

百方知库
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, 刘水桥, 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 PM₁₀ 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 NO₂、HNO₃ 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, 贾珺杰, 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附潜力及对外源碳的响应 李如忠, 鲍琴, 张瑞钢, 陈志 (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, 许允, 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气体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_x 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 N₂O 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)

西南高镉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, 薛蓁 (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, 舒昆慧, 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, 丁帮琛, 陈志浩 (2948)

污泥四环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)

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¹, 刘恩峰^{1,2*}, 张恩楼², 纪明², 李小林¹

(1. 山东师范大学地理与环境学院, 人地协调与绿色发展山东省高校协同创新中心, 济南 250358; 2. 中国科学院南京地理与湖泊研究所湖泊与环境国家重点实验室, 南京 210008)

摘要: 大气重金属污染是全球面临的主要环境问题之一, 受监测资料的局限, 目前我国在大气重金属污染的历史过程及其对偏远地区地表环境的影响方面的研究还较为薄弱. 通过对贵州北部梵净山顶沉积物中金属元素含量和 Pb 同位素的分析, 研究了近 400 年来 Cd、Cr、Cu、Hg、Ni、Pb 和 Zn 等大气污染的历史过程. 公元约 1800 年之前, 沉积物中金属元素含量较为稳定; 1800 年以来, Cr、Cu、Ni 和 Zn 等含量总体呈先增加后降低的趋势; 而 Cd、Hg 和 Pb 含量逐渐增加. 富集系数与²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 结果表明, Cd、Pb 和 Hg 是典型的大气污染元素; Hg 污染开始于公元 1880 年前后, Cd 和 Pb 污染开始于 20 世纪 50 年代, 近年来污染程度均逐渐加重. 沉积记录反映的贵州北部梵净山地区目前大气 Hg 污染水平与我国东部其他远离人类活动直接影响的地区相当, 但远高于欧美及青藏高原等地区; 不同地区间 Cd 与 Pb 污染水平具有较大的差异. 梵净山地区大气 Hg 污染可能受到全球和区域污染排放的共同影响, Cd 和 Pb 污染主要来自于区域有色金属冶炼及燃煤等释放.

关键词: 重金属; 大气污染; 历史过程; 来源; 湖泊沉积物; 梵净山地区

中图分类号: X142 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)06-2624-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.201810077

Historical Trends of Atmospheric Trace Metal Pollution in Northern Guizhou Province as Reconstructed from Alpine Lake Sediments

LIANG Meng-yao¹, LIU En-feng^{1,2*}, ZHANG En-lou², JI Ming², LI Xiao-lin¹

(1. Collaborative Innovation Center of Human-Nature and Green Development in Universities of Shandong, College of Geography and Environment, Shandong Normal University, Jinan 250358, China; 2. State Key Laboratory of Lake Science and Environment, Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China)

Abstract: Atmospheric trace metal pollution is a striking environmental problem globally. Because of the limitations in monitoring data, our knowledge of the historical processes and sources of atmospheric trace metal pollution in China and its influence on remote terrestrial environmental quality is limited. The historical variations in atmospheric trace metal (Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, and Zn) pollution during the past 400 years in the Fanjing Mountain area, northern Guizhou Province were studied by analyzing the metal concentrations and Pb isotopes in lake sediments. The results showed that concentrations of all metals in the sediments were relatively constant before 1800 (A. D.). After 1800, concentrations of Cr, Cu, Ni, and Zn increased at first and then decreased, while concentrations of Hg, Cd, and Pb generally increased gradually over the most recent century and subsequent decades. The enrichment factor and ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb analysis results indicated that Cd, Pb, and Hg were typical pollutants. Pollution of Hg began at around 1880 (A. D.), and pollution of Cd and Pb has occurred since the 1950s; all pollutants exhibited aggravated trends in recent times. Pollution levels of Hg in recent years in the Fanjing Mountain area were comparable to those in other remote areas of East China, but levels were lower than those in Europe, America, and the Tibetan Plateau. In contrast, pollution levels of Cd and Pb in these areas showed large variability. By comparing the historical processes of trace metal pollution in different regions and exploring the potential pollution sources of metals in the study region, it can be deduced that atmospheric Hg pollution in the Fanjing Mountain area was the result of both global and regional emissions, while Cd and Pb pollution largely came from regional sources such as non-ferrous metals smelting and coal combustion emissions.

Key words: trace metals; atmospheric pollution; historical trends; sources; lake sediments; Fanjing Mountain area

大气污染是全球备受关注的环境问题, 重金属是大气中典型的污染物. 19 世纪中期以来, 有色金属开采与冶炼等工业活动、以及煤炭与石油等化石燃料的大量使用, 导致了欧美等地区大气重金属污染日趋严重^[1]. 人为活动释放到大气中的重金属不仅对污染源区的生态环境与人类健康造成了极大地影响, 通过大气输移与持续沉降, 对偏远地区土壤与水体等环境也带了一定的负面影响^[2, 3].

近年来, 随着我国与印度等国家经济的快速发展, 全球大气重金属释放与污染的热区由欧美地区转移到了亚洲^[4, 5], 我国 Cd、Hg 和 Pb 等大气释放量已位居世界前列^[4, 6]. 我国系统的大气污染监测

收稿日期: 2018-10-12; 修订日期: 2019-01-10

基金项目: 国家自然科学基金项目(41672354, 41271214)

作者简介: 梁梦瑶(1994~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向湖泊沉积与环境地球化学, E-mail: 573610347@qq.com

* 通信作者, E-mail: liuenfeng@sdu.edu.cn

与研究主要开始于 20 世纪 90 年代, 在重金属等典型污染物的污染现状、环境与健康危害方面取得了一系列成果^[7], 但对大气重金属污染历史过程的研究还不够深入. 高山地区受到人类活动直接影响较弱, 对重金属等大气污染响应敏感, 其广泛分布的湖泊与泥炭沉积为开展区域大气重金属污染历史变化研究提供了良好的载体^[8, 9]. 目前, 我国对大气重金属污染历史过程的研究多集中于青藏高原、西南及西北等高山湖泊较为集中的地区^[8, 10, 11], 而对东部地区大气重金属污染的历史过程及其对远离人类活动直接影响地区的地表环境影响的认识还存在一定不足.

贵州是我国重要的有色金属产地, 重金属污染较为突出^[12]. 目前关于大气与土壤等重金属污染的研究多集中于有色金属矿区及周边地区^[12-14], 对人类活动直接影响相对较弱的偏远山区大气重金属污染现状及其历史变化过程的研究较为薄弱. 本文通过对贵州北部梵净山顶湖泊沉积物中金属元素含量、Pb 同位素组成的分析, 结合²¹⁰Pb 年代结果, 研究了大气重金属污染变化的历史过程与累积特征, 并对污染来源进行了探讨, 以期对区域大气重金属污染防治、全面评估大气重金属污染对偏远地区环境质量的影响提供参考.

1 材料与方法

1.1 研究区域概况

贵州是我国矿产资源大省, 有汞矿、铅锌矿等有色金属矿山 240 余座^[15]; 贵州北部的万山汞矿是世界第三大汞矿, 也是我国最大的汞矿, 具有 600 余年的开采历史, 累计向大气释放汞约 745 t^[16]. 贵州省也是我国重要的煤炭产区和消费区, 产量和消费量位居全国第五位. 与贵州省相邻的湖南、重庆矿产资源也较丰富, 其中湖南省 Pb 产量占全国 16.9%^[17]. 长期的矿产资源开采与有色金属冶炼对矿区及周边地区大气、土壤等生态环境质量与人体健康产生了较重的影响^[12, 13].

梵净山位于贵州省铜仁市江口、印江、松桃三县交界处, 是武陵山山脉的主峰, 最高峰海拔 2 494 m. 九龙池位于梵净山最高峰南南西约 2 km, 具有连续的湖相沉积^[18], 目前为一季节性天然的积水洼地, 海拔 2 212 m.

1.2 样品采集

2012 年, 使用荷兰 Eijkelpamp 公司生产的 Cobra TT 型采样器, 在九龙池中心位置采集了长 67 cm 的沉积岩芯. 岩芯带回实验室后剖开, 以 1 cm 为间隔进行分样, 样品放入聚乙烯密封袋中低温

保存.

1.3 分析方法

样品冷冻干燥后, 采用美国 EG&G Ortec 公司生产的高纯锗井型探测器 (HPGe GWL-120-15) 测定²¹⁰Pb_{tot}和²²⁶Ra 活度, 计算获得²¹⁰Pb_{ex}的活度, 用于沉积岩芯年代序列的建立.

称取研磨后的样品 0.12 g 置入聚四氟乙烯烧杯中, 顺序加入 HCl-HNO₃-HF-HClO₄, 置于电热板 (160 ~ 180 °C) 上加热约 2.5 h, 然后 220 °C 加热至冒尽白烟, 冷却后加入 1 mL HNO₃、0.5 mL HCl 和超纯水加热溶解残渣, 冷却后转移并定容至 50 mL, 采用美国 Leeman Labs Profile 电感耦合等离子体原子发射光谱仪 (ICP-AES) 测定 Al、Ti 和 Zn 的含量, 采用电感耦合等离子体质谱仪 (ICP-MS, Agilent 7700) 测定 Cd、Co、Cr、Cu、Li、Ni 和 Pb 的含量及 Pb 同位素 (²⁰⁶Pb、²⁰⁷Pb 和 ²⁰⁸Pb) 组成. 沉积物中 Hg 含量采用美国 Leeman Labs Hydra II C 型全自动测汞仪测定. 分析过程中采用标准参考物质 GBW07358 进行精度控制, 各元素含量实测值均在标准值范围内, 平行分析最大偏差均小于 7%. Pb 同位素组成采用标准样品 (SRM981-NIST) 进行校准与控制, ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 及 ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 的测试结果标准偏差均小于 0.12%.

1.4 重金属污染评价方法

湖泊沉积物中的重金属除了大气沉降之外, 部分还来自流域土壤母质, 流域侵蚀条件可影响沉积物质地变化, 进而影响到自然来源的重金属的含量及污染定量识别^[8, 11]. 研究中通常采用 Al、Fe、Ti、Co 和 Li 等作为参比进行沉积物质地变化矫正, 采用富集系数 (EF) 方法进行重金属元素的自然与人为来源区分^[8, 11, 19]. 富集系数及人为重金属沉积通量计算方法见文献^[8]; 本文采用 Co 和 Li 作为参比元素, 采用岩芯底部样品中金属元素含量作为自然背景值^[9].

2 结果与分析

2.1 沉积岩芯年代

沉积岩芯中²¹⁰Pb_{ex}活度随深度增加呈指数降低 ($R^2 = 0.87$), 采用 CIC 模式建立了沉积岩芯 0 ~ 18 cm (质量深度 0 ~ 6.79 g·cm⁻¹) 所对应的年代, 平均沉积通量为 0.05 g·(cm²·a)⁻¹, 平均沉积速率为 0.15 cm·a⁻¹. 沉积岩芯 18 ~ 67 cm 所对应的年代采用 0 ~ 18 cm 平均沉积通量外推, 岩芯底部年代约为 1 550 年 (图 1).

2.2 沉积物中重金属含量与历史变化

沉积岩芯中金属元素含量统计结果如表 1 所

示, 各金属元素平均含量依次为 Al > Ti > Cr > Zn > Li > Cu > Ni > Pb > Co > Cd > Hg, 其中 Cd、Hg、Pb 含量的变异系数较大. 垂向上, 各金属元素呈不同的变化趋势(图 1), 根据聚类分析的结果, 可将 11 种金属元素分为两组(图 2). 第一组金属元素包括 Al、Co、Cr、Cu、Li、Ni、Ti 和 Zn, 第二组元素包括 Cd、Hg 和 Pb. 约 1800 年之前, 所有金属元素含量

波动较小, 无明显的变化趋势(图 1). 约 1800 ~ 1940 年, 第一组元素含量逐渐上升; 约 1940 年以来, Al、Co、Cu、Ni 和 Zn 含量逐渐下降, Cr、Li 和 Ti 含量自 1970 年以来逐渐下降(图 1). 第二组金属元素含量在 1800 ~ 1880 年较为稳定; Hg 含量自 1880 年以来逐渐升高; Pb 和 Cd 含量自 1950 年以来逐渐升高(图 1).

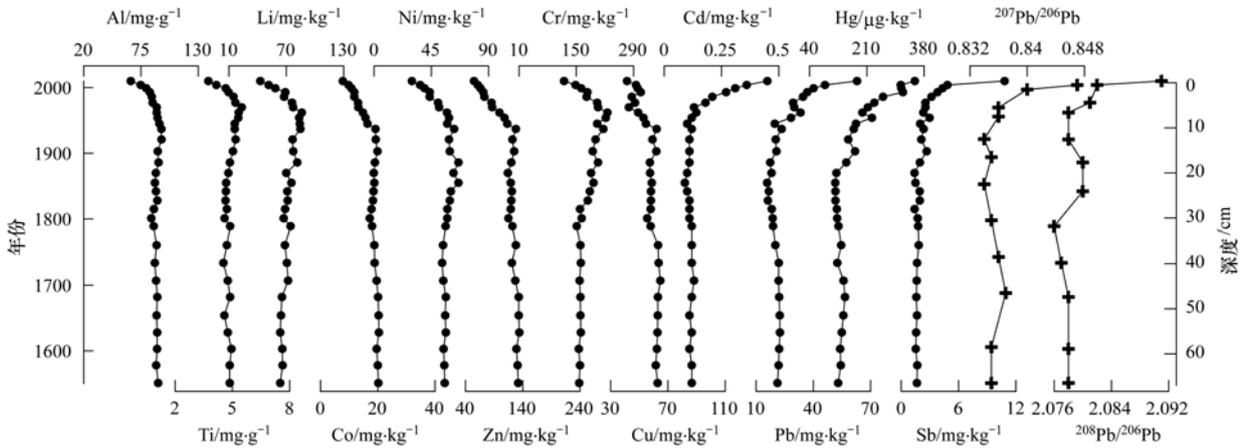


图 1 九龙池沉积岩芯中金属元素含量及铅同位素比值变化

Fig. 1 Temporal variations in metal concentrations and Pb isotopic ratios in sediment core samples from Lake Jiulong

表 1 九龙池沉积岩芯中金属元素含量统计结果

Table 1 Statistics for metal concentrations in sediment core samples from Lake Jiulong

项目	Al /mg·g ⁻¹	Ti /mg·g ⁻¹	Cd /mg·kg ⁻¹	Co /mg·kg ⁻¹	Cr /mg·kg ⁻¹	Cu /mg·kg ⁻¹	Hg /μg·kg ⁻¹	Li /mg·kg ⁻¹	Ni /mg·kg ⁻¹	Pb /mg·kg ⁻¹	Zn /mg·kg ⁻¹
均值	88.0	4.83	0.15	16.9	176	56.4	176	70.6	54.4	25.4	110
最大值	94.7	5.49	0.45	20.4	226	64.7	352	86.3	66.3	62.9	134
最小值	65.2	3.74	0.09	7.8	120	41.4	116	42.9	29.7	15.8	55
变异系数	0.07	0.07	0.57	0.21	0.14	0.12	0.39	0.13	0.15	0.40	0.21

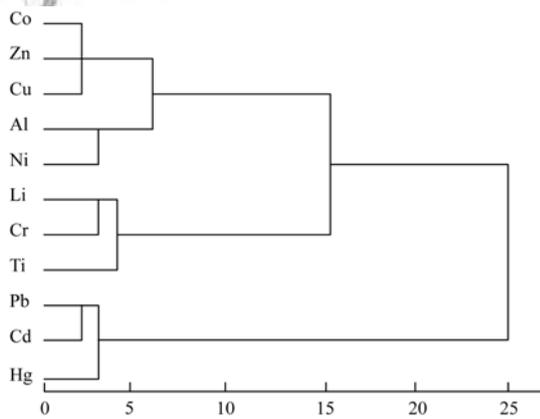


图 2 九龙池沉积岩芯金属元素聚类分类结果

Fig. 2 Hierarchical classification of metals in sediment core samples from Lake Jiulong

沉积岩芯中²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 和²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 比值如图 1 所示. ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 比值为 0.834 ~ 0.847, 20 世纪 50 年代之前, ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 比值略呈波动状态, 无明显的变化趋势; 近年来²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 比值逐渐升高. ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 比值为 2.076 ~ 2.091, 与²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 相比

波动较大, 岩芯上部(约 1980 年以来)²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 比值明显升高. 沉积岩芯中²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 及²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 比值与 Pb 含量变化趋势基本一致.

2.3 富集系数

沉积岩芯中, Zn、Ni、Cu、Cr、Pb、Cd 和 Hg 的富集系数分别为 0.7 ~ 1.0、0.9 ~ 1.2、0.8 ~ 1.4、1.0 ~ 1.6、0.7 ~ 5.9、0.7 ~ 7.5 和 0.9 ~ 5.6(图 3), 平均值分别为 0.9、1.0、1.0、1.2、1.4、1.5 和 1.6; Ni 和 Zn 的富集系数接近于 1, 近 50 年沉积物中 Cr、Cu 的富集系数略大约 1. Hg、Pb 和 Cd 的富集系数变化趋势与其他元素明显不同, 约 1880 年之前, Cd、Pb 和 Hg 的富集系数接近于 1; 约 1880 年以来, Hg 的富集系数逐渐增加, 约 1950 年以来, Pb 和 Cd 的富集系数逐渐升高, 并在表层沉积物中达到最大值. 富集系数结果表明, 沉积物中 Cu、Cr、Ni 和 Zn 以自然来源为主; Cd、Hg 和 Pb 含量与其他金属元素呈显著负相关($P < 0.01$), 岩芯上部其富集系数逐渐增加指示了人为污染的影响.

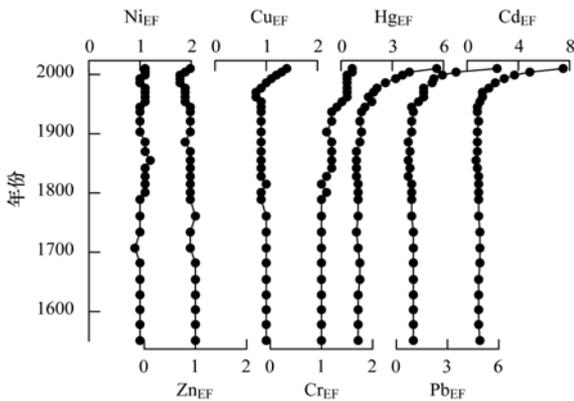


图3 九龙池沉积岩芯中金属元素富集系数(EF)

Fig. 3 Variations in enrichment factors (EF) of metals in sediment core samples from Lake Jiulong

3 讨论

3.1 汞污染历史过程与来源

根据沉积岩芯中 Hg 富集系数的变化(图 3), Hg 污染开始于 1880 年前后, 近年来污染程度逐渐加重; 其污染历史过程与趋势与海南湖光岩湖泊沉积记录一致^[20], 与欧美、中亚在内的全球绝大多数地区大气 Hg 污染初始时间基本吻合^[10, 21]. 前人研

究表明, 全球 Hg 人为排放显著增加开始于 19 世纪中期^[4, 22], 近年来欧美等部分地区大气 Hg 污染程度有所降低^[6, 23, 24]; 但九龙池沉积记录反映的大气 Hg 污染程度逐渐增加(图 3), 这一特征与亚洲绝大多数地区研究结果相似^[21, 25~27].

1880 年以来, 九龙池沉积物中 Hg 沉积通量持续增加(图 4), 20 世纪末期以来, 人为 Hg 的沉积通量平均为 $119 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$, 与海南湖光岩^[20]、东南亚地区 [$90 \sim 110 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[28] 湖泊沉积记录的大气 Hg 污染沉积通量相似, 与我国东部城郊地区 [$77 \sim 152 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[29]、四川西部贡嘎山地区 [$92.5 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[30] 大气 Hg 沉降监测结果、以及全球大气 Hg 沉降模拟结果较为一致^[31]. 然而, 梵净山等我国东部地区大气 Hg 沉降通量明显高于中亚冰芯 [$0.88 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[21]、青藏高原冰芯与积雪 [$0.7 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$, $0.7 \sim 7.9 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[25] 和湖泊沉积 [$5 \sim 32 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$, $5.1 \sim 7.9 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[26, 27] 记录, 也高于近年来北欧[平均 $7 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[32] 和北美五大湖区 [$5 \sim 30 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[24] 大气 Hg 沉降通量.

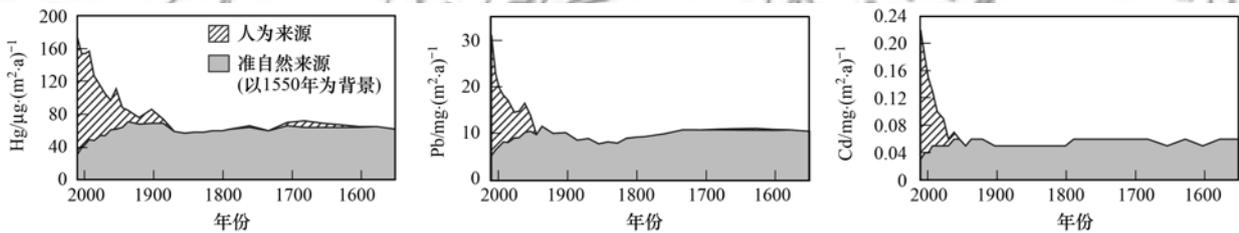


图4 九龙池沉积岩芯中 Hg、Pb 和 Cd 的沉积通量历史变化

Fig. 4 Sedimentary flux of Hg, Pb and Cd in the sediment core samples from Lake Jiulong

统计表明, 20 世纪中期之前我国大气 Hg 人为排放量较低, 其中 1949 年仅为 12.7 t ^[7], 而 20 世纪中期之前全球人为 Hg 大气年释放在 750 t 以上^[4]. 建国后我国大气 Hg 人为排放量呈快速增加趋势, 2012 年达到了 $695 \text{ t}\cdot\text{a}^{-1}$ ^[7], 占到全球人为 Hg 大气排放量的近 1/3 和亚洲地区人为汞排放的 50% 以上^[4]. 九龙池沉积记录的大气 Hg 污染初始过程与欧美等地区基本一致; 20 世纪中期以来, 九龙池沉积记录与我国人为 Hg 大气排放趋势、以及前人关于我国其他地区大气 Hg 污染逐渐增加的研究结果^[20, 28] 相似, 而与 20 世纪 90 年代以来欧洲大气 Hg 污染水平下降了 50% 以上的特点完全不同^[6]. 因此, 梵净山地区的大气汞污染在 20 世纪中期之前应受全球源的影响较大, 20 世纪中期以来区域源的贡献日益显著.

3.2 镉、铅污染历史过程与来源

有色金属冶炼、含铅汽油以及煤炭燃烧释放被

认为是大气中人为 Pb 的主要来源^[9, 33], 不同来源 Pb 的同位素组成存在明显的差异, 作为一种“指纹”特征, Pb 同位素在污染与源示踪研究中得到广泛应用^[34~36]. 根据富集系数和 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比值(图 1 和图 3), 梵净山地区 Cd 与 Pb 污染开始于 20 世纪中期, 20 世纪 80 年代以来呈逐渐加重态势, 这与我国其他地区大气 Cd 和 Pb 污染沉积记录^[8]、以及人为大气释放趋势^[7] 吻合. 近年来, 九龙池沉积物中人为 Pb 沉积通量 [$16.2 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$] 与广州 [$17 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[37]、青海湖 [$12.2 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[19] 以及贡嘎山 [$16.3 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[8] 研究结果相当, 但略低于鼎湖山 [$42.8 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[37]、以及云南中部 [$32 \sim 53 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[11]. 梵净山地区大气 Cd 沉积通量 [$0.14 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$] 明显低于广州 [$1 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]、鼎湖山 [$0.57 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[37]、贡嘎山 [$0.77 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]^[8]; 但梵净山地区大

气 Pb 与 Cd 沉积通量与华北地区偏远乡村[分别为 $14 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 、 $0.29 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$]相当^[38].

工业革命以来, 欧美等地区大气 Pb 污染逐渐增强; 20 世纪 20 ~ 30 年代, 随着含铅汽油的使用大气 Pb 污染程度显著增加; 而 20 世纪 70 ~ 80 年代以来, 随着大气清洁法案以及汽油无铅化等减排措施的实施, 欧洲 Cd 和 Pb 的释放量分别下降了 60% 和 85% 以上, 大气污染程度逐渐降低^[6, 9, 23]. 1950 年之前, 九龙池沉积物中并没有明显的 Cd、Pb 污染信号, 并且也缺少诸如欧洲等地区广泛分布的工业革命前大气 Pb 污染的信号^[9]. 20 世纪 50 年代中期以来, 九龙池岩芯中人为 Pb 和 Cd 累积量分别为 $98.7 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2}$ 和 $0.65 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2}$ (图 4). 欧洲瑞典地区近 3000 年来人为 Pb 的累积沉降通量为 $1000 \sim 10\,000 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2}$, 其中工业革命以来的贡献量占到 50% 左右^[9]; 近千年来, 欧洲南部比利牛斯山脉湖泊沉积记录的人为 Pb 和 Cd 累积通量分别为 $1\,000 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2}$ 和 $10 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2}$ ^[39].

以上对比研究表明, Cd 与 Pb 污染水平在不同地区间存在较大差异, 并没有明显的区域性变化规律; 我国不同地区间大气 Cd 和 Pb 污染趋势相似, 但与欧美地区存在明显不同; 大气中人为 Pb 和 Cd 沉降对我国地表环境的影响远小于欧美等工业历史较为悠久的地区. 与 Hg 不同, 人为活动释放到大气中的 Pb 和 Cd 等重金属主要以颗粒态形式存在, 对大气环境的影响程度随污染源距离增加而明显降低^[9, 14]. 结合地区间大气 Pb 和 Cd 污染历史过程的对比结果及其大气输移特性等, 笔者认为梵净山地区大气 Pb 和 Cd 污染主要响应于区域污染排放, 二者具有相同的污染历史过程, 因此污染来源可能相同.

为了进一步探讨梵净山地区大气 Pb 的来源, 对我国煤炭、含铅汽油、铅锌矿等主要潜在污染源与九龙池沉积物中 Pb 同位素比值进行了对比(图 5). 九龙池沉积物中 Pb 同位素组成介于煤炭、含铅汽油以及有色金属之间, 表层沉积物中 Pb 同位素组成更趋于有色金属和含铅汽油. 含铅汽油是大气 Pb 的重要来源之一, 包括我国在内的全球绝大多数国家在 20 世纪末已禁止含铅汽油的使用. 天津、上海等城市监测结果表明, 随着含铅汽油的禁用, 大气颗粒物中 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比值明显降低^[35, 40]; 但与此不同, 九龙池沉积岩芯顶部 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 为整个岩芯的最高值(图 1), 因此, 含铅汽油释放并非近年来沉积物中 Pb 污染程度逐渐增加的主要贡献源. 根据潜在污染源 Pb 同位素组成以及沉积岩芯 Pb 同位素变化趋势, 笔者认为梵净山地区近年

来大气 Pb 污染程度增加受到有色金属冶炼释放的影响更为显著; 这与南岭地区 Cd 和 Pb 污染源^[2]、以及西南地区大气 Pb 污染主要来源于铅锌等有色金属的冶炼的结论一致^[11]. 除此之外, 梵净山地区大气 Pb 和 Cd 污染可能还受到燃煤释放的影响, 有待进一步研究.

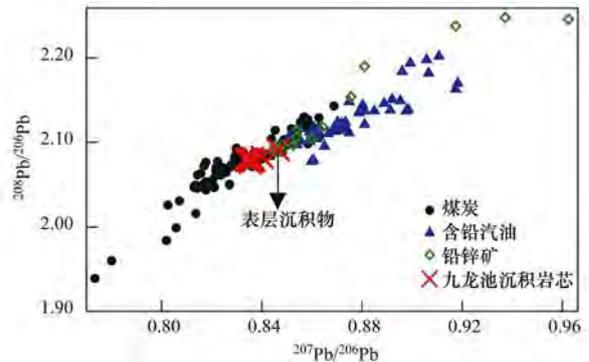


图 5 我国煤炭、汽油、铅锌矿^[35]及梵净山九龙池中的铅同位素散点图

Fig. 5 Scatter plot of lead isotopes in Chinese coal, leaded gasoline, lead-zinc ore, and sediment from Lake Jiulong

4 结论

梵净山九龙池沉积物中金属元素含量依次为 $\text{Al} > \text{Ti} > \text{Cr} > \text{Zn} > \text{Li} > \text{Cu} > \text{Ni} > \text{Pb} > \text{Co} > \text{Cd} > \text{Hg}$. 富集系数以及 Pb 同位素组成较好地反映了大气重金属污染元素及其历史变化, 其中 Hg、Pb 和 Cd 为典型污染物, Hg 污染开始于 1880 年左右, Pb 和 Cd 污染开始于 20 世纪 50 年代, 并呈逐渐增加趋势. Hg 污染受到全球源及区域源的共同影响, 近年来区域源的影响更为明显; 有色金属冶炼释放是大气 Pb 和 Cd 污染的重要来源. 沉积物中人为 Hg、Pb 和 Cd 的累积量分别为 $948 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$ 、 $98.7 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2}$ 和 $0.65 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2}$, 与欧美地区相比, 大气重金属污染对研究区地表环境的影响处于较低水平.

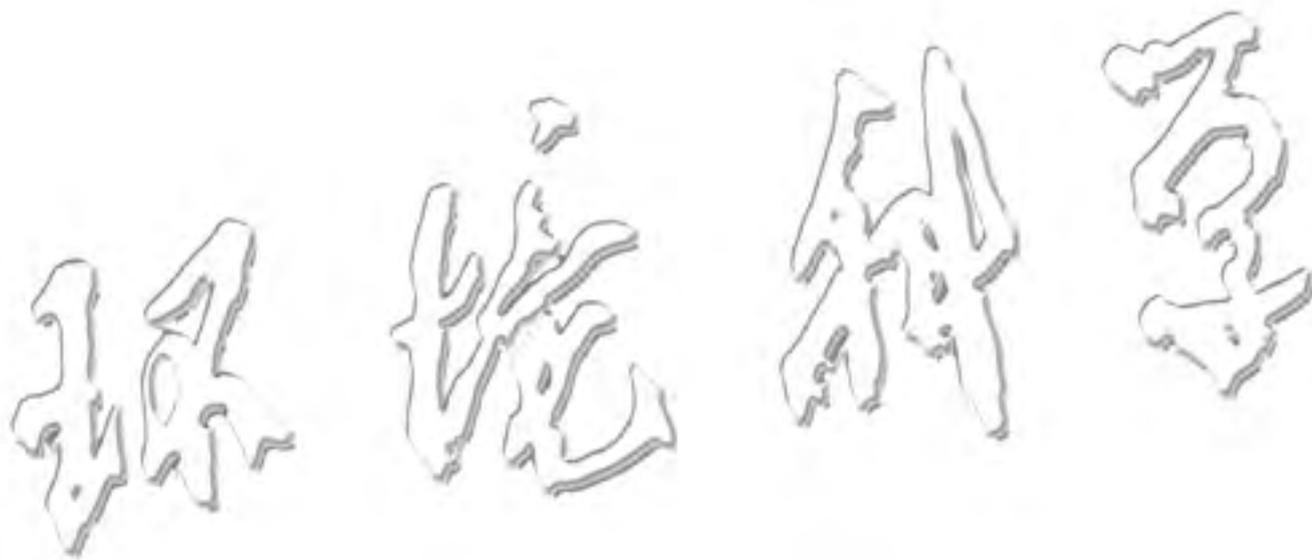
致谢:感谢朱育新副研究员、夏威夷高级工程师、蔡艳杰工程师、陈嵘博士、孙伟伟博士、李凯博士在实验分析和野外采样中给予的帮助.

参考文献:

- [1] Hansson S V, Claustres A, Probst A, *et al.* Atmospheric and terrigenous metal accumulation over 3000 years in a French mountain catchment: Local vs distal influences [J]. *Anthropocene*, 2017, **19**: 45-54.
- [2] Lee C S L, Li X D, Zhang G, *et al.* Biomonitoring of trace metals in the atmosphere using moss (*Hypnum plumaeforme*) in the Nanling Mountains and the Pearl River Delta, Southern China [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(3): 397-407.
- [3] Dietz R, Outridge P M, Hobson K A. Anthropogenic contributions to mercury levels in present-day arctic animals—A review[J]. *Science of the Total Environment*, 2009, **407**(24): 6120-6131.

- [4] Streets D G, Devane M K, Lu Z F, *et al.* All-time releases of mercury to the atmosphere from human activities [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45** (24) : 10485-10491.
- [5] Corbitt E S, Jacob D J, Holmes C D, *et al.* Global source-receptor relationships for mercury deposition under present-day and 2050 emissions scenarios [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45** (24) : 10477-10484.
- [6] Pacyna J M, Pacyna E G, Aas W. Changes of emissions and atmospheric deposition of mercury, lead, and cadmium [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43** (1) : 117-127.
- [7] 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.
- [8] Bing H J, Wu Y H, Zhou J, *et al.* Historical trends of anthropogenic metals in Eastern Tibetan Plateau as reconstructed from alpine lake sediments over the last century [J]. *Chemosphere*, 2016, **148** : 211-219.
- [9] Bindler R. Contaminated lead environments of man: reviewing the lead isotopic evidence in sediments, peat, and soils for the temporal and spatial patterns of atmospheric lead pollution in Sweden [J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2011, **33** (4) : 311-329.
- [10] Kang S C, Huang J, Wang F Y, *et al.* Atmospheric mercury depositional chronology reconstructed from lake sediments and ice core in the Himalayas and Tibetan Plateau [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50** (6) : 2859-2869.
- [11] Liu E F, Zhang E L, Li K, *et al.* Historical reconstruction of atmospheric lead pollution in central Yunnan province, southwest China: an analysis based on lacustrine sedimentary records [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2013, **20** (12) : 8739-8750.
- [12] Feng X B, Qiu G L. Mercury pollution in Guizhou, Southwestern China—An overview [J]. *Science of the Total Environment*, 2008, **400** (1-3) : 227-237.
- [13] 孟忠常, 吴迪, 邓琴, 等. 贵州典型铅锌矿区土壤重金属污染特征与生态危害风险评价 [J]. *贵州农业科学*, 2012, **40** (8) : 218-221.
Meng Z C, Wu D, Deng Q, *et al.* Characteristics of heavy metal pollutions in soils of typical lead-zinc mining areas in Guizhou Province and the ecological risk assessment [J]. *Guizhou Agricultural Science*, 2012, **40** (8) : 218-221.
- [14] Xie F, Tan H, Yang B, *et al.* The study of atmospheric transport and deposition of cadmium emitted from primitive zinc production area [J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2014, **225** (11) : 2162.
- [15] 朱学书, 尹努寻, 杨秀丽. 贵州矿产资源开发利用现状分析 [J]. *贵州地质*, 2012, **29** (3) : 220-224, 219.
Zhu X S, Yin N X, Yang X L. Analysis on development and utilization condition of mineral resource in Guizhou [J]. *Guizhou Geology*, 2012, **29** (3) : 220-224, 219.
- [16] 丁振华, 王文华, 瞿丽雅, 等. 贵州万山汞矿区汞的环境污染及对生态系统的影响 [J]. *环境科学*, 2004, **25** (2) : 111-114.
Ding Z H, Wang W H, Qu L Y, *et al.* Mercury pollution and its ecosystem effects in Wanshan mercury miner area, Guizhou [J]. *Environmental Science*, 2004, **25** (2) : 111-114.
- [17] Li Z G, Feng X B, Li G H, *et al.* Mercury and other metal and metalloid soil contamination near a Pb/Zn smelter in east Hunan province, China [J]. *Applied Geochemistry*, 2011, **26** (2) : 160-166.
- [18] 陈佩英, 周启勇, 林树基, 等. 贵州梵净山九龙池一万年来的植被和气候变化 [J]. *贵州地质*, 1992, **9** (2) : 167-177.
Chen P Y, Zhou Q Y, Lin S J, *et al.* The changes of vegetation and climate of Jiulongchi section of Fanjingshan Mountain in Guizhou since 10000 years ago [J]. *Guizhou Geology*, 1992, **9** (2) : 167-177.
- [19] Jin Z D, Han Y M, Chen L. Past atmospheric Pb deposition in Lake Qinghai, Northeastern Tibetan Plateau [J]. *Journal of Paleolimnology*, 2010, **43** (3) : 551-563.
- [20] Zeng Y, Chen J G, Yang Y Q, *et al.* Huguangyan Maar Lake (SE China): A solid record of atmospheric mercury pollution history in a non-remote region [J]. *Journal of Asian Earth Sciences*, 2017, **147** : 1-8.
- [21] Eyrikh S, Eichler A, Tobler L, *et al.* A 320 year ice-core record of atmospheric Hg pollution in the Altai, Central Asia [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, **51** (20) : 11597-11606.
- [22] Amos H M, Sonke J E, Obrist D, *et al.* Observational and modeling constraints on global anthropogenic enrichment of mercury [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **49** (7) : 4036-4047.
- [23] Cortizas A M, Varela E P, Bindler R, *et al.* Reconstructing historical Pb and Hg pollution in NW Spain using multiple cores from the Chao de Lamoso bog (Xistral Mountains) [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2012, **82** (4) : 68-78.
- [24] Kerfoot W C, Urban N R, McDonald C P, *et al.* Legacy mercury releases during copper mining near Lake Superior [J]. *Journal of Great Lakes Research*, 2016, **42** (1) : 50-61.
- [25] Zhang Q G, Hang J, Wang F Y, *et al.* Mercury distribution and deposition in glacier snow over western China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46** (10) : 5404-5413.
- [26] Wang X P, Yang H H, Gong P, *et al.* One century sedimentary records of polycyclic aromatic hydrocarbons, mercury and trace elements in the Qinghai Lake, Tibetan Plateau [J]. *Environmental Pollution*, 2010, **158** (10) : 3065-3070.
- [27] Yang H D, Battarbee R W, Turner S D, *et al.* Historical reconstruction of mercury pollution across the Tibetan Plateau using lake sediments [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44** (8) : 2918-2924.
- [28] Engels S, Fong L S R Z, Chen Q, *et al.* Historical atmospheric pollution trends in Southeast Asia inferred from lake sediment records [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **235** : 907-917.
- [29] Fu X W, Feng X B, Sommar J, *et al.* A review of studies on atmospheric mercury in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, **421-422** : 73-81.
- [30] Fu X W, Feng X B, Zhu W Z, *et al.* Elevated atmospheric deposition and dynamics of mercury in a remote upland forest of Southwestern China [J]. *Environmental Pollution*, 2010, **158** (6) : 2324-2333.
- [31] Pacyna J M, Travnikov O, De Simone F, *et al.* Current and future levels of mercury atmospheric pollution on a global scale [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16** (19) : 12495-12511.
- [32] Drevnick P E, Yang H D, Lamborg C H, *et al.* Net atmospheric mercury deposition to Svalbard: Estimates from lacustrine sediments [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **59** : 509-513.
- [33] Duan J C, Tan J H. Atmospheric heavy metals and arsenic in China: Situation, sources and control policies [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **74** : 93-101.
- [34] Chen J M, Tan M G, Li Y L, *et al.* A lead isotope record of

- shanghai atmospheric lead emissions in total suspended particles during the period of phasing out of leaded gasoline [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(7): 1245-1253.
- [35] Bi X Y, Li Z G, Wang S X, *et al.* Lead isotopic compositions of selected coals, Pb/Zn ores and fuels in China and the application for source tracing [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, **51**(22): 13502-13508.
- [36] 张棕巍, 胡恭任, 于瑞莲, 等. 泉州市大气降尘中金属元素污染特征及来源解析 [J]. *环境科学*, 2016, **37**(8): 2881-2888.
- Zhang Z W, Hu G R, Yu R L, *et al.* Characteristics and source apportionment of metals in the dustfall of Quanzhou City [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(8): 2881-2888.
- [37] Ye L M, Huang M J, Zhong B Q, *et al.* Wet and dry deposition fluxes of heavy metals in Pearl River Delta Region (China): Characteristics, ecological risk assessment, and source apportionment [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **70**: 106-123.
- [38] 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.
- [39] Bacardit M, Krachler M, Camarero L. Whole-catchment inventories of trace metals in soils and sediments in mountain lake catchments in the Central Pyrenees: Apportioning the anthropogenic and natural contributions [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2012, **82**: 52-67.
- [40] Wang W, Liu X D, Zhao L W, *et al.* Effectiveness of leaded petrol phase-out in Tianjin, China based on the aerosol lead concentration and isotope abundance ratio [J]. *Science of the Total Environment*, 2006, **364**(1-3): 175-187.



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, ZHOU 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 Jimpen 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 ¹⁵ N-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 Ammonification	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)