

文章编号: 1674-5566(2015)05-0719-07

嵊山岛大气重金属十年干沉降特征变化

林熙戎^{1,2,3}, 叶属峰^{2,3}, 孙亚伟^{2,3}, 杨幸幸^{2,3}

(1. 上海海洋大学海洋科学学院, 上海 201306; 2. 国家海洋局东海环境监测中心, 上海 200137; 3. 海洋赤潮灾害立体监测技术与应用国家海洋局重点实验室, 上海 200137)

摘要:以2004-2013年四季(2、5、8、10月)舟山海域嵊山岛大气悬浮颗粒物(TSP)重金属元素(Cu、Pb、Zn、Cd)监测数据为基础,通过单点大气干沉降模型初步估算了舟山海域大气重金属的月、年干沉降通量。结果表明:大气重金属干沉降年通量大小分别为Cu(14.15 mg/m²) > Zn(2.16 mg/m²) > Pb(1.40 mg/m²) > Cd(0.022 mg/m²),所对应的浓度也小于我国空气质量标准限值,Cu大约占重金属总量的80%。各重金属近几年的月通量的季节变化前期(2004-2008)表现为夏、秋较低,春、冬较高;后期(2009-2012)则为夏、冬较高,春、秋较低的趋势。与其他海域相比,舟山海域上的Cu元素月、年沉降通量都高于珠江三角洲、天津港、福建兴化湾海域的对应值,低于黄海青岛海域;Pb、Zn、Cd的值小于上述近海海域的相应元素值,与远洋中监测值相差不大。

研究亮点:随着大气颗粒物中的PM_{2.5}数值成为评判空气质量的一项重要指标,大气问题受到社会、媒体的广泛关注。本文研究舟山海域嵊山岛大气颗粒物中的重金属干沉降特征以及十年的通量变化,结果表明嵊山岛周围海域的空气质量较好,十年内的通量总体变化不大。
关键词: 重金属; 大气干沉降; 通量; 嵊山岛; 季节变化
中图分类号: X 823
文献标志码: A

大气是自然界的许多污染物质由陆地输送至海洋的重要途径。大气中的悬浮颗粒通过干、湿沉降等过程进入海洋,是海洋物质的重要来源之一,通过生物地球化学循环,沉降作用深刻地影响着海洋的化学组成与生态系统功能。2000年2月,一个由国际地圈生物圈计划(IGBP)、海洋研究科学委员会(SCOR)和欧盟联合支持的多学科国际合作研究计划^[1]——表层海洋低层大气研究(SOLAS—Surface Ocean Lower Atmosphere Study)实施,这个计划重点研究了大气、气候和海洋生物地球化学的相互关系和相互作用,海洋气候、海洋表面以及周围生物的影响,表明国际上对海洋大气沉降对海洋环境影响的研究越来越重视。

大气颗粒物中的重金属大都具有毒性、难降解性和生物累积性,它们通过呼吸过程和消化系统等进入生物体内,对其健康造成极大影响^[2-3]。

目前,我国加强了对大气颗粒物特别是重金属污染的研究,1996年颁布的《大气污染物综合排放标准》对Cr、Pb、Hg、Cd、Be、Ni、Sn等重金属的排放限值进行了规定,从法律法规的层面上对大气污染源进行了很好的控制。秦晓光等^[4]对杭州湾以南的东海海域大气重金属来源与入海通量进行研究,得出气体干沉降通量大小顺序为Zn > Pb > Cu > Cd,且呈现出冬季高,夏季低的趋势;战雯静等^[5]对长江口青草沙水库及长兴岛的大气颗粒物研究表明,长江口存在着明显的重金属富集现象,大气沉降可能是长江口水中重金属的重要来源;扬帆等^[6]对长江口的大气重金属源进行了分析,认为夏季重金属颗粒主要来自垃圾焚烧和重油燃烧;冬季重金属颗粒主要来自垃圾焚烧、煤炭燃烧以及金属冶炼。

长江三角洲是我国经济最发达、人口最密集的区域之一,极其繁忙的海陆交通、工业源的排

收稿日期: 2014-12-17

修回日期: 2015-05-29

基金项目: 2009年度海洋公益性行业科研专项经费项目(200905012-2)

作者简介: 林熙戎(1989—),男,硕士研究生,研究方向为大气海洋化学。E-mail:421071157@qq.com

通信作者: 叶属峰, E-mail: ysf6@vip.sina.com

放使得大气中的污染物增多,大气重金属的污染程度也逐渐加剧,同时通过沉降作用进入长江口和东海海域,影响人类正常的生产和生活^[5]。

本研究主要研究大气中的总悬浮颗粒物(TSP),利用国家海洋局东海环境监测中心2004-2013年东海嵊山岛大气监测资料对嵊山开展定点、连续的大气污染物样品分析,积累大气污染的时间变化资料,估算了该海域大气颗粒重金属干沉降通量,分析了海洋大气中重金属干沉降通量的季节以及年份差异。

1 数据来源及处理

1.1 研究区域及数据来源

本文原始数据来源于国家海洋局东海环境监测中心2004-2013年大气采样数据的历史监测资料,采样点位于舟山海域的嵊山监测站(122°48'E,30°41'N),该监测站位于长江口海域最外面的海岛。采样点位置见图1。

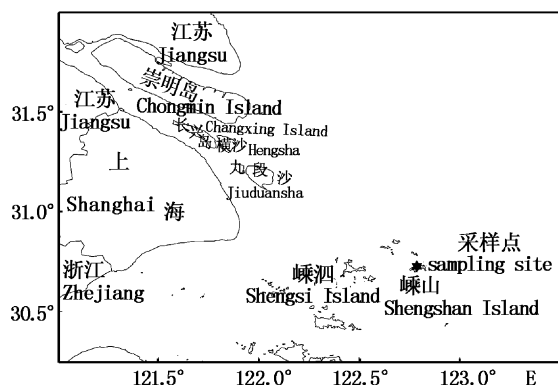


图1 浙江省舟山市-嵊山岛大气干沉降采样站示意图

Fig. 1 Sampling site of atmospheric dry deposition in Zhoushan City in Zhejiang Province

本次实验样品采集方法参照海洋化学调查技术规程^[7]。利用风向控制大流量大气总悬浮颗粒物采样器,在监测站进行数据采集,将风标装置输出信号区域于采样扇形角度内,接通控制器,打开采样器顶盖,松开采样夹上螺丝,将干燥好的 whatman41 空白滤膜平整地放在支网上,旋好螺丝,固定。盖好采样器顶盖,最后开启采样器。在2004年-2013年2月、5月、8月、10月每天进行海洋大气沉降物质采样。

分析时,将载有海洋大气悬浮颗粒物的滤膜经硝酸-高锰酸消化的溶液,用石墨炉原子吸收分光光度法测定铜、铅、镉含量^[7];同时用火焰原子吸收分光光度法测定锌含量。

1.2 数据分析和处理方法

采用 SPSS 19.0 软件进行数据筛选和统计分析。首先采用奈尔检验法对数据进行筛选,剔除异常值,计算出剩余合理数据的平均值和标准偏差,利用 Excel 做图,进行分析。

大气物质主要通过干、湿沉降过程进入海中,这一过程也是大气与海洋物质交换,对海洋影响最直接的方式,重金属一般通过干沉降的方式进入海中。本研究利用了单点大气干沉降模型计算了采样时嵊山海域大气重金属元素的干沉降通量^[8]。

计算公式为:

$$F_d = V_d \times C_d \quad (1)$$

式中: F_d 为干沉降通量,沉降通量(mg/m^2); C_d 为大气颗粒物中元素的浓度(mg/m^3); V_d 为元素的干沉降速率(m/s)。

常温下,干沉降速率随着风速的增大而增大,其中小粒径颗粒物干沉降速率的变化更突出,而大粒径颗粒物沉降速率对风速的响应不灵敏,大粒径主要受重力的控制^[9]。本研究主要针对海上的悬浮颗粒物(TSP),属于大颗粒物,与重力沉降速率关系密切。嵊山采样点的数据作为单点干沉降公式中的输入条件,沉降速率参考 WILLIAMS 的沉降模型理论^[10],以及 GW03 参数化方案^[11],考虑波浪对干沉降速率的影响,采用改进后的模型^[9]估算出粒子干沉降的速率。

2 结果与分析

2.1 重金属沉降水平分析

图2表示2004-2013年间大气气溶胶中Cu、Pb、Zn、Cd元素浓度随时间的变化关系。从图中可以看出随着时间的推移,元素浓度的变化有变缓的趋势,并且有冬高春低的变化规律。

根据文献中的速率模型^[12]得到冬季的平均沉降速率 $V_d \approx 0.18 \text{ cm}/\text{s}$,夏季略低,平均速率 $V_d \approx 0.09 \text{ cm}/\text{s}$ 。把所得速率代入通量计算模型估算出2004-2013年重金属Cu、Pb、Zn、Cd的月沉降通量(表1)。

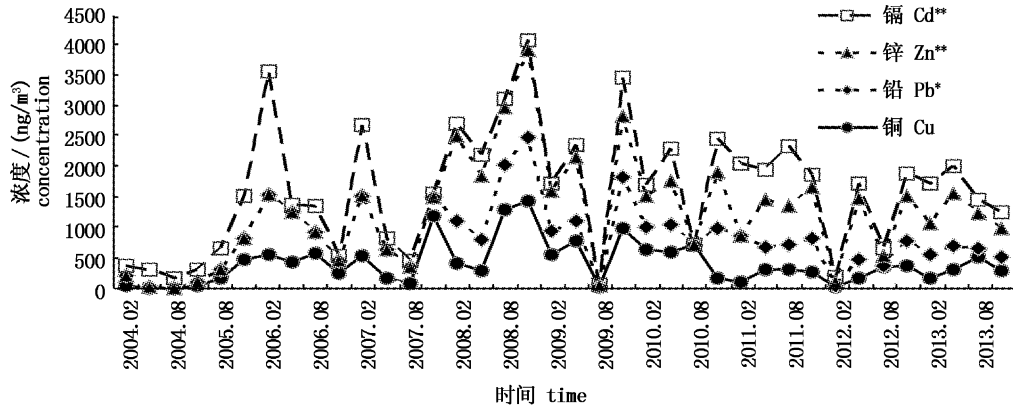


图2 大气气溶胶中 Cu、Pb、Zn、Cd 日平均浓度变化时间序列图

Fig. 2 Time series of daily variation diagram of Cu, Pb, Zn, Cd in atmospheric suspended matter

* Pb 数据 $\times 10^{-1}$, ** Zn、Cd 数据 $\times 10^{-3}$ 。

* the data of Pb $\times 10^{-1}$, ** the data of Zn、Cd $\times 10^{-3}$ 。

表1 2004-2013年重金属干沉降月通量平均值季节变化表

Tab. 1 2004-2013 atmospheric dry deposition monthly fluxes of heavy metal in different seasons mg/m^2

时间 time	Cu	Pb	Zn	Cd ($\times 10^{-3}$)
2004.02	0.127 ± 0.062	0.369 ± 0.19	-	1.23 ± 0.10
2004.05	0.0120 ± 0.010	0.052 1 ± 0.030	-	0.757 ± 0.41
2004.08	0.008 31 ± 0.0050	0.014 6 ± 0.017	-	0.413 ± 0.56
2004.10	0.125 ± 0.16	0.166 ± 0.21	-	6.82 ± 9.4
2005.08	0.443 ± 0.33	0.040 4 ± 0.023	-	0.945 ± 0.90
2005.10	1.28 ± 1.2	0.093 6 ± 0.080	-	1.89 ± 1.70
2006.02	1.36 ± 0.68	0.237 ± 0.10	-	2.50 ± 1.20
2006.05	1.15 ± 0.89	0.221 ± 0.19	-	0.367 ± 0.30
2006.08	1.56 ± 0.79	0.090 3 ± 0.080	-	1.16 ± 0.30
2006.10	0.671 ± 0.41	0.056 0 ± 0.024	-	0.212 ± 0.070
2007.02	1.31 ± 0.60	0.239 ± 0.13	-	2.84 ± 1.40
2007.05	0.458 ± 0.15	0.127 ± 0.058	-	0.483 ± 0.27
2007.08	0.201 ± 0.032	0.073 0 ± 0.014	-	0.277 ± 0.048
2007.10	3.23 ± 0.93	0.078 8 ± 0.036	-	0.204 ± 0.13
2008.02	1.02 ± 0.56	0.178 ± 0.15	0.351 ± 0.29	0.498 ± 0.41
2008.05	0.760 ± 0.45	0.137 ± 0.082	0.283 ± 0.21	0.940 ± 0.50
2008.08	3.46 ± 2.7	0.204 ± 0.076	0.254 ± 0.18	0.380 ± 0.24
2008.10	3.88 ± 3.0	0.284 ± 0.092	0.382 ± 0.25	0.461 ± 0.25
2009.02	1.35 ± 1.3	0.0967 ± 0.068	0.159 ± 0.11	0.303 ± 0.13
2009.05	2.10 ± 1.9	0.0890 ± 0.058	0.281 ± 0.22	0.547 ± 0.18
2009.08	0.028 6 ± 0.012	0.002 79 ± 0.002 1	0.007 27 ± 0.006 8	0.012 1 ± 0.005 1
2009.10	2.64 ± 2.6	0.230 ± 0.084	0.266 ± 0.23	1.72 ± 1.2
2010.02	1.55 ± 1.4	0.089 0 ± 0.054	0.127 ± 0.088	0.442 ± 0.15
2010.05	1.61 ± 1.8	0.121 ± 0.11	0.196 ± 0.18	1.42 ± 1.9
2010.08	1.92 ± 1.3	0.050 0 ± 0.080	0.190 ± 0.28	0.600 ± 0.89
2010.10	0.430 ± 0.20	0.223 ± 0.14	0.250 ± 0.18	1.47 ± 1.1
2011.02	0.259 ± 0.21	0.182 ± 0.13	0.000 289 ± 0.000 24	2.90 ± 2.3
2011.05	0.817 ± 0.62	0.101 ± 0.071	0.209 ± 0.20	1.35 ± 1.3
2011.08	0.827 ± 0.50	0.111 ± 0.053	0.172 ± 0.13	2.64 ± 1.9
2011.10	0.692 ± 0.50	0.151 ± 0.14	0.229 ± 0.26	5.00 ± 2.5
2012.02	0.0262 ± 0.013	0.006 86 ± 0.0053	0.0162 ± 0.014	0.191 ± 0.12
2012.05	0.458 ± 0.16	0.080 3 ± 0.078	0.275 ± 0.27	0.634 ± 0.55
2012.08	0.924 ± 0.68	0.008 90 ± 0.006 5	0.0450 ± 0.045	0.282 ± 0.20
2012.10	1.02 ± 0.72	0.108 ± 0.073	0.197 ± 0.18	1.03 ± 0.74
2013.02	0.401 ± 0.22	0.095 8 ± 0.056	0.126 ± 0.090	1.58 ± 0.99
2013.05	0.827 ± 1.0	0.106 ± 0.059	0.232 ± 0.16	1.21 ± 0.73
2013.08	1.40 ± 1.0	0.039 4 ± 0.029	0.152 ± 0.15	0.628 ± 0.51
2013.10	0.770 ± 0.62	0.062 6 ± 0.039	0.124 ± 0.082	0.762 ± 0.64

注: - 表示未采集数据。

Note: - expresses no collected data.

首先从大气重金属月沉降通量探寻季节变化的情况(表1)。从表1可以看出,各元素沉降通量之间有着明显的差异,2004年之后,Cu元素的通量大于Pb和Cd,并在2005-2013年一直处于高点,是舟山海域大气中最主要的重金属元素;2008年增加了对Zn元素的监测,其沉降通量高于Pb和Cd元素,低于Cu。近十年来,舟山海域这4种重金属元素沉降通量的大小关系为Cu > Zn > Pb > Cd。

2004年到2008年,Cu、Pb、Zn、Cd月沉降通量都保持着春、冬季高,夏、秋季低的规律,且变化趋势较为明显,与采集的大气颗粒物质量浓度的变化趋势是一致的。同时,这与秦晓光等^[4]对东海大气颗粒物重金属的研究结果相似。这个季节差异主要是与季节性大气环流和降水变化有关,采样记录表上显示2007和2008年的5至10月份,监测点风向以偏东风为主,说明夏、秋两季的大气是由海洋吹向陆地,嵊山岛上大气主要是海洋上无污染的大气,重金属含量较低,另外夏季的降水量明显大于冬季,干沉降通量也随之降低,由于湿沉降不在研究范围,因此重金属通量较低。

2009年至2013年,虽然监测记录表上的风向变化不大,但是重金属月通量变化趋势发生改变,除了Cu元素以外,其余3个元素逐渐表现出夏、冬季较高,春、秋下降的趋势,而Cu元素则形

成夏、秋高,春、冬略低的趋势,与采样记录上的大气颗粒物质量浓度变化趋势是一致的。如上所述,冬季含量较高是大气环流与降水共同作用的结果,而夏季旅游业进入旺季,相对的人类活动也较为频繁,重金属含量偏高有可能是岛上的人类活动(例如车船以及少量垃圾焚烧)引起的。Pb、Zn、Cd通量的变化趋势相差不大,可能来自同样的源,而Pb和Cd的浓度远远低于空气质量标准GB 3095—2012中环境空气中的一类限值,浓度很低,可能来源于自然源(地壳或海水),以及少数的人类活动,例如岛上车、船的尾气排放。Cu含量低于空气质量标准GB 3095—2012中PM_{2.5}的含量限值,由于国标中没有关于Cu的单独限值,对Cu含量的高低判断在与其他海域大气含量对比时进一步研究。

由表2可知,4种元素年平均沉降通量大小顺序为Cu(14.15 mg/m²)、Zn(2.16 mg/m²)、Pd(2.16 mg/m²)、Cd(0.022 mg/m²),浓度低于最新空气质量标准(GB 3095—2012)一类标准要求(将换算为通量值):Pb为15.77 mg/m²、Cd为0.158 mg/m²(我国2012空气质量标准中没有Cu、Zn的浓度限值)。从2005年开始,Cu的沉降通量是所监测的重金属元素中最大的,是该区域大气最主要的重金属元素,约占沉降总量的80%,Zn的沉降通量也一直很高,仅次于Cu元素;Cd元素最低。

表2 嵊山岛重金属年干沉降通量比较表

Tab.2 Comparison of atmospheric dry deposition of metals annual fluxes in Shengshan Island mg/m²

时间 time	Cu	Pb	Zn	Cd
2005	10.10 ± 0.42	0.789 ± 0.027	-	0.016 7 ± 0.000 47
2006	14.30 ± 0.33	1.86 ± 0.079	-	0.087 3 ± 0.000 91
2007	15.70 ± 1.2	1.77 ± 0.059	-	0.012 1 ± 0.001 1
2008	27.05 ± 1.4	2.40 ± 0.048	3.81 ± 0.048	0.007 14 ± 0.000 21
2009	18.46 ± 1.2	1.26 ± 0.081	2.15 ± 0.11	0.007 72 ± 0.000 65
2010	16.70 ± 0.57	1.30 ± 0.064	1.73 ± 0.044	0.011 7 ± 0.000 47
2011	7.72 ± 0.23	1.66 ± 0.032	1.79 ± 0.11	0.035 9 ± 0.001 3
2012	7.16 ± 0.40	0.602 ± 0.045	1.57 ± 0.11	0.006 40 ± 0.000 33
2013	10.12 ± 0.45	0.930 ± 0.029	1.90 ± 0.049	0.012 8 ± 0.000 45
平均值 average	14.145	1.396	2.158	0.021 7

注: - 表示未采集数据。

Note: - expresses no collect data.

图3表示的是嵊山岛大气气溶胶中的重金属元素年平均沉降通量变化趋势,由图3可知近

十年来,Cu、Pb、Zn、Cd元素年沉降通量变化不大,除2006的Cd元素较为异常。由颗粒物重金

属浓度日变化序列图(图2)中可以看出,2006年2月Cd浓度很高,是造成相对应的通量高的主要原因。

从客观因素考虑,表3列举了2006年2月中嵊山海洋大气监测中风向的监测数据,2006年2月与其他年份不同的是,风向主要是偏东风,风由大陆吹向岛上,天气以多云、阴天为主,没有出现雨雪天。这些气象要素都为大气干沉降的重金属含量增高提供了条件。冬季燃煤、垃圾焚烧等Cd元素的特殊来源等,导致了图3中Cd浓度升高。

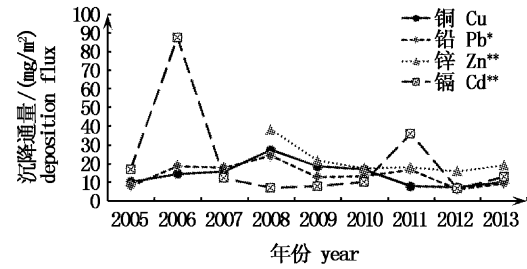


图3 嵊山重金属年沉降通量变化趋势图(mg/m^2)
Fig.3 Annual fluxes of metal in different years (mg/m^2)

* Pb 数据 $\times 10^{-1}$, * * Zn、Cd 数据 $\times 10^{-3}$ 。

* the data of Pb $\times 10^{-1}$, * * the data of Zn、Cd $\times 10^{-3}$ 。

表3 2006年2月嵊山大气监测气象数据

Tab.3 Shengshan atmospheric monitoring meteorological data in February 2006

日期 data	2006.2.1	2006.2.2	2006.2.4	2006.2.5	2006.2.8	2006.2.11
平均风向 average wind direction	偏北风	南风偏西	北风偏东	南风偏东	北风偏西	北风偏西
天气 Weather	阴 cloudy	阴 cloudy	阴 cloudy	阴 cloudy	多云 cloudy	晴 sunny
日期 data	2006.2.12	2006.2.14	2006.2.15	2006.2.17	2006.2.21	2006.2.24
平均风向 average wind direction	偏东风	南风偏西	偏东风	南风偏东	南风偏西	南风偏东
天气 Weather	多云 cloudy	阴 cloudy	阴 cloudy	阴 cloudy	多云 cloudy	多云 cloudy

2.2 重金属元素通量区域对比分析

表4显示了不同区域中各重金属元素的沉降通量值,以及本研究结果与其他区域结果的比较^[8,13-16]。与其他地区有所区别的是,嵊山海域大气的Cu元素干沉降通量处于较高的水平,而Pb、Zn、Cd的含量较低,远远低于渤海海域的天津港、黄海海域的青岛以及兴化湾、珠三角地区。根据欧盟最佳可行技术文件,煤炭燃烧、钢铁生产,特别是烧结工艺会排放Pb、Zn等重金属污染物,另外在炼铁、炼钢等无组织排放尘中也会含有大量高浓度的重金属污染物^[2]。一般认为Pb的来源主要是汽车尾气和燃煤^[17],而上海早已实现汽油的无铅化,嵊山岛上的燃煤也很少,因此Pb含量较低;而Zn、Cu来自于钢铁行业^[18],上海

宝山和杨浦有大量的钢铁冶炼行业,嵊山岛可能受到这些工业的影响,但由于距离工厂较远,因此Zn的含量较低,但也呈现出明显的季节变化,而Cu元素可能与当地燃煤含有Cu元素较多有关,造成大气颗粒物中Cu元素含量较大;Cd主要来自工业生产,如钢铁废弃物的回收、垃圾的焚化等,与Zn一样,上海的钢铁工业和老港附近垃圾厂的垃圾焚烧产生的气体是嵊山岛Cd的主要来源。从表4也可以看出,近海区域Cu、Pb、Cd的干沉降通量远远大于远洋中的相对含量,表明陆地上人类的活动例如运输交通、工厂企业等对海洋大气中重金属元素影响较大。嵊山岛大气中的Cu含量是今后重点研究的对象。

表4 不同地区大气重金属干沉降通量

Tab.4 Comparison of atmospheric deposition of metal between Shengshan island and other regions mg/m^2

	北太平洋 The North Pacific ^[8]	南太平洋 The South Pacific ^[8]	南大西洋 The South Atlantic ^[8]	北印度洋 North India Ocean ^[8]	嵊山 Shengshan	青岛 Qingdao ^[13]	福建兴化湾 Fujian Xinghua Bay ^[14]	珠江三角洲 Pearl River Delta ^[15]	天津港 Tianjin Port ^[16]
Cu	0.69	0.0026	0.29	0.085	7.18~27.05	21.9	2.72	18.6	10.59
Pb	0.37	0.1	1.5	0.39	0.6~2.4	32.8	3.83	12.7	27.73
Zn	-	-	-	-	1.57~3.80	50.1	14.39	104	55.85
Cd	0.016	0.0009	0.012	0.005	0.0054~0.0873	-	0.08	0.07	-

注: - 表示未检测数据。

Note: - expresses no collected data.

3 讨论与结论

从嵎山岛近十年大气干沉降数据分析可以看出,大气颗粒物中各元素沉降通量之间有着很大的差异。重金属干沉降通量大小顺序为 $\text{Cu} > \text{Zn} > \text{Pb} > \text{Cd}$, 十年平均年通量分别为 14.15、2.16、1.40、0.022 mg/m^2 , 均小于我国空气质量标准限值, 其中 Cu 通量大约占这 4 种重金属的 80%。

从季节变化来看, 嵎山大气重金属月沉降通量的变化较为复杂, 2004–2008 年表现为夏、秋两季低于春、冬两季, 且每年相同月份呈现出上升的趋势; 2009–2013 则为夏、冬较高, 春、秋略低的趋势, 但春、夏、秋季差异不大, 且每年的变化也呈现出逐渐变缓的趋势。从年际变化来看, 嵎山大气重金属年平均沉降通量较稳定, 变化不大。从区域比较来看, 与东海以及其他海域的大气重金属沉降通量相比, 舟山海域 Cu 元素的年沉降通量大于我国渤海天津港、南海珠江三角洲以及东海福建兴化湾的通量值, 同样也高于远洋海域中大气沉降的通量值; 而 Pb、Zn、Cd 元素沉降通量则远远小于上述海域相应的值, 与远洋值相差不大。

嵎山岛大气沉降中的 Cu、Pb、Zn、Cd 含量较小, 空气质量良好, 而大气沉降中 Cu 含量较高是一个隐含的环境问题, 大气中 Cu 元素排放的控制是今后嵎山岛及舟山海域大气污染防治的重点, 由于我国空气质量标准中没有单独的 Cu 元素限制参考, 应加强对 Cu 监测预报, 时刻关注其变化趋势, 及时采取应对措施。

参考文献:

- [1] 张曼平. SOLAS 计划——IGBP 的一个新的国际合作研究计划[J]. 地球科学进展, 2000, 15(3): 358–359.
ZHANG M P. SOLAS plan —— A new international cooperative research program in IGBP[J]. *Advance in Earth Sciences*, 2000, 15(3): 358–359.
- [2] 谭吉华, 段菁春. 中国大气颗粒物重金属污染、来源及控制建议[J]. 中国科学院研究生院学报, 2013, 30(2): 145–155.
TAN J H, DUAN J C. Heavy metals in aerosol in China: pollution, sources, and control strategies [J]. *Journal of Graduate University of Chinese Academy of Sciences*, 2013, 30(2): 145–155.
- [3] 李凤菊, 邵龙义, 杨书申. 大气颗粒物中重金属的化学特征和来源分析[J]. 中原工学院学报, 2007, 18(1): 7–11.
LI F J, SHAO L Y, YANG S S. Research on source and chemistry characterization of heavy metals in atmospheric particles [J]. *Journal of Zhongyuan University of Technology*, 2007, 18(1): 7–11.
- [4] 秦晓光, 程祥圣, 刘富平. 东海海洋大气颗粒物中重金属的来源及入海通量[J]. 环境科学, 2011, 32(8): 2193–2196.
QIN X G, CHENG X S, LIU F P. Source and air-sea fluxes of heavy metals in the atmospheric particles of east China sea [J]. *Environment Science*, 2011, 32(8): 2193–2196.
- [5] 战雯静, 张艳, 马蔚纯, 等. 长江口大气重金属污染特征及沉降通量[J]. 中国环境科学, 2012, 32(5): 900–905.
ZHAN W J, ZHANG Y, MA W C, et al. Characteristics and depositional fluxes of heavy metals in aerosol of the Yangtze Estuary[J]. *China Environmental Science*, 2012, 32(5): 900–905.
- [6] 张雅萍, 杨帆, 汪明明, 等. 运用单颗粒气溶胶质谱技术研究上海大气重金属(Zn, Cu)污染[J]. 复旦学报:自然科学版, 2010, 49(1): 51–59, 65.
ZHANG Y P, YANG F, WANG M M, et al. Single particle mass spectrometry of zinc and copper-containing aerosols in Shanghai[J]. *Journal of Fudan University: Natural Science*, 2010, 49(1): 51–59, 65.
- [7] 国家海洋局 908 专项办公室. 海洋化学调查技术规程 [M]. 北京: 海洋出版社, 2006: 216–222.
908 Special Office of the State Oceanic Administration. *Technical Specification for Marine Chemical Investigation* [M]. Beijing: Marine Press, 2006: 216–222.
- [8] 陈立奇, 余群, 杨绪林. 环球海洋大气气溶胶化学研究——Ⅲ: 金属形态和入海通量[J]. 大气科学, 1994, 18(2): 215–223.
CHEN L Q, YU Q, YANG X L. A Study of aerosol chemistry in the atmosphere over oceans part III: forms and air-sea fluxes of metal [J]. *Scientia Atmospherica Sinica*, 1994, 18(2): 215–223.
- [9] 詹建琼, 陈立奇, 张远辉, 等. 台湾海峡海表气溶胶干沉降通量研究[J]. 台湾海峡, 2010, 29(2): 257–264.
ZHAN J Q, CHEN L Q, ZHANG Y H, et al. Dry deposition fluxes of aerosol particles to surface water in the Taiwan Strait [J]. *Journal of Oceanography in Taiwan Strait*, 2010, 29(2): 257–264.
- [10] WILLIAMS R W. A model for the dry deposition of particles to natural water surface [J]. *Atmospheric Environment*, 1982, 16(8): 1933–1938.
- [11] LO A K F, ZHANG L M, SIEVERING H. The effect of humidity and state of water surfaces on deposition of aerosol particles onto a water surface[J]. *Atmospheric Environment*, 1999, 33(28): 4227–4737.
- [12] WU J. Oceanic whitecaps and sea state [J]. *Journal of*

- Physical Oceanography, 1979, 9(5): 1064 – 1068.
- [13] 王云龙. 青岛地区大气气溶胶中重金属分布特征及沉降通量的比较研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2005.
- WANG Y L. A Comparative study on the distribution of heavy metals and their deposition fluxes in Qingdao Area [D]. Qingdao: Ocean University of China, 2005.
- [14] 吴辰熙, 祁士华, 苏秋克, 等. 福建省兴化湾大气沉降中重金属的测定[J]. 环境化学, 2006, 25(6): 781 – 784.
- WU C X, QI S H, SU Q K, et al. Atmospheric deposition of heavy metals to Xinghua Bay, Fujian Province [J]. Environmental Chemistry, 2006, 25(6): 781 – 784.
- [15] 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.
- [16] 潘月鹏, 王跃思, 杨勇杰, 等. 区域大气颗粒物干沉降采集及金属元素分析方法[J]. 环境科学, 2010, 31(3): 553 – 559.
- PAN Y P, WANG Y S, YANG Y J, et al. Determination of Trace metals in atmospheric dry deposition with a heavy matrix of PUF by inductively coupled plasma mass spectroscopy after microwave digestion [J]. Environmental Science, 2010, 31(3): 553 – 559.
- [17] TAN M G, ZHANG G L, LI X L, et al. Comprehensive study of lead pollution in Shanghai by multiple techniques [J]. Analytical Chemistry, 2007, 78(23): 8044 – 8050.
- [18] PACYNA J M, PACYNA E G. An assessment of global and regional emissions of trace metals to the atmosphere from anthropogenic sources worldwide [J]. Environmental Reviews, 2001, 9(4): 269 – 298.

Characteristics of atmospheric heavy metals dry deposition in the Shengshan Island

LIN Xirong^{1,2,3}, YE Shufeng^{2,3}, SUN Yawei^{2,3}, YANG Xingxing^{2,3}

(1. College of Marine Sciences, Shanghai Ocean University, Shanghai 201306, China; 2. East China Sea Environment Monitoring Center, State Oceanic Administration, Shanghai 200137, China; 3. Key Laboratory of Integrated Marine Monitoring and Applied Technologies for Harmful Algal Blooms, Shanghai 200137, China)

Abstract: Dry deposition fluxes of heavy metals in Zhoushan sea area were calculated through a single point of dry deposition model based on the monitoring data of selected heavy metal elements in atmospheric particulate matter (Cu, Pb, Zn, Cd) in Shengshan Island in four seasons (February, May, August and October) from 2004 to 2013. The results showed that, the magnitude order of monthly and yearly dry deposition fluxes of heavy metal elements in the atmospheric was $\text{Cu}(14.15 \text{ mg/m}^2) > \text{Zn}(2.16 \text{ mg/m}^2) > \text{Pb}(1.40 \text{ mg/m}^2) > \text{Cd}(0.022 \text{ mg/m}^2)$, the corresponding concentration of which was less than the limit value of China's air quality standards. Cu accounted for 80% of the total metals. Monthly flux variation of heavy metals in recent years was complex, the data in winter and spring was higher than that in autumn and summer for the early phases (2004 – 2008); while the trend turned higher in summer and winter for the late period (2009 – 2013). Compared with other sea areas, both the monthly and annual deposition fluxes of Cu are higher than those in Pearl River Delta, Tianjin Port, Fujian Xinghua Bay, just below the Qingdao sea area; while Pb, Zn, Cd values are far less than those sea areas, but have little difference with the ocean monitoring values.

Key words: heavy metal; atmospheric dry deposition; flux; Shengshan Island; seasonal variation