金属富集因子

Fig. 2 Enrichment factors of trace elements in bulk and wet deposition

2.2 混合沉降和湿沉降金属浓度的季节变化及来源分析

混合沉降和湿沉降样品中各金属浓度的季节变化如图 3 所示. 由于本研究期间冬季无降水事件发生, 图 3 只对比分析了春、夏和秋这 3 个季节的结果. 除 K、Na、Ca 和 Mg 外, 其它金属都呈现出春季最高, 夏秋较低的季节变化趋势. 春季高值可能

是由于燃煤取暖和扬尘源排放的金属显著高于其它季节. 夏秋季低值主要是由于北京地处温带季风气候, 夏季和秋季降水量较大, 稀释了各元素的浓度.

大气沉降样品金属浓度的高低不仅受降水量大小的影响, 在一定程度上还受到区域污染的影响. 为进一步探明周边区域传输对大气沉降样品中金属

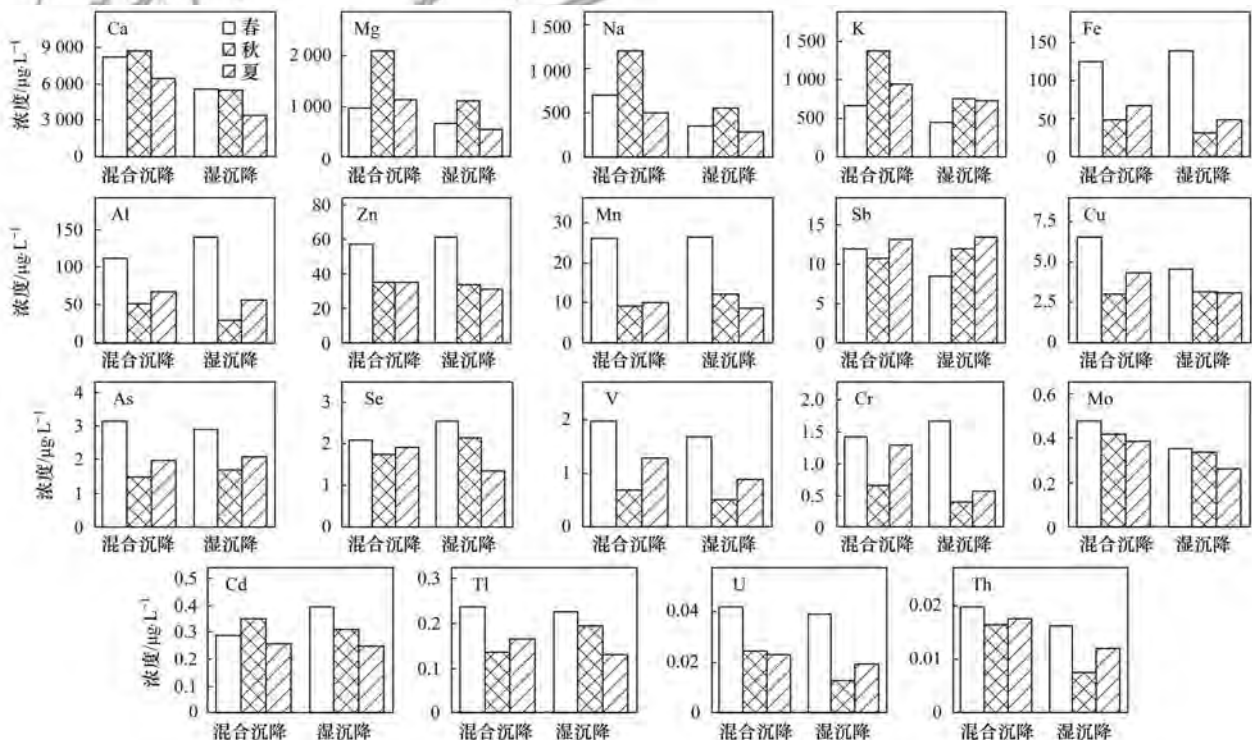


图 3 混合沉降和湿沉降样品金属浓度的季节变化

Fig. 3 Seasonal variation of elemental concentrations in bulk and wet deposition

浓度的影响,通过 TrajStat 后向轨迹模型^[20]聚类分析了不同类型气团控制下湿沉降样品的金属浓度特征(图 4)。研究期间,影响降水样品中金属浓度的气团为:北部气团>西部气团>西南气团或南部气团>东部气团。北部气团控制下湿沉降样品中绝大多数金属浓度比东部气团控制下高 1 个数量级,这一差异与不同类型气团的降水量[图 4(c)]和气团所携带污染物量有关。

从图 4 可以看出,西南气团和南部气团降水量

相当,降水中 Mg、As、Fe 和 Mn 的浓度也相当。但其它的金属在两个气团形成的降水中浓度差异很大。比如,来自西南气团的降水中 Ca、Al、Cu、Mo、U 和 Th 浓度比南部气团高,这可能是由于来自西部的气团携带了大量矿尘。而 K、Na、Zn、Mn、Sb、Cd 和 Tl 金属在南部气团形成的降水中浓度比西南气团高,可能是由于南部气团途经山东西北部 and 河北东南部,而这些地区是重金属排放较高的区域^[21]。

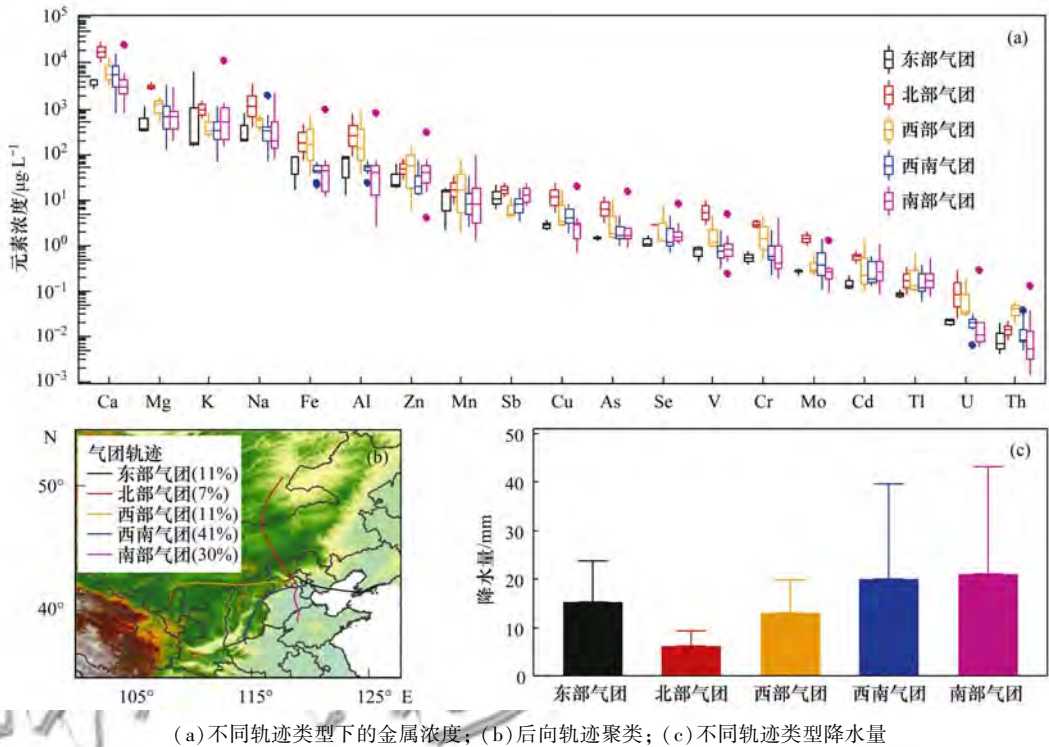


图 4 气团后向轨迹聚类及湿沉降金属浓度统计

Fig. 4 Precipitation and trace element concentrations under different air mass trajectories

2.3 大气金属元素总沉降、干沉降和湿沉降特征对比

图 5 和图 6 分别表示大气金属逐日及逐次沉降通量(根据金属元素在颗粒物不同粒径段的富集类型选取代表性元素 Na、Ca、As、K、Cu 和 Cd)。可以看出,2015 年 3 月 31 日绝大多数金属元素的干沉降在混合沉降样品中的占比为全年最大值,这是因为 2014 年 10 月 8 日至 2015 年 3 月 31 日期间北京无有效降水,降水间隔较长,金属的干沉降量增多。地中海地区也观测到类似的现象^[5]。通过同步观测法估算的年尺度总沉降、湿沉降和干沉降通量分别为 $3\,591.35\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Ca) $\sim 0.01\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Th), $1\,847.78\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Ca) $\sim 0.01\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Th) 和 $1\,743.57\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Ca) $\sim 0.01\text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$ (Th)。值得注意的是,在自然状态下的干沉降过程,不仅与金属的粒径分布和浓度有关,还会受到地表粗糙度和植被覆盖等

下垫面性质的影响^[10]。因此,本研究并不能完全量化自然状态下的干沉降,可能会存在一定程度的低估。

表 2 列出了国内外典型地区近 30 年重金属沉降通量观测结果。可以看出,北京市 Cd、Cu 和 V 等金属的大气沉降量处于中等水平,而 Zn、As 和 Mn 这 3 种金属沉降量明显较高。与国内其它地区相比,北京大气中金属的沉降量偏低,但处于同一范围。与以往北京的研究结果相比,本研究各金属的沉降通量较小,这可能与不同时间段的污染状况和采样方式有关^[14, 15]。

图 7 为 19 种金属干湿沉降比例。其中 Na、Mg、Th、Ca、Cr 和 Cu 等金属干沉降通量占总沉降通量的比例均大于 40%; Al、Mn、U、V、Fe、K 和 Mo 这 7 种金属的干沉降占总沉降比例为 23.9% $\sim$ 39.1%; Se、Zn、Tl、Sb、As 和 Cd 等金属干沉降占总沉降比例小于 20%。当某金属主要富集在粗粒径

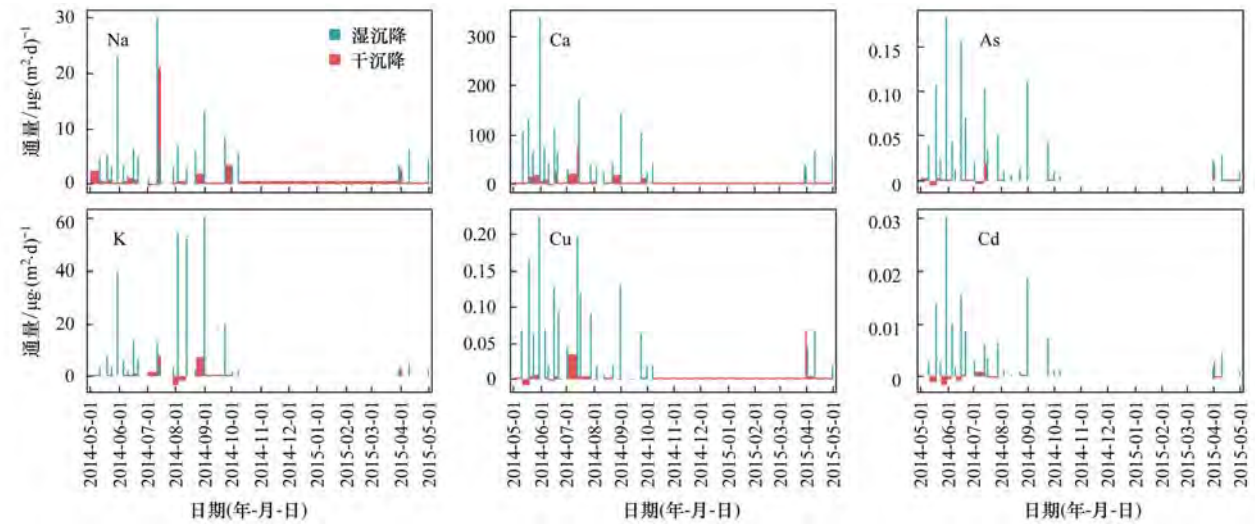


图 5 大气金属逐日湿沉降和干沉降通量

Fig. 5 Dry and wet deposition fluxes of trace elements

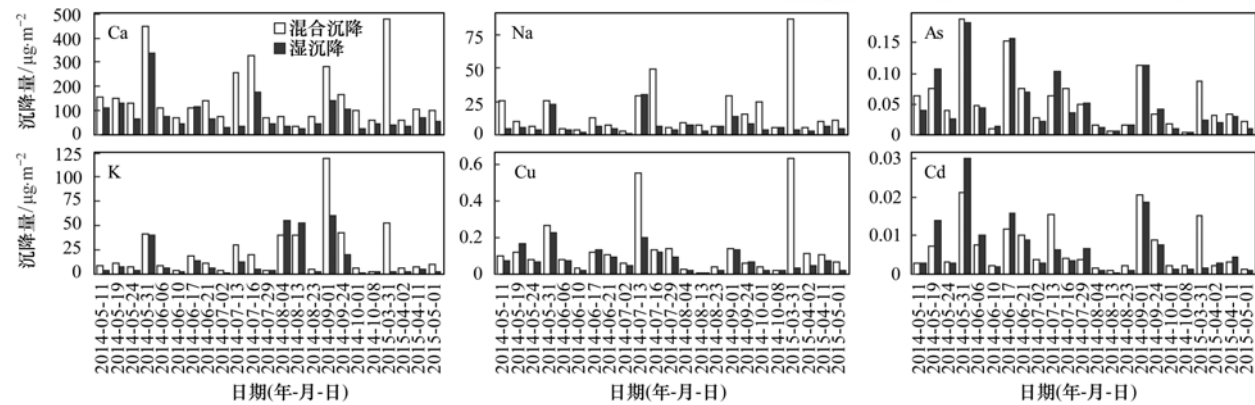


图 6 大气金属逐次混合和湿沉降量

Fig. 6 Bulk and wet deposition fluxes of trace elements of each sample

表 2 国内外大气金属沉降通量/ $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$

Table 2 Atmospheric deposition fluxes of trace elements within and outside China/ $\text{mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$

研究区域	观测年份	样品类型	Cd	Cu	Zn	As	Mn	V	文献
法国南特	2014	混合沉降	/	1.31	2.00	0.13	/	0.21	[10]
科西嘉岛	2008 ~ 2010	混合沉降	/	1.06	5.7	0.14	3.7	0.4	[22]
芬兰维罗拉赫蒂	2007	混合沉降	0.04	1	3.8	0.09	2.3	0.36	[23]
保加利亚黑海	2008 ~ 2009	混合沉降	0.02	17.8	15.2	/	2.01	1.1	[24]
珠江三角洲	2001 ~ 2002	混合沉降	/	18.60	104	/	/	2.1	[25]
华北地区	2007 ~ 2010	干沉降 + 湿沉降	0.54	15.1	106.5	4.3	85.1	5.35	[14]
大亚湾	2015 ~ 2017	干沉降 + 湿沉降	0.2	4.7	94	3.14	53.4	2.14	[26]
北京市	2005 ~ 2006	混合沉降	0.23	14.2	54.4	2.9	111.2	/	[15]
北京市	2007 ~ 2010	干沉降 + 湿沉降	0.46	19.8	86.5	3.73	83	3.73	[14]
北京市	2014 ~ 2015	混合沉降 + 湿沉降	0.15	3.03	24.5	1.24	9.38	0.80	本研究

1) “/”表示无观测数据

段(粒径 $> 2.1\ \mu\text{m}$), 易通过重力作用发生沉降^[27], 所以干沉降所占的比例较高, 如 Ca 和 Mg 等; 相反, 当某金属主要富集在细粒径段 ($< 2.1\ \mu\text{m}$), 颗粒物通过重力作用沉降的作用减弱, 而绝大多数重金属金属都富集在细颗粒物中, 主要以湿沉降的形式从大气中清除, 如 As 和 Cd 等;

当金属呈现双峰型或者多峰型粒径时, 干沉降占总沉降比例处于前面所述的粗粒径段富集和细粒径段富集的两种类型的金属之间, 如 Al 和 Mn 等^[13]. 综上所述, 干/湿沉降对于大气金属的清除作用在一定程度上取决于金属富集在哪一个粒径段.

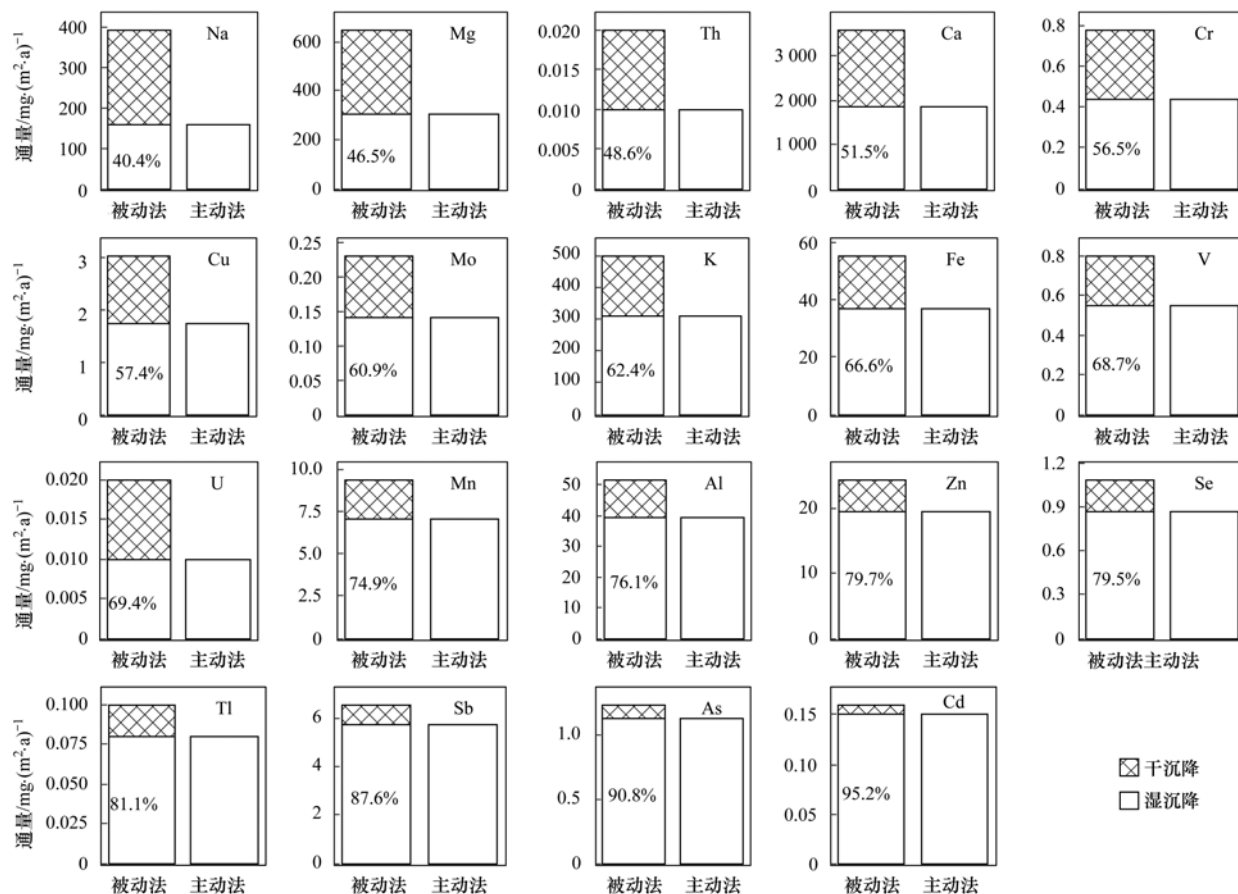


图7 大气中金属元素的混合沉降和湿沉降通量

Fig. 7 Bulk and wet deposition fluxes of trace elements

3 结论

(1)混合沉降样品各金属浓度普遍高于湿沉降样品. 两种样品各金属富集因子差异较小, 除 Fe、Al、Th 和 U 等元素外, 其余金属都有不同程度的污染富集, 特别是 As、Cd、Se 和 Sb 等重金属呈现严重富集.

(2)北京市夏秋季混合沉降样品和湿沉降样品中金属浓度较低, 而春季浓度较高; 不同降水气团控制下的湿沉降样品中金属的污染特征差异明显, 主要与气团所经过的区域有关(污染源区不同).

(3)同步观测法估算北京大气金属干沉降量范围为 $1743.57 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ (Ca) $\sim 0.01 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ (Th). 干/湿沉降对于大气金属的清除作用与颗粒物的粒径有关, 粒径越小的金属越容易以湿沉降方式被清除.

致谢:感谢中国科学院大气物理研究所刘广仁老师在实验观测期间提供的帮助.

参考文献:

- [1] 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.
- [2] 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.

- [3] Al-Khashman O A, Jaradat A Q, Salameh E. Five-year monitoring study of chemical characteristics of Wet atmospheric precipitation in the southern region of Jordan[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2013, **185**(7): 5715-5727.
- [4] 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.
- [5] Muezzinoglu A, Cizmecioglu S C. Deposition of heavy metals in a Mediterranean climate area[J]. *Atmospheric Research*, 2006, **81**(1): 1-16.
- [6] Grantz D A, Garner J H B, Johnson D W. Ecological effects of particulate matter[J]. *Environment International*, 2003, **29**(2-3): 213-239.
- [7] Breuning-Madsen H, Awadzi T W. Harmattan dust deposition and particle size in Ghana[J]. *CATENA*, 2005, **63**(1): 23-38.
- [8] Paode R D, Sofuoglu S C, Sivadechathep J, *et al.* Dry Deposition fluxes and mass size distributions of Pb, Cu, and Zn measured in Southern Lake michigan during AEOLOS [J]. *Environmental Science & Technology*, 1998, **32**(11): 1629-1635.
- [9] Sakata M, Marumoto K. Dry deposition fluxes and deposition velocities of trace metals in the Tokyo metropolitan area measured with a water surface sampler[J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(7): 2190-2197.

- [10] Omrani M, Ruban V, Ruban G, *et al.* Assessment of atmospheric trace metal deposition in urban environments using direct and indirect measurement methodology and contributions from wet and dry depositions [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **168**: 101-111.
- [11] Lee D S, Longhurst J W S. A comparison between wet and bulk deposition at an urban site in the U. K [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 1992, **64**(3-4): 635-648.
- [12] Tsai Y I, Kuo S C, Young L H, *et al.* Atmospheric dry *plus* wet deposition and wet-only deposition of dicarboxylic acids and inorganic compounds in a coastal suburban environment [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **89**: 696-706.
- [13] Tian S L, Pan Y P, Wang Y S. Size-resolved source apportionment of particulate matter in urban Beijing during haze and non-haze episodes [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2015, **15**(6): 9405-9443.
- [14] Pan Y P, Wang Y S. Atmospheric wet and dry deposition of trace elements at 10 sites in Northern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(2): 951-972.
- [15] 丛源, 陈岳龙, 杨忠芳, 等. 北京平原区元素的大气干湿沉降通量 [J]. *地质通报*, 2008, **27**(2): 257-264.
Cong Y, Chen Y L, Yang Z F, *et al.* Dry and wet atmospheric deposition fluxes of elements in the plain area of Beijing Municipality, China [J]. *Geological Bulletin of China*, 2008, **27**(2): 257-264.
- [16] Balestrini R, Arisci S, Brizzio M C, *et al.* Dry deposition of particles and canopy exchange: comparison of wet, bulk and throughfall deposition at five forest sites in Italy [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(4): 745-756.
- [17] Sparks J P, Walker J, Turnipseed A T, *et al.* Dry nitrogen deposition estimates over a forest experiencing free air CO₂ enrichment [J]. *Global Change Biology*, 2008, **14**(4): 768-781.
- [18] Duce R A, Hoffman G L, Zoller W H. Atmospheric trace metals at remote northern and southern hemisphere sites: pollution or natural? [J]. *Science*, 1975, **187**(4171): 59-61.
- [19] Hernandez L, Probst A, Probst J L, *et al.* Heavy metal distribution in some French forest soils: evidence for atmospheric contamination [J]. *Science of the Total Environment*, 2003, **312**(1-3): 195-219.
- [20] Wang Y Q, Zhang X Y, Draxler R R. TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data [J]. *Environmental Modelling & Software*, 2009, **24**(8): 938-939.
- [21] 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.
- [22] Desboeufs K, Bon Nguyen E, Chevaillier S, *et al.* Fluxes and sources of nutrient and trace metal atmospheric deposition in the northwestern Mediterranean [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(19): 14477-14492.
- [23] Kyllönen K, Karlsson V, Ruoho-Airola T. Trace element deposition and trends during a ten year period in Finland [J]. *Science of the Total Environment*, 2009, **407**(7): 2260-2269.
- [24] Theodosi C, Stavrakakis S, Koulaki F, *et al.* The significance of atmospheric inputs of major and trace metals to the Black Sea [J]. *Journal of Marine Systems*, 2013, **109-110**: 94-102.
- [25] Wong C S C, Li X D, Zhang G, *et al.* Atmospheric deposition of heavy metals in the Pearl River Delta, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2003, **37**(6): 767-776.
- [26] 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.
- [27] Staelens J, De Schrijver A, van Avermaet P, *et al.* A comparison of bulk and wet-only deposition at two adjacent sites in Melle (Belgium) [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(1): 7-15.

CONTENTS

Concurrent Measurement of Wet and Bulk Deposition of Trace Metals in Urban Beijing	ZHANG Guo-zhong, PAN Yue-peng, TIAN Shi-li, <i>et al.</i> (2493)
Concentration and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} Collected in Urban and Suburban Areas of Beijing	XU Jing, LI Xing-ru, ZHANG Lan, <i>et al.</i> (2501)
Secondary Aerosol Formation in Urban Shanghai: Insights into the Roles of Photochemical Oxidation and Aqueous-Phase Reaction	GAO Jie, QIAO Li-ping, LOU Sheng-rong, <i>et al.</i> (2510)
Secondary Inorganic Pollution Characteristics During Heavy Pollution Episodes of 2017 in Tianjin	XU Hong, XIAO Zhi-mei, CHEN Kui, <i>et al.</i> (2519)
Characterization of PM ₁₀ and PM _{2.5} Source Profiles for Emissions from Nonmetal Mineral Products Manufacturing Processes	ZHAO Xue-yan, YU Gao-feng, WANG Xin-wu, <i>et al.</i> (2526)
Characteristics of Component Particle Size Distributions of Particulate Matter Emitted from a Waste Incineration Plant	YU Zhuo-jun, WU Jian-hui, ZHANG Yu-fen, <i>et al.</i> (2533)
Characteristics and Source Apportionment of Carbon Components in Road Dust PM _{2.5} and PM ₁₀ During Spring in Tianjin Derived by Using the Quadrat Sampling Method	MA Yan, JI Ya-qin, GUO Ji-liang, <i>et al.</i> (2540)
Urban Aerosol Hygroscopicity During Haze Weather	YANG Su-ying, TIAN Zhi-jie, ZHANG Tie-ning, <i>et al.</i> (2546)
Atmospheric Pollution Characteristics and Inhalation Exposure Risk of Nitrated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in PM _{2.5} at the Ningdong Energy and Chemical Industry Base, Northwest China	LIU Pan-liang, JU Yuan-li, MAO Xiao-xuan, <i>et al.</i> (2556)
Health Benefit Evaluation for PM ₁₀ and PM _{2.5} Pollution Control in Zhengzhou, China, 2014-2016	HAN Shi-jie, WANG Jia, YAN Qi-she, <i>et al.</i> (2565)
Spatial-temporal Distribution of Aerosol Optical Depth and Its Main Influence Types in China During 1990-2017	LIU Ying, LIN Ai-wen, QIN Wen-min, <i>et al.</i> (2572)
Research on the Pollution Characteristics and Causality of Haze-sand Air Pollution in Beijing in Spring	WANG Yao-ting, LI Qing-chun, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (2582)
Vessel Emission Inventories and Emission Characteristics for Inland Rivers in Jiangsu Province	XU Wen-wen, YIN Cheng-qi, XU Xue-ji, <i>et al.</i> (2595)
Atmospheric Nitrogen Dioxide, Nitric Acid, Nitrate Nitrogen Concentrations, and Wet and Dry Deposition Rates in a Double Rice Region in Subtropical China	OUYANG Xiu-qin, WANG Bo, SHEN Jian-lin, <i>et al.</i> (2607)
Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation and Moisture Sources in the Headwaters of the Yangtze River	WANG Shao-yong, WANG Qiao-li, WU Jin-kui, <i>et al.</i> (2615)
Historical Trends of Atmospheric Trace Metal Pollution in Northern Guizhou Province as Reconstructed from Alpine Lake Sediments	LIANG Meng-yao, LIU En-feng, ZHANG En-lou, <i>et al.</i> (2624)
Distribution Characteristics of Microplastics in Qingdao Coastal Beaches	LUO Ya-dan, LIN Qian-hui, JIA Fang-li, <i>et al.</i> (2631)
Pollution Characteristics of Microplastics in Migratory Bird Habitats Located Within Poyang Lake Wetlands	LIU Shu-li, JIAN Min-fei, ZHOU Long-yin, <i>et al.</i> (2639)
Use of the Nitrogen/Carbon Ratio (N/C) and Two End-Member Sources Mixing Model to Identify the Origins of Dissolved Organic Matter from Soils in the Water-Level Fluctuation Zones of the Three Gorges Reservoir	JIANG Tao, JOERI Kaal, LIANG Jian, <i>et al.</i> (2647)
Effects of Photosynthesis of Submerged Aquatic Plants on CDOM in a Karst Water System: A Case Study from Xueyu Cave, Chongqing, China	FAN Jia-xin, JIANG Yong-jun, HE Qiu-fang, <i>et al.</i> (2657)
Indicators of Groundwater Evolution Processes Based on Hydrochemistry and Environmental Isotopes: A Case Study of the Dongyuan Drinking Water Source Area in Ji'nan City	ZHANG Ya, SU Chun-li, MA Yan-hua, <i>et al.</i> (2667)
Water Quality Analysis and Health Risk Assessment for Groundwater at Xiangshui, Chongzuo	ZHOU Jin-mei, JIANG Zhong-cheng, XU Guang-li, <i>et al.</i> (2675)
Chemical Characteristics of Groundwater and Material Sources Analysis in Buckwheat Field, Yunnan Province	ZHANG Yong, GUO Chun-qing, ZHU Yan-guang, <i>et al.</i> (2686)
C and N Transport Flux and Associated Changes of Water Quality Parameters from a Multiscale Subtropical Watershed in the Poyang Lake Area	LU Yao, GAO Yang, JIA Jun-jie, <i>et al.</i> (2696)
Pollutant Transport Analysis and Source Apportionment of the Entire Non-point Source Pollution Process in Combined Sewer Systems	FANG Jin-xiu, XIE Wen-xia, ZHU Yu-xi, <i>et al.</i> (2705)
Nitrogen Removal Efficiencies from Road Runoff by Dry Grass Swales with a Shallow Substrate Layer	DUAN Jin-kai, LI Tian, ZHANG Jia-wei (2715)
Migration Characteristics of Manganese During Rainfall Events and Its Impacts on Water Quality in a Drinking Water Source Reservoir	DENG Li-fan, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2722)
Potential for Phosphorus Uptake by Bed Sediments and Its Response to Carbon Additions in the Shiwuli River, Chaohu Lake Basin	LI Ru-zhong, BAO Qin, ZHANG Rui-gang, <i>et al.</i> (2730)
Sources and Distribution of Phosphorus in Sediments of the Jinpen Reservoir	MAO Xue-jing, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2738)
Water Quality Characteristics and Distribution of Bacterial Communities During Thermal Stratification in the Miyun Reservoir	WANG Yu-bing, WANG Xiao-yan, PANG Shu-jiang, <i>et al.</i> (2745)
Relationship Between the Vertical Distribution of Nutrients and Bacterial Community Structures in Sediment Interstitial Waters of Stratified Reservoirs with Different Water Temperatures	WANG Shen, ZHANG Si-si, XU You, <i>et al.</i> (2753)
Accumulation Characteristics and Release Regularity of Nutrients in Sediments of a Surface-flow Constructed Wetland After Long-term Operation	ZHU Yi-meng, JIANG Cui-ling, ZHU Li-qin, <i>et al.</i> (2764)
Application of Goethite Modified Biochar for Arsenic Removal from Aqueous Solution	ZHU Si-hang, ZHAO Jing-jing, YIN Ying-jie, <i>et al.</i> (2773)
Effects and Mechanisms of Methyl Orange Removal from Aqueous Solutions by Modified Rice Shell Biochar	SHI Yue-yue, SHAN Riu, YUAN Hao-ran (2783)
Performance and Membrane Fouling Properties in an Anaerobic Membrane Bioreactor for Salty Wastewater	YAN Huan-xi, XU Zhen-yu, JIN Chun-ji, <i>et al.</i> (2793)
Pollution Characteristics and Enhanced Removal of Organic Phosphorus in Effluent from a Wastewater Treatment Plant	WANG Xiao-dong, WANG Zi-wen, CHEN Ming-fei, <i>et al.</i> (2800)
Effects of Alkalinity on Partial Nitrification in a Zeolite Sequencing Batch Reactor	WANG Rui-xin, CHEN Jing, WANG Xiao-jun, <i>et al.</i> (2807)
Effects of the Physical Structure of Activated Sludge on Respiration Processes	GUO Yao, LI Zhi-hua, YANG Cheng-jian, <i>et al.</i> (2813)
Performance of an Aerobic Granular Reactor Treating Biogas Slurry from Pig Farm	LIAO Jie, YE Jia-qi, ZENG Zhi-chao, <i>et al.</i> (2821)
Spatial-temporal Characteristics and Driving Factors of Greenhouse Gas Emissions from Rivers in a Rapidly Urbanizing Area	LIU Ting-ting, WANG Xiao-feng, YUAN Xing-zhong, <i>et al.</i> (2827)
Influences of Biochar on Pollutant Removal Efficiencies and Nitrous Oxide Emissions in a Subsurface Flow Constructed Wetland	DENG Chao-ren, LIANG Yin-kun, HUANG Lei, <i>et al.</i> (2840)
Effects of the Veterinary Antibiotic Sulfamethazine on N ₂ O Emissions and the Associated Microbiological Mechanism in a Rice Field	WU Jie, LI Zhi-lin, XU Jia-ying, <i>et al.</i> (2847)
Effects of Different Levels of Nitrogen Fertilization on Soil Respiration Rates and Soil Biochemical Properties in an Alfalfa Grassland	HU Wei, ZHANG Ya-hong, LI Peng, <i>et al.</i> (2858)
Spatial Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils from a Typical Urbanized Area	HE Bo, ZHAO Hui, WANG Tie-yu, <i>et al.</i> (2869)
Accumulation of Heavy Metals in Agricultural Soils and Crops from an Area with a High Geochemical Background of Cadmium, Southwestern China	LIU Yi-zhang, XIAO Tang-fu, XIONG Yan, <i>et al.</i> (2877)
Spatial Distribution Characteristics and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in Chinese Wolfberry Land Based on GIS and the Receptor Model	BAI Yi-ru, ZHANG Xing, ZHAO Yun-peng, <i>et al.</i> (2885)
Spatial Distribution and Pollution Assessment of As at a Small Scale in Agricultural Soils of the Karst Region	WANG Hua, LIU Xiu-ming, LIU Fang, <i>et al.</i> (2895)
Soil Aggregate Stability and Its Stoichiometric Characteristics in <i>Robinia pseudoacacia</i> Forest within Different Vegetation Zones on the Loess Plateau, China	QU Qing, XU Hong-wei, WU Xuan, <i>et al.</i> (2904)
Straw Returning Plus Nitrogen Fertilizer Affects the Soil Microbial Community and Organic Carbon Mineralization in Karst Farmland	XU Xue-chi, SU Yi-rong, WANG Gui-hong, <i>et al.</i> (2912)
Effects of Biochar Application and Ageing on the Adsorption of Antibiotics in Purple Soil	YIN Wen-min, GUAN Zhuo, LIU Chen, <i>et al.</i> (2920)
Ammonia Oxidation in a Neutral Purple Soil Measured by the ¹³ C-DNA-SIP Method	LIU Tian-lin, WANG Zhi-hui, YAN Xiao-juan, <i>et al.</i> (2930)
Effects of Silver Nanoparticles and Silver Ions on Soil Nitrification Microorganisms and Ammonoxidation	WU Ling-li, ZHANG Xu, SHU Kun-hui, <i>et al.</i> (2939)
Insight into the Process of Mn-ANAMMOX in Soils of Agricultural Drainage Ditches	CHEN Shi, LI Zheng-kui, QIN Yun-bin, <i>et al.</i> (2948)
Effects of Different Concentrations of Tetracycline in Sludge on Ammonia Oxidizers During Vermicomposting	WU Ying, HUANG Kui, XIA Hui, <i>et al.</i> (2954)