

北京大气颗粒物和重金属铅干沉降通量及季节变化

姚利¹, 刘进^{1,2}, 潘月鹏^{1*}, 田世丽¹, 王振波³, 韦霞⁴, 张国忠¹, 周保华², 王跃思¹

(1. 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; 2. 济南大学资源与环境学院, 济南 250022; 3. 中国科学院地理科学与资源研究所, 北京 100101; 4. 云南省气象局, 昆明 650000)

摘要: 为了解大气颗粒物和重金属铅 (Pb) 干沉降通量的变化规律, 采用聚氨酯泡沫膜片为代用面联合干湿沉降自动观测设备, 于 2013 年 12 月~2014 年 11 月在北京城区采集了颗粒物干沉降, 利用微波消解和电感耦合等离子体质谱仪对样品中全量 Pb 和水溶性 Pb 进行了测试分析。结果表明: 北京大气颗粒物和 Pb 干沉降通量分别为 $0.84 \text{ t} \cdot (\text{hm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 和 $7.56 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 呈现出春季>冬季>秋季~夏季的特征。大气颗粒物中水溶性 Pb 干沉降通量为 $3.14 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 占 Pb 干沉降总量的 43%, 这一比例呈现出冬春季高于夏秋季的特征。人为源排放不仅增加了大气颗粒物和 Pb 的干沉降通量, 也改变了水溶性 Pb 干沉降通量的季节分布。研究结果对科学评估重金属沉降的生态影响和健康效应提供了科学基础, 同时凸显了消减人为源重金属排放的重要性。

关键词: 大气污染; 颗粒物; 干沉降; 铅; 溶解性

中图分类号: 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301 (2017)

DOI:10.13227/j.hj.kx.201601132

Atmospheric Dry Deposition Fluxes and Seasonal Variations of Particulate Matter and Lead in Urban Beijing

YAO Li¹, LIU Jin^{1,2}, PAN Yue-peng^{1*}, TIAN Shi-li¹, WANG Zhen-bo³, WEI Xia⁴, ZHANG Guo-zhong¹, ZHOU Bao-hua², WANG Yue-si¹

(1. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 2. School of Resources and Environment, University of Jinan, Shandong 250022, China; 3. Institute of Geographic Sciences and Natural Resources Research, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China; 4. Yunnan Meteorological Bureau, Kunming 650000, China)

Abstract: To investigate the dry deposition pattern of particulate matter and lead in urban Beijing, dry deposited particles were collected based on a surrogate surface between December 2013 and November 2014 and subjected to elemental analysis by using microwave digestion and inductively coupled plasma mass spectrometry. The

收稿日期: 2016-01-22; 修订日期: 2016-09-21

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41405144); 国家重点研发计划专项 (2016YFD0800302)

作者简介: 姚利 (1983~), 女, 博士, 主要研究方向为大气干湿沉降, E-mail: yaoli05@mail.iap.ac.cn

*通讯联系人, E-mail: panyuepeng@mail.iap.ac.cn

results showed that dry deposition fluxes of particle mass and total lead were $0.84 \text{ t} \cdot (\text{hm} \cdot \text{a})^{-1}$ and $7.56 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, respectively, with a seasonal trend of the spring > winter > autumn~ summer, exhibiting a similar temporal pattern with that of coarse particles. In addition, dry deposition flux of the water-soluble lead was $3.14 \text{ mg} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{a})^{-1}$. It was found that the ratio of soluble fraction to total lead in dry deposited particles reached up to 43%, coinciding with a seasonal variation of ambient sulfur dioxide. The findings highlighted the anthropogenic imprints on the dry deposition flux of particles and heavy metals and the solubility of lead. This study also provides a first-hand dataset that can be used to assess ecological and environmental impacts of dry deposited lead, and an up-to-date scientific basis for the crafting abatement strategies to further reduce emission of heavy metals in China.

Key words: air pollution; particulate matter; dry deposition; lead; solubility

大气颗粒物因其对人体健康的潜在威胁,及其在全球气候和环境变化中的重要影响备受关注。除了在大气中的扩散和传输,干湿沉降是颗粒物被清除出大气的最终途径^[1]。虽然干湿沉降会降低颗粒物在大气中的积累量,有利于改善大气环境质量,但大量化学物质也伴随着沉降物进入到地表,影响生态系统和人体健康^[2]。相比于研究较多的湿沉降^[3],国际上尚未形成广泛认可的干沉降观测技术规范,有关大气颗粒物干沉降的研究相对缺乏^[4]。代用面是采集大气颗粒物干沉降的常用方法,因为操作简单方便而得到了较多应用^[5]。对于大多数元素而言,它们的干沉降通量都大于湿沉降;但锌、镍、镉和铅(Pb)等重金属的干沉降量是否大于湿沉降量却有较大的空间差异^[4]。因此,研究大气颗粒物及化学组分的干沉降通量对深入理解大气污染现状、自净机制及其生态环境效应具有重要意义。

在颗粒物的化学构成中,有机碳、硫酸盐、硝酸盐、铵盐和矿尘是主要成分^[6],金属元素所占比例约 3%^[7,8]。大气颗粒物中重金属含量虽然较低,但因其生理毒性较大,是危害人体健康的重要组分。其中, Pb 可对人体神经系统和血液系统产生毒性作用,影响儿童智力和生长发育^[9],世界卫生组织规定大气中 Pb 的浓度不超过 $500 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 。悬浮在大气中的 Pb 同时存在于细颗粒物和粗颗粒物中,细颗粒物中的 Pb 可以随呼吸进入人体直接影响人体健康或者通过区域传输最终被湿清除;而粗颗粒物中的 Pb 更多的是通过大气干沉降被去除,进入地表后通过生态系统的食物链传递间接影响人体健康^[4]。随着我国大气污染的日趋严重,准确量化大气 Pb 通过干沉降向水体、土壤和植被的输入量非常重要。另外,重金属的毒性与其溶解性直接相关^[10],量化水溶性 Pb 的干沉降通量是科学评估其生态影响和健康效应的科学基础。国内外对全量重金属干沉降通量的季节变化及空间特征研究较多,但对水溶性金属干沉降的讨论主要集中在 Al 和 Fe 元素上面^[11],对水溶性 Pb 干沉降的研究鲜有报道。本研究以北京为我国大气污染的典型城市代表,通过外场观测和实验室分析,量化大气颗粒物、全量及水溶性重金属 Pb 的干沉降通量并分析其季节变化,以期为深入理解我国大气重金属污染的现状提供有益参考,也为评估大气污染对生态环境的影响提供科学基础。

1 材料与amp;方法

1.1 采样点介绍

外场观测实验设置在中国科学院大气物理研究所铁塔分部院内 (39°58' N, 116°22' E), 地处北京市区北三环路&北四环路之间的元大都公园内, 北 100 m 为东西走向的北土城西路, 东 200 m 为南北走向的 G6 高速。为避开地面扬尘的直接影响, 采样点设置于办公楼顶(高 6 m), 四周 100 m 内植被分布较多, 无高大建筑&明显的局地排放源, 能够代表周围的大气环境。

1.2 采样与分析方法

采样设备由 APS-2B 型干湿沉降自动观测仪 (青岛崂山电子仪器总厂) 和集尘缸 (直径 15 cm, 高 30 cm) 组成, 降雨开始 10 s 内干沉降采集自动停止, 以最大限度的减少湿沉降的影响。集尘缸中放置聚氨酯泡沫膜片 (PUF 膜, 直径 15 cm, 厚 1.35 cm) 采集干沉降。

为获得完整的季节变化规律, 观测实验自 2013 年 12 月开始, 至 2014 年 11 月结束, 每月采集一次样品。PUF 膜在采样前后置于恒温恒湿箱中 48 h (平衡条件: 相对湿度 50%, 25°C), 然后用十万分之一分析天平称重, 差减法计算所采集的降尘量, 再根据采样面积&时间计算颗粒物干沉降通量。

为分析干沉降化学组成, 首先用塑料剪刀剪下 6 片载有 10 mg 左右干沉降物质的 PUF 膜样品, 称重后将其中 3 片 (3 次重复) 转移到微波消解罐中, 依次加入 6 mL HNO₃ (Merck)、2 mL H₂O₂ (Merck) 和 0.2 mL HF (Merck), 采用逐步升温的方式进行微波消解 (CEM-MARS, CEM Corporation, Matthews, NC, USA), 消解液用去离子水定容至 50 mL 后使用 ICP/MS (Agilent 7500ce, Agilent Technologies, Tokyo, Japan) 进行 Pb 元素全量分析。将另外 3 片剪下的 PUF 样品置于 PET 瓶中, 加入 40 mL 去离子水 (18.2 MΩ·cm), 超声 30 min 浸提干沉降中的水溶性成分, 过滤后加入 1% HNO₃ 后使用 ICP/MS 测量水溶性 Pb 含量。实验分析过程质量控制&质量保障技术方法见文献[4]。

2 结果与分析

2.1 颗粒物干沉降通量变化特征

2.1.1 季节变化

图1给出了2013年12月~2014年11月大气颗粒物干沉降通量的逐月变化结果。可以看出, 大气颗粒物干沉降通量观测最高值出现在4月, 为12.4 g·(m²·month)⁻¹; 最低值出现在7月, 为

$3.5 \text{ g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{month})^{-1}$ 。总体上，观测期间春季和冬季干沉降通量较高，夏季和秋季比较接近，呈现出春季>冬季>秋季~夏季的特征。干沉降在春季出现最高值与国内一些研究结果一致，主要原因是北方春季气候干燥、沙尘频发，风速较大也使城市扬尘增多^[12]。从干沉降通量的季节变化图1(a)可以看出，干沉降通量季节变化特征与PM₁₀浓度变化特征更为接近（相比于PM_{2.5}），表明干沉降通量更多受到粗颗粒物（PM_{2.5-10}）浓度季节变化的控制^[4]。除了排放源强度的季节变化，气象条件的自然演变是颗粒物浓度及沉降通量季节变化的主要原因，如春季强劲西北风携带的沙尘和夏季降水对颗粒物的有效清除^[4, 6]，导致春季观测结果明显高于夏季。

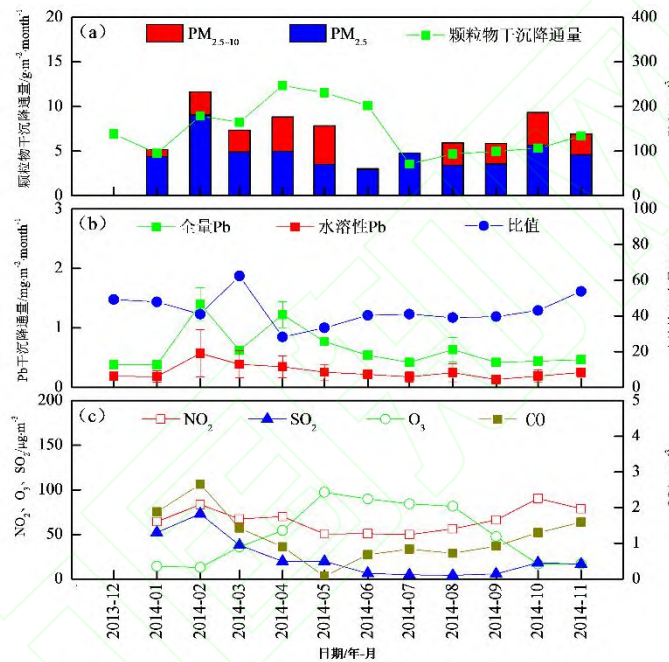


图1 大气颗粒物和重金属铅干沉降通量及大气污染物浓度逐月变化

Fig.1 Concentrations and fluxes of atmospheric pollutants measured in urban Beijing

2.1.2 与其它地区的比较

表1为北京与国内外部分地区干沉降通量的对比图。对比分为2个时间段，一个是2010~2014年，另一个是2001~2002年。在本文观测期间，北京地区颗粒物沉降通量为 $0.84 \text{ t}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ ，低于国家降尘量参考限值 $[11.1 \text{ t}\cdot(\text{km}^2\cdot\text{month})^{-1}]$ ，约合 $1.33 \text{ t}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$ ，但高于同时段的伊朗阿巴里和菲如兹库、西班牙大加纳利岛和红海、阿卡巴湾等地区的观测结果，是西班牙大加纳利岛的4.2倍（表1）。北京2001~2002年的观测结果高于同时段的美国新不伦瑞克和新泽西以及山东青岛，是美国新泽西年沉降通量的6.6倍，是青岛地区的3.8倍（表1）。大气干沉降在一定程度上指示着大气粗颗粒物的污染程度，与当时空气中粗颗粒物污染状况密切相关。整体而言，北京颗粒物干沉降通量高于国内外观测结果，这与当地较高的

颗粒物浓度有一定关系。

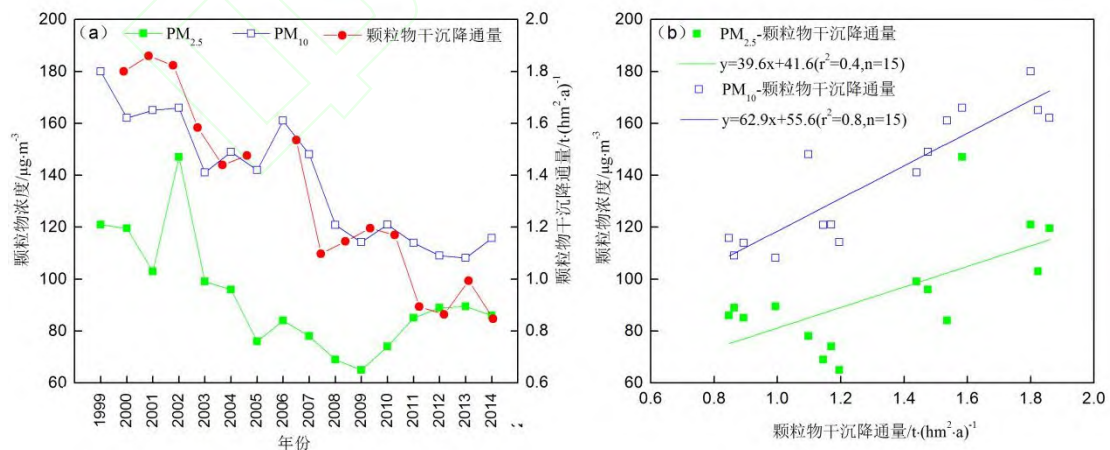
表 1 国内外部分地区大气颗粒物干沉降通量/ $t \cdot (hm^2 \cdot a)^{-1}$

Table 1 Atmospheric particle mass dry depositions fluxes within and outside China / $t \cdot (hm^2 \cdot a)^{-1}$

地点	观测年份	平均值	文献
北京	2014	0.84	本研究
北京	2001~2002	1.51	[12]
青岛	2001~2002	0.40	[12]
美国新不伦瑞克	2001~2002	0.36	[13]
美国新泽西	2001~2002	0.23	[13]
伊朗阿巴里	2010~2011	0.58	[14]
伊朗菲如兹库	2010~2011	0.45	[14]
伊朗瓦拉明	2010~2011	0.87	[14]
约旦阿卡巴湾、红海	2012	0.35	[15]
西班牙大加纳利岛	2009~2012	0.20	[15]

2.1.3 年际变化

图 2 (a) 给出了北京地区 1999~2014 年大气颗粒物浓度和干沉降通量统计结果。可以看出, 近十几年来北京大气降尘量由 $1.86 t \cdot (hm^2 \cdot a)^{-1}$ 持续性下降到 $0.84 t \cdot (hm^2 \cdot a)^{-1}$, 大气中颗粒物浓度也呈总体下降趋势。基于 1999~2014 年颗粒物干沉降通量、 PM_{10} 及 $PM_{2.5}$ 年际平均数据, 分别做颗粒物干沉降与 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 的线性拟合, 从图 2(b) 可以看出, 颗粒物干沉降通量的年际变化规律与 PM_{10} 的相似性要高于 $PM_{2.5}$ (r^2 分别为 0.8 和 0.4, $P < 0.05$), 这主要是由于干沉降更容易受到粗粒子的影响^[4]。基于图 2(b), 可以建立年际尺度上颗粒物浓度与干沉降通量的经验公式, 即 $y = 62.9x + 55.6$, 进而利用 PM_{10} 年均浓度估算干沉降通量。



1997~2007 年 PM_{10} 浓度和颗粒物干沉降通量、2010~2012 年颗粒物干沉降通量、2010~2013 年 PM_{10} 、2013~2014 年 $PM_{2.5}$ 数据引自北京市环境公报; 1999 年 $PM_{2.5}$ 引自文献[16], 2000~2004、2011~2012 年 $PM_{2.5}$ 数据引自文献[17], 2005~2010 年 $PM_{2.5}$ 数据引自文献[18]; 2013~2014 年颗粒物干沉降通量和 2014 年 PM_{10} 为本研究结果

图 2 北京市 1999~2014 年大气颗粒物质量浓度及其干沉降通量

Fig.2 Concentrations of PM_{10} and $PM_{2.5}$ and particle mass dry deposition fluxes of Beijing during 1999-2014

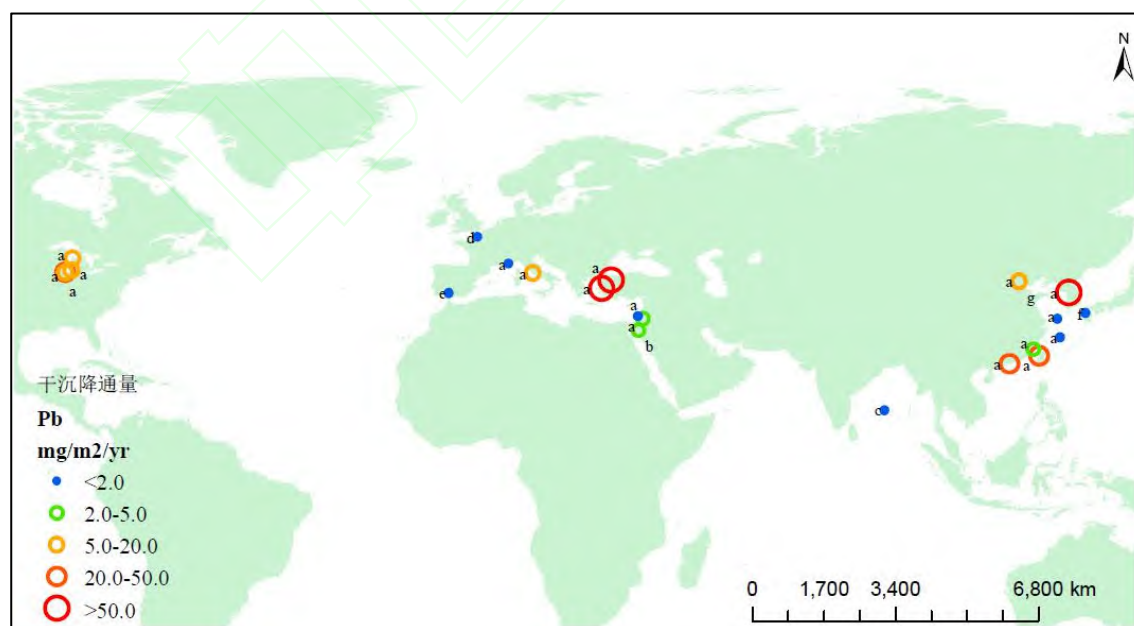
2.2 颗粒物中全量 Pb 干沉降通量变化特征

2.2.1 季节变化

图 1(b)给出了北京 2013 年 12 月~2014 年 11 月年大气颗粒物 Pb 干沉降通量的逐月变化情况。可以看出,与北京颗粒物干沉降通量的季节变化规律较为相似,冬春季的 Pb 沉降总量高于夏秋季,最高值出现在 2 月[$1.40 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{month})^{-1}$],这可能与采暖期燃煤排放有关,同期较高的 SO_2 浓度也可佐证 [图 1(c)]。4 月的 Pb 沉降通量的次高值可能是受到了沙尘影响,沙尘传输导致该月份颗粒物干沉降量也达到观测期间的最高值。Pb 干沉降量最低值出现在 7 月[$0.4 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{month})^{-1}$],主要与雨水的湿清除较多有关。

2.2.2 与其它地区的比较

观测期间,北京大气颗粒物 Pb 干沉降通量为 $7.56 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$,比 2008~2010 年观测结果[$13.2 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]下降了近 40%^[4]。为深入了解北京 Pb 沉降通量的污染水平,图 3 给出了国内外 Pb 干沉降通量的统计结果。可以看出,Pb 沉降量在全球空间上变化范围较大 [$(0.04\sim 80.30) \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$]。与国内研究结果相比,北京 Pb 沉降通量高于福建兴化湾、黄海、东海等地区,低于台湾、香港的观测结果(图 3)。与国外报道结果相比,北京 Pb 沉降通量高于红海、孟加拉湾、安曼、法国卡普菲拉、西班牙安达卢西亚,但低于朝鲜和韩国、意大利以及美国芝加哥等地区(图 3)。



a.引自文献[4]; b.The Gulf of Aqaba, Red Sea, 2012 年数据引自文献[19]; c.Bay of Bengal, 2009 年数据引自文献[20]; d.The Marais Vernier, Bay of Seine, France, 2010~2012 年数据引自文献[21]; e.Andalusia, Spain, 2006~2009 年数据引自文献[22]; f.Matsuurra, Japan, 2004~2006 年数据引自文献[23]; g.本研究结果

图3 国内外大气颗粒物 Pb 干沉降通量

Fig.3 Atmospheric dry depositions fluxes of lead within and outside China

2.2.3 水溶性 pb 干沉降通量季节变化特征

图1 (b) 也给出了2013年12月~2014年11月年大气颗粒物中水溶性Pb干沉降通量的逐月变化情况。可以看出,水溶性Pb干沉降通量最高值出现在2月份,为 $0.57 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{month})^{-1}$;最低值出现在9月,为 $0.13 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{month})^{-1}$ 。整体上,水溶性Pb干沉降通量的季节变化与全量Pb干沉降通量具有一致性(4月除外)。

本研究期间,水溶性Pb干沉降通量平均为 $3.14 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$,占Pb沉降总量的比例为43%,呈现出冬季(46%)>秋季(44%)>春季(41%)>夏季(40%)的趋势。这一趋势与北京SO₂浓度季节变化规律相似,表明燃煤排放不仅增加了Pb的干沉降量,也对颗粒物干沉降中Pb的水溶性存在重要影响。已有研究发现,Pb等重金属的溶解性随着pH值的降低(从5.7降低到3.4)而逐渐升高^[11]。另外,颗粒物来源也会影响金属元素的溶解性^[24]。相比于自然源,人为源颗粒物中Pb的溶解性更高^[24],这可能是由于人为源粒子中金属主要是来自金属磨损或高温热蒸汽凝结,且凝结粒子表面,因而比自然源更不稳定^[25]。由于燃煤排放的颗粒物粒径小、比表面积大,有利于颗粒物中Pb的溶出,再叠加上燃煤源SO₂等酸性气体在颗粒物表面的吸附而引起的酸性增加,进一步增加了重金属Pb的溶解性^[26]。

3 结论

(1) 北京城区2013年12月~2014年11月大气颗粒物干沉降通量为 $0.84 \text{ t}\cdot(\text{hm}^2\cdot\text{a})^{-1}$,呈现出春季>冬季>秋季~夏季的趋势,并且在近16年来呈现阶段性下降的趋势,与大气粗颗粒物浓度的时间变化趋势一致。

(2) 观测期间,大气颗粒物Pb干沉降通量为 $7.56 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$,呈现出春季>冬季>秋季~夏季的趋势,季节变化受到排放源和气象条件的的共同影响。通过对比国内外大气Pb干沉降通量,北京观测值处于中等水平。

(3) 观测期间,大气颗粒物水溶性Pb干沉降通量为 $3.14 \text{ mg}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{a})^{-1}$,占全量Pb干沉降通量的43%,该比例呈现出冬季>秋季>春季>夏季的变化规律,与SO₂季节分布具有一致性,表明燃煤排放对Pb的溶解性具有重要影响。

参考文献:

- [1] 彭玉龙, 王永敏, 覃蔡清, 等. 重庆主城区降水中重金属的分布特征及其沉降量[J]. 环境科学, 2014, **35**(7): 2490-2496.
Peng Y L, Wang Y M, Qin C Q, *et al.* Concentrations and Deposition Fluxes of Heavy Metals in Precipitation in Core Urban Areas, Chongqing[J]. Environmental Science, 2014, **35**(7): 2490-2496.
- [2] 李晓燕, 张舒婷. 城市区域近地表灰尘及重金属沉降垂向季节变化[J]. 环境科学, 2015, **36**(6): 2274-2282.
Li X Y, Zhang S T. Seasonal Provincial Characteristics of Vertical Distribution of Dust Loadings and Heavy Metals near Surface in City[J]. Environmental Science, 2015, **36**(6): 2274-2282.
- [3] 李月梅, 潘月鹏, 王跃思, 等. 华北工业城市降水中金属元素污染特征及来源[J]. 环境科学, 2012, **33**(11): 3712-3717.
Li Y M, Pan Y P, Wang Y S, *et al.* Chemical Characteristics and Sources of Trace Metals in Precipitation Collected from a Typical Industrial City in Northern China [J]. Environmental Science, 2012, **33**(11): 3712-3717.
- [4] Pan Y P, Wang Y S. Atmospheric wet and dry deposition of trace elements at 10 sites in Northern China[J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 2015, **15**(14): 951-972.
- [5] 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.
- [6] 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 & Physics, 2015, **15**(6): 9405-9443.
- [7] Pan Y, Tian S, Li X, *et al.* Trace elements in particulate matter from metropolitan regions of Northern China: Sources, concentrations and size distributions[J]. Science of the Total Environment, 2015, **537**: 9-22.
- [8] Pan Y, Wang Y, Sun Y, *et al.* Size-resolved aerosol trace elements at a rural mountainous site in Northern China: importance of regional transport[J]. Science of the Total Environment, 2013, **461-462**: 761-771.
- [9] 肖锐, 李冰, 杨红霞, 等. 北京市大气颗粒物及其铅的来源识别和解析[J]. 环境科学研究, 2008, **21**(6): 148-155.
Xiao R Li B, Yang H X, *et al.* Source Identification and Apportionment of Particulate Matter and Aerosol Lead in Beijing[J]. Research of Environmental Sciences, 2008, **21**(6): 148-155.
- [10] Sahariah B, Goswami L, Farooqui I U, *et al.* Solubility, hydrogeochemical impact, and health assessment of toxic metals in municipal wastes of two differently populated cities[J]. Journal of Geochemical Exploration, 2015, **157**: 100-109.
- [11] Okubo A, Takeda S, Obata H. Atmospheric deposition of trace metals to the western North Pacific

- Ocean observed at coastal station in Japan[J]. Atmospheric Research, 2013, **129–130**: 20-32.
- [12] 张仁健, 浦一芬, 徐永福, 等. 青岛大气气溶胶的浓度分布和干沉降的观测研究[J]. 气候与环境研究, 2004, **9** (2): 390-395.
Zhang R J, Pu Y F, Xu Y F, *et al.* Observation on Mass Concentration and Dry Deposition of Atmospheric Aerosols in Qingdao[J]. Climatic and Environmental Research, 2004, **9**(2): 390-395.
- [13] Yi S M, Totten L A, Thota S, *et al.* Atmospheric dry deposition of trace elements measured around the urban and industrially impacted NY–NJ harbor[J]. Atmospheric Environment, 2006, **40**(34): 6626-6637.
- [14] Javid M, Bahramifar N, Younesi H, *et al.* Dry deposition, seasonal variation and source interpretatin of ionic species at Abali, Firouzkouh and Varamin, Tehran Province, Iran[J]. Atmospheric Research, 2015, **157**: 74–90.
- [15] López-García P, Gelado-Caballero M D, Santana-Castellano D, *et al.* A three-year time-series of dust deposition flux measurements in Gran Canaria, Spain: A comparison of wet and dry surface deposition samplers[J]. Atmospheric Environment, 2013, **79**(7): 689-694.
- [16] He K, Yang F, Ma Y, *et al.* The characteristics of PM_{2.5} in Beijing, China[J]. Atmospheric Environment, 2001, **35**(29): 4959-4970.
- [17] Lv B, Zhang B, Bai Y. A systematic analysis of PM_{2.5} in Beijing and its sources from 2000 to 2012[J]. Atmospheric Environment, 2016, **124**: 98-108.
- [18] Wang L, Liu Z, Sun Y, *et al.* Long-range transport and regional sources of PM_{2.5} in Beijing based on long-term observations from 2005 to 2010[J]. Atmospheric Research, 2015, **157**: 37-48.
- [19] Al-Taani A A, Rashdan M, Khashashneh S. Atmospheric dry deposition of mineral dust to the Gulf of Aqaba, Red Sea: Rate and trace elements[J]. Marine Pollution Bulletin, 2015, **92**(s 1–2): 252–258.
- [20] Srinivas B, Sarin M M. Atmospheric dry-deposition of mineral dust and anthropogenic trace metals to the Bay of Bengal[J]. Journal of Marine Systems, 2013, **126**(5): 56-68.
- [21] 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.
- [22] Montoya-Mayor R, Fernández-Espinosa A J, Seijo-Delgado I, *et al.* Determination of soluble ultra-trace metals and metalloids in rainwater and atmospheric deposition fluxes: A 2-year survey and assessment[J]. Chemosphere, 2013, **92**(8): 882–891.
- [23] Sakata M, Asakura K. Atmospheric dry deposition of trace elements at a site on Asian-continent side of Japan[J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**(5): 1075-1083.
- [24] Desboeufs K V, Sofikitis A, Losno R, *et al.* Dissolution and solubility of trace metals from natural

and anthropogenic aerosol particulate matter[J]. Chemosphere, 2005, **58**(2): 195-203.

[25] Heal M R, Hibbs L R, Agius R M, *et al.* Total and water-soluble trace metal content of urban background PM₁₀, PM_{2.5} and black smoke in Edinburgh, UK[J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(8): 1417-1430.

[26] Jickells T D, An Z S, Andersen K K, *et al.* Global Iron Connections Between Desert Dust, Ocean Biogeochemistry, and Climate[J]. Science, 2005, **308**(5718): 67-71.

