

跬步集

2022.08

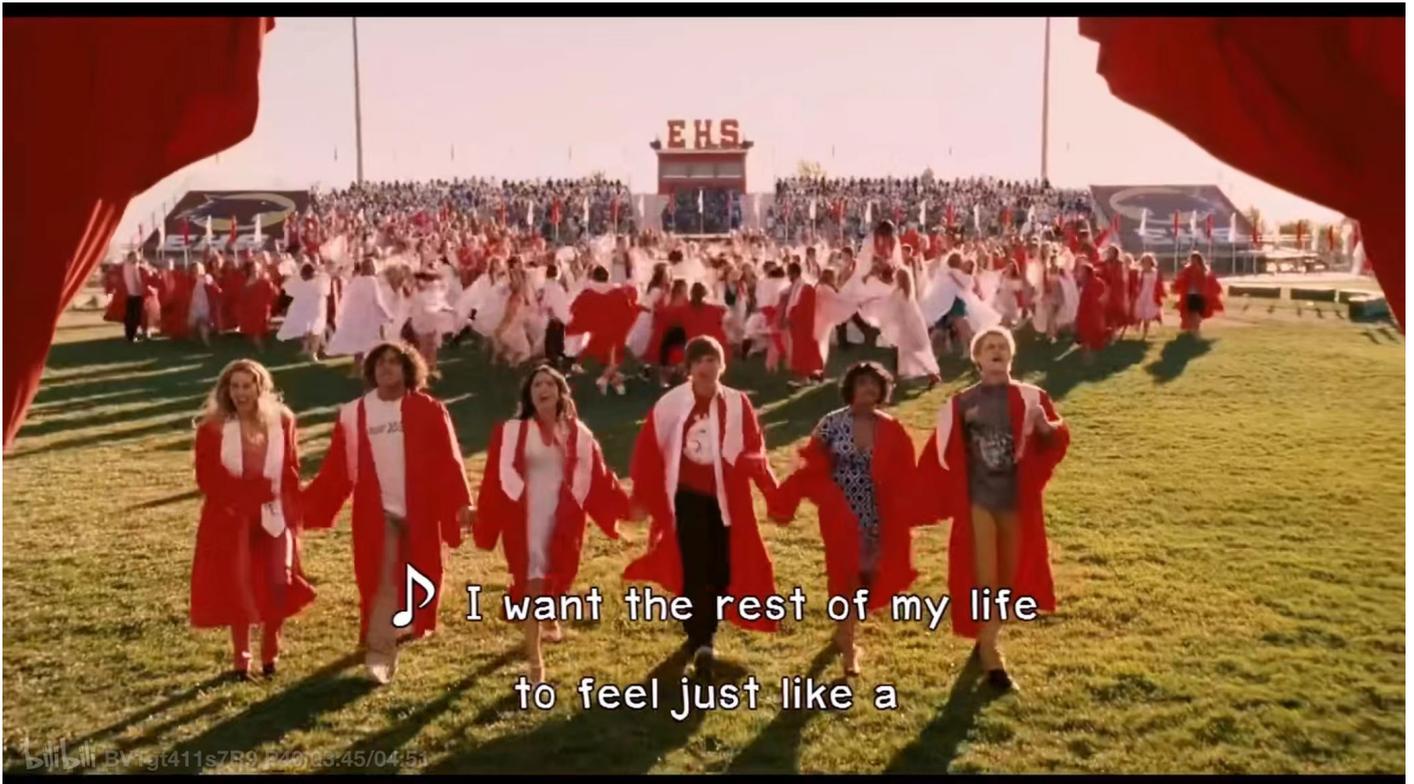
第46期



封面：林艺旻

COLUMN

七月，悲喜交加，麦浪翻滚连同草地，
直到天涯



恰逢上任的第二期跬步集，组里就发生了不小的变化。有三位师兄师姐，在2022年的这个夏天，毕业了。

本期内容的前三篇就由今年毕业的三位师兄师姐带来：一位在短短硕士三年就硕果累累，文章影响力甚至远达欧洲，她也即将去向遥远的大洋彼岸，实现更高的人生价值；一位是性格豪爽的羽毛球健将，即将继续从事和“大气”相关的工作；而最后一位则是韬光养晦多年，在大家看不见的地方勇敢生长。

你有没有设想过自己的毕业？我曾经以为自己的大学毕业会像电影《歌舞青春》里的那样：家人朋友相聚庆祝这一特别的时刻；你戴上四方的学术帽，在某一时刻抛向天空；校园的每个角落都会留下你的身影；你会收获朋友的祝福、老师的叮嘱、或是一场一生难忘的毕业旅行……

我的大学毕业发生在 2020 年的武汉，因为新冠疫情的爆发，取消了一切的毕业项目，所有人都隔着小小的屏幕见面，甚至因为要在 24 小时内离校，我和好朋友只短短的在宿舍见了一面，就匆匆离开……线上毕业答辩完的那个下午，我戴上几年前在迪士尼买的纪念品学术帽，在家拍了一组特殊的毕业照，以此，宣告我的大学生涯告一段落。

谁说人生必修的课题里没有“度过”二字呢？想必是所有的相遇都必然附着离别的怅然，所有在快乐银行借的贷款也终究要还。

当我们学会了在水中呼吸，我们就将永远记得。

夏季会一个接一个的到来，再一个接一个的过去。但人们不会因此忘记游泳的技巧，当我们学会了在水中呼吸，我们就将永远记得。

快乐起来，我的朋友，我们将永远记得。

主编雨薇

TRAVEL

印度洋的眼泪——斯里兰卡

黄晨



2022年7月9日，斯里兰卡政府宣布破产。当时的我正收拾着行李，准备离开度过了三年时光的地化所。沉浸在别离伤感中的我看到这条消息，愈加感到怅然若失。

斯里兰卡，不同于其他国家，看到它的名字时我会带有三分亲切，七分怀念。2019年2月，大学将毕业的时候，借着毕业旅行的名义，我和好友一起进行了一趟斯里兰卡志愿者之旅。说是志愿者之旅，实则也是打着志愿者的名号去斯里兰卡这个极具异域风情的神秘国度看一看。很多国际义工组织会选择斯里兰



康提佛牙寺门外街景

卡作为驻地，因为这里经济并不发达，有很多需要帮助或建设的地方。同时，作为印度洋岛国，斯里兰卡拥有海滩、丘陵、茶园等多元且秀美的风景，非常适合旅行。因此在那个本该寒冷的假期里，我在这个温暖的热带岛国上，度过了难忘的两星期。

DEEP

飞机上，我遇到了这段旅程中的第一个斯里兰卡人，Deep，他是一个三十多岁黑黑胖胖的精神小伙，有着斯里兰卡人标志性的浓眉大眼，性格腼腆却又稳重。可能是因为他神似我的初中同桌，让我产生了一些亲切感，上飞机没多久我就和他聊了起来，我们从他这次来中国的目的，公务出差，聊到斯里兰卡的人种组成，再聊到那些年中国政府在斯里兰卡的建设项目。在了解到我此行的目的是来做志愿者以及旅行后，他有些担忧我去的是否是正规机构，还问我是否需要在下飞机之后帮我把关来接机的人，我内心非常感激。他甚至还拿出他的名片，让我有问题随时给他打电话寻求帮助。从小被父母教导要警惕陌生人，我内心也有一丝丝惶恐，不知道 Deep 他是否是个好人。但我在下飞机换了本地电话卡之后，还是第一时间存了 Deep 的手机号，并在社交媒体上关注了他，看到至少那上面的 Deep 呈现出来的是一个优良青年的样子，我的戒备也慢慢放下。 4



Deep 请我们吃的正宗斯里兰卡料理

在接下来的几天里，我们通过社交媒体进行了几次聊天，我和他讲述了我在做志愿者的经历，他还约定在我们离开斯里兰卡的那天在科伦坡请我们吃正宗的斯里兰卡料理。虽然即使是科伦坡排名第一的斯里兰卡料理也并不符合我的口味，但这使我们的斯里兰卡之旅变得异常圆满。我惊喜于我们所接收到的好意，同时惊讶于 Deep 对于萍水相逢的人给予的善意。

Deep 在斯里兰卡科伦坡的汇丰银行工作，是和金钱直接相关的工作，如今卢比贬值、国家破产不知道对他造成了多少影响，愿他一切都好。

Maria

Maria并不是斯里兰卡人，而是一位同我一样来斯里兰卡做志愿者的巴西姑娘。给我留下深刻印象的是她的善良、勇气与果断。

我们的志愿项目名称为“特殊关怀”，工作内容是去到当地的福利院去帮助里面的员工完成他们的工作。那是一个住有五十多人的福利院，里面的人年龄从2岁到65岁不等，均为女性，她们都有着不同程度的身体或精神疾病，很难照料。福利院里的员工却仅有6个，巨大的工作量使他们不得不招揽众多来来往往的



康提街景

短期志愿者才足够分担工作。当第一次踏进福利院的时候，我就被里面混乱的场景震惊了，一个20多岁的卷发女人抓住另一个中年女人的头发，脸上是婴儿式的哇哇大哭，同时还有鼻涕不断的留下；被抓着的那个骨瘦如柴的中年女人奋力挣脱，想逃过这个突如其来的灾难。从来没有面对过这种情形的我，一时间不知道剩下的一个星期应该如何和他们同在一个屋檐之下，更别说照顾他们了。当我内心还带着恐惧时，一个志愿者小姐姐上前厉声呵斥那个抓人头发的女人。在阻止了更多的肢体冲突之后，那个志愿者脸色变得和善起来，开始尽力安抚以让她们的心情平息下来。这位小姐姐的勇气以及在处理冲突时的果断让我钦佩不已。她就是 Maria，已经在这个福利院志愿工作五个星期了。五个星期的工作让她可以喊出这里的每个人的名字并对每个人的身体情况有了足够的了解，对她们进行针对性的沟通与帮助。

接下来的一个星期里，我都在她身后尽力模仿，从最初的如何克服内心里的恐惧，到如何和这里的患者相处，再到照顾她们。在我即将离开福利院的最后一天，一位女人拉着我坐到屋檐下的石阶上，张开手掌向我展示她在手工课上做的耳钉，并让我帮她带上。



被小女孩们拉着一起唱歌，结束后的合影，图中为我的好朋友，我则是摄影师

如果和他们眼神交汇，总能看到他们脸上绽放着大大的微笑。

或许是这里炎热的环境塑造了斯里兰卡人热情淳朴的性格，他们对陌生人也总是充满善意，如果和他们眼神交汇，总能看到他们脸上绽放的大大的微笑，他们洁白的牙齿在他们晒得黑的有些发红的皮肤上显得更加显眼。音乐是他们表达对生活热爱的载体，无论是在洒满夕阳的草地上，还是在狭小的蓝色铁皮火车里，你都能看到一群穿着洁白校服的女中学生们，或是穿着人字拖的本地男人，只需一个人开始击打其手边的手鼓，就会有一群簇拥的人边拍着手掌，边唱着动听欢乐的歌。你很难不被这种欢乐的氛围感染。

在这个被称为印度洋上的一滴眼泪的岛国上，我看到秀美的风景，认识了可爱的人，同时也看到勤劳的人们在辛苦生活的同时保持热爱，积极向上。它提醒我不要被冰冷的社会丛林法则所规训，应时刻保持善意，表达，并传递善意。如今，近四年过去了，目前的斯里兰卡好像生活在水深火热之中，通货膨胀导致的物价飞涨，没有足够的燃料和石油，甚至连最基本的生活物资好像都无法保障。不同于网络上对斯里兰卡政府所作所为的批判，我更担心曾经在这里遇到的善良朴实的人民，他们是否还在火车上拍着手鼓唱歌，那里的中学生是否还穿着洁白的校服，那些远方的人，是否还好呢？

GRADUATION

毕业

孙悦

很荣幸收到了雨薇主编的邀请，写一篇关于毕业后感悟的东西。那就让悦哥想想，毕业后的感悟是什么呢，这么一想，脑袋里蹦出来的第一个词是开心，第二个词就是不舍，第三个词竟然是伯龙，哈哈哈哈哈，真是奇怪。好啦，那我就开始我的第二段了。

一般文章都有个中心主旨，那我第二段定个主旨，就选“开心”俩字！对我而言，毕业了肯定开心啊。雨薇主编让我写毕业后的感悟，迄今为止，毕业后的感悟就是“吃吃喝喝玩玩笑笑没有压力的人生真是爽”，也终于可以吹牛了，我可是历经“看过无数文献发过 n 篇 Sci 的人了 ($n \geq 1$)”，此处应该放一个微信小狗头。写到这里脑袋里闪现的更多是在地化所的回忆啊，满满都是。回忆大到地化所的一直想拥抱的蓝天，小到我室友脸上的一颗美人痣。毕业后收拾办公室的桌子时，桌子收拾完后，一刹那我的眼泪就下来了，感受到真的要跟我一起奋斗的“桌子”兄弟分离了，也是时候跟大家告别了。很舍不得我们组啊，舍不得在地化所的好朋友，舍不得一起打球的人儿们。更多的回忆内容请参考我的博士毕业论文中“致谢”部分。

毕业后另一个感悟，朋友圈想发什么就发什么啦，此处也要加个小狗头。好像讲到这里我毕业后的感悟就讲完了。那就跟大家再讲点闲话，讲讲我最近的生活吧。迄今为止，还没有入职（8.1 入职），但是已经和我一起并肩工作的伙伴认识，并且天天在气象局蹭球场，认识了一些我现在认为很棒的人！到目前为止，我认为生活还是美好的，就看入职后是不是还秉承着这样的想法。

讲到这里就结束啦，大家伙以后到北京可一定找悦哥呀，一起吃最好吃的烤鸭，炫最北京的炸酱面，逛最具历史感的故宫，花痴升国旗的所有旗手，在后海喝啤酒，吹点最狂妄的牛，就这样自在，温暖，做真实的自己。你说好不好？

GRADUATION

从黑暗到黎明

苏涛



转眼毕业参加工作已经快一个月了，心中感触颇深。有懊悔，有不甘，有感激，有庆幸，也有憧憬。懊悔的是自己八年学术生涯平平无奇，不甘的是浪费八年时光收获颇少，感激的是恩师临了半年毕业援助之情，庆幸的是自己拥有多年自律的健身锻炼基础，憧憬的是前方美好生活和事业上的康庄大道。回想起这八年学术生涯，确实羞愧难当。从2015年进所开始，自己的研究方向变更次数挺多。最先的研究方向是“基于 ^{14}C 技术应用PMF模型源解析珠三角大气细颗粒物($\text{PM}_{2.5}$)”。然而，应用催化加氢仪分离碳质组分元素碳(EC)和有机碳(OC)过程中，出现致命污染一隔壁实验室 ^{14}C 标记物影响，造成整体 ^{14}C 测定值异常。受感情和学术交流障碍双重影响，我渐渐出现第一次对学术的厌恶以及对自我的否认。自此摆烂半年，之后迎来了我的第二个研究方向——“基于多种同位素精确源解析珠三角 $\text{PM}_{2.5}$ ”，添加了其挥发性有机物(VOC)的测定与源解析。



摆烂的半年，渐渐地失去对学术的热情，慢慢地出现拖延症晚期症状—不想干也不敢干，最终第二个研究方向也终成为泡影。郁闷和痛苦了多年光阴，极其自律的健身锻炼拯救了我的肉体与精神，让我重拾信心和决心，慢慢地走上正轨，至此明灯出现—“基于 ^{15}N 和 ^{18}O 的珠三角 $\text{PM}_{2.5}$ 中硝酸根的来源和生成机制研究”。在临了毕业的三个月，恩师和师弟师妹的援助让我信心倍增，经过一个又一个星期不眠的夜晚，终将迎来了黎明。

回顾我对科研的贡献，可能微乎其微。能拿的出手的就一篇AE，其所做的贡献可能只有两样，更新了珠三角氮氧化物(NO_x)转化成二次硝酸盐(NO_3^-)主要四种可能的反应途径，以及珠三角四种主要贡献源(生物质燃烧、煤炭燃烧、移动源和生物源)空间分布。黎明来临，生活和科研将继续。如今，我如愿地进入了广建做博士后，未来有很多可能性，许多美好的事情等待着我。我也将继续我的博士后研究方向—珠三角建筑业VOC的臭氧潜势分析，也许科研不适合我，但我只要收获方法和经验足以让自己今后事业更加成功。毕业前三个月的黑暗时期教会了我如何快速高效率工作，如何治疗拖延症，如何一诺千金，如何知恩图报，如何有信心尝试新事物，如何坚定自己的理想，如何寻找自己的远方等等。未来还很长，我始终抱以十二分的热情面对今后每一件事，提前布局，终到彼岸—高级工程师、健身模特、自媒体大佬。

REVIEW

$\delta^{15}\text{N}$ 作为气溶胶中氮来源解析应用的理论依据与局限性

张正恩

大气细颗粒物对全球气候、人体健康和大气能见度有重要影响。含氮化合物是大气细颗粒物的重要组成部分，通过干、湿沉降对海洋和陆地生态系统产生重要影响。气溶胶中的含氮组分既包括无机氧化态的氮（如， NO_x , NO_3^- , HNO_3 , N_2O ），也包括无机还原态的氮（如， NH_4^+ , NH_3 ）以及有机氮化合物等（Duce, Liss et al. 1991, Galloway and Cowling 2002, Fowler, Pyle et al. 2013）。它们可能来源于生物质燃烧、燃煤、机动车尾气、工业活动、禽畜养殖、农业化肥等人为一次排放源，以及经大气长距离传输过程中的二次反应。同时，也可能来源于海洋、土壤扬尘、植物排放等自然源。随着人口增长以及工、农业生产的迅猛发展，全球日益增加的氮沉降将对自然生态系统和人类健康构成潜在威胁，准确识别氮的来源是科学制定大气氮污染控制政策的依据。通过文献梳理，我们总结了四种主要的氮来源解析方法，包括排放清单法、卫星遥感观测、数值模型模拟、基于同位素的来源解析。此外，数值模型模拟与双同位素的联合应用，因其不仅能示踪 N 的来源而且可以示踪不同氮形态的形成、转化过程、定量不同种类氮来源的贡献比例，因而成为当前氮来源解析研究的优选手段。本文针对当前比较热门的稳定氮同位素源解析技术的原理和局限性展开一个简要的介绍，供相关读者参考。

1. $\delta^{15}\text{N}$ 作为气溶胶中氮来源解析应用的理论依据

自然界中存在两种稳定的氮同位素 ^{14}N 和 ^{15}N ，两种同位素在氮化合物中的初始含量比较稳定，分别是 99.636% 和 0.364%，且 $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ 比值恒定。但受到物理、化学或生物等作用后，这两类同位素在含氮化合物中的比值会发生变化，其所示的信息可以用于分析化合物的来源及迁移转化情况。一般 $^{14}\text{N}/^{15}\text{N}$ 比值变化用 δ 表示，表达式为：

$$\delta^{15}\text{N} = \frac{(^{15}\text{N}/^{14}\text{N})_{\text{sample}} - (^{15}\text{N}/^{14}\text{N})_{\text{standard}}}{(^{15}\text{N}/^{14}\text{N})_{\text{standard}}}$$

大气颗粒物中含氮化合物种类丰富、来源复杂，既包括由海洋飞沫、闪电过程、生物质燃烧和化石燃料燃烧过程等的一次释放，又包括由挥发性有机化合物 (VOCs) 和其他气体组分 (如 NH_3 和 NO_x) 在大气中的二次反应所生成。但是不同来源的 $\delta^{15}\text{N}$ 信息不同，因此可以通过 $\delta^{15}\text{N}$ 有效的示踪大气颗粒物中氮的来源。比如， NO_3^- 是大气颗粒物的重要成分，它主要由前体物 NO_x 通过均相或者非均相化学反应转化而成。不同来源产生的 NO_x 中 $\delta^{15}\text{N}$ 不同，一般，燃煤产生的 NO_x 所携带的 $\delta^{15}\text{N}$ 偏正，而机动车排放的 NO_x 中 $\delta^{15}\text{N}$ 偏负 (Elliott, Kendall et al. 2007)。因此，自然界中 NO_x 、 NH_x 的 ^{15}N 丰度可以作为识别主要氮来源的“指纹”。

利用氮同位素示踪来源，需要两个参数，一个是不同类型污染源排放的 NH_x 、 NO_x 的氮同位素组成，另一个是排放源中含氮化合物到气溶胶含氮化合物的氮同位素分馏值。 NH_x 、 NO_x 的大气同位素分馏。以 NO_x 为例，大气中 NO_x 经排放源排放后， $\delta^{15}\text{N}$ 首先经过 $\text{NO} \leftrightarrow \text{NO}_2$ 平衡分馏，再经过 $\text{NO}_x \rightarrow \text{NO}_3^-$ 反应动力分馏，到达 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 。大气中的 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 和源排放的 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_x$ 之间的差异可被视为通过以下两个主要同位素交换反应过程的混合贡献 (Walters and Michalski 2016)：

$$\begin{aligned}\varepsilon\text{N} &= \gamma \times \varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-)_{\text{OH}} + (1-\gamma) \times \varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-)_{\text{H}_2\text{O}} \\ &= \gamma \times \varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{HNO}_3)_{\text{OH}} + (1-\gamma) \times \varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{HNO}_3)_{\text{H}_2\text{O}}.\end{aligned}$$

大气中 NO_3^- 生成途径可以划分为两类，第一类是 NO_2 与 $\cdot\text{OH}$ 的反应 (集中白天发生)，将这个过程产生的氮同位素分馏 (或则说由 NO_2 与 $\cdot\text{OH}$ 途径引起的 $\text{HNO}_3(\text{NO}_3^-)$ 和 NO 之间 $\delta^{15}\text{N}$ 组成的差异) 命名为 $\varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-)_{\text{OH}}$ ；第二类是 N_2O_5 与水的反应 (集中夜晚发生)，将这个过程产生的氮同位素分馏命名为 $\varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-)_{\text{H}_2\text{O}}$ 。 γ 代表第一类途径在总反应中的比例。假设只存在平衡分馏，那么 $\varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-)_{\text{OH}}$ 、 $\varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-)_{\text{H}_2\text{O}}$ 分别可以通过以下公式进行计算：

$$\begin{aligned}\varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{HNO}_3)_{\text{OH}} &= \varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_2)_{\text{OH}} \\ &= 1000 \times \left[\frac{({}^{15}\alpha_{\text{NO}_2/\text{NO}} - 1)(1 - f_{\text{NO}_2})}{(1 - f_{\text{NO}_2}) + ({}^{15}\alpha_{\text{NO}_2/\text{NO}} \times f_{\text{NO}_2})} \right] \\ \varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{HNO}_3)_{\text{H}_2\text{O}} &= \varepsilon(\delta^{15}\text{N}-\text{N}_2\text{O}_5)_{\text{H}_2\text{O}} \\ &= 1000 \times ({}^{15}\alpha_{\text{N}_2\text{O}_5/\text{NO}_2} - 1)\end{aligned}$$

其中 $15\alpha\text{NO}_2/\text{N}$ 表示 $\text{NO}\leftrightarrow\text{NO}_2$ 过程中的平衡分馏值, $15\alpha\text{N}_2\text{O}_5/\text{NO}_2$ 是在 $\text{N}_2\text{O}_5\leftrightarrow\text{NO}_2$ 过程中的平衡分馏值, 平衡分馏值的大小均与温度有关系; f_{NO_2} 是反应过程中 NO_2 在 NO_x 所占的比值, 其值范围在 0.2 到 0.95 之间。而 γ 的值可以通过类比原理, 利用 $^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 进行估算。(Zong, Wang et al. 2017) 等人就将温度、计算的分馏值、各类型源的同位素值、以及 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 、 $^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 值依模拟步骤分别代入贝叶斯模型模拟, 得到最后各个排放源的贡献值。

2. 作为气溶胶中氮来源解析的局限性

无疑, $\delta^{15}\text{N}$ 同位素技术极大的促进了大气气溶胶中氮来源的量化, 但目前仍然存在一定的局限性减弱了其定量的精确度。这些局限性包括但不限于以下几类。

- (1) 在全球范围内, 不同种类来源的氮同位素值范围出现重叠, 不便区分;
- (2) 各类型源的 $\delta^{15}\text{N}$ 值仍然非常有限, 而且有很大的变异性。因此, 有必要对不同排放源的 $\delta^{15}\text{N}-\text{NH}_4^+$ 、 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 、 $\delta^{15}\text{N}-\text{TN}$ 、 $\delta^{15}\text{N}-\text{TON}$ 进行精确测定, 以便得到更加可靠的源谱特征。
- (3) 氮从污染源到气溶胶的转化过程也未得到充分认识, 这限制了对转化过程中同位素分馏的认识。
- (4) 尽管 (Zong, Tan et al. 2018) 等关于气溶胶中 NO_x 的研究结合 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ 、 $\delta^{18}\text{O}-\text{NO}_3^-$ 双同位素、优化的贝叶斯混合模型等手段进一步明确气溶胶中 NO_3^- 的来源和迁移转化过程, 但是, 从 NO_x 转化为 NO_3^- 的同位素分馏值只考虑了平衡分馏情况, 而反应动力学分馏的情况还未得到充分的认识和考虑。

参考文献

1. Duce, R. A., P. S. Liss, J. T. Merrill, E. L. Atlas, P. Buat-Menard, B. B. Hicks, J. M. Miller, J. M. Prospero, R. Arimoto and T. M. Church (1991). "The atmospheric input of trace species to the world ocean." *Global Biogeochemical Cycles* 5(3): 193-259.
2. Elliott, E. M., C. Kendall, S. D. Wankel, D. A. Burns, E. W. Boyer, K. Harlin, D. J. Bain and T. J. Butler (2007). "Nitrogen isotopes as indicators of NO_x source contributions to atmospheric nitrate deposition across the Midwestern and northeastern United States." *Environmental Science & Technology* 41(22): 7661-7667.
3. Fowler, D., J. A. Pyle, J. A. Raven and M. A. Sutton (2013). "The global nitrogen cycle in the twenty-first century: introduction." *Philosophical Transactions of the Royal Society B-Biological Sciences* 368(1621).
4. Galloway, J. N. and E. B. Cowling (2002). "Reactive nitrogen and the world: 200 years of change." *Ambio* 31(2): 64-71.
5. Walters, W. W. and G. Michalski (2016). "Theoretical calculation of oxygen equilibrium isotope fractionation factors involving various NO_y molecules, (OH)-O-center dot, and H₂O and its implications for isotope variations in atmospheric nitrate." *Geochimica Et Cosmochimica Acta* 191: 89-101.
6. Zong, Z., Y. Tan, X. P. Wang, C. G. Tian, Y. T. Fang, Y. J. Chen, Y. Fang, G. X. Han, J. Li and G. Zhang (2018). "Assessment and quantification of NO_x sources at a regional background site in North China: Comparative results from a Bayesian isotopic mixing model and a positive matrix factorization model." *Environmental Pollution* 242: 1379-1386.
7. Zong, Z., X. Wang, C. Tian, Y. Chen, Y. Fang, F. Zhang, C. Li, J. Sun, J. Li and G. Zhang (2017). "First Assessment of NO_x Sources at a Regional Background Site in North China Using Isotopic Analysis Linked with Modeling." *Environmental Science & Technology* 51(11): 5923-5931.