

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第33卷 第12期

Vol.33 No.12

2012

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

特别策划:再生水灌溉利用生态风险研究专题

序	陈卫平 (4069)
再生水灌溉利用的生态风险研究进展	陈卫平, 张炜铃, 潘能, 焦文涛 (4070)
绿地再生水灌溉土壤微生物量碳及酶活性效应研究	潘能, 侯振安, 陈卫平, 焦文涛, 彭驰, 刘文 (4081)
绿地再生水灌溉土壤盐度累积及风险分析	潘能, 陈卫平, 焦文涛, 赵忠明, 侯振安 (4088)
再生水灌溉对土壤性质及重金属垂直分布的影响	赵忠明, 陈卫平, 焦文涛, 王美娥 (4094)
模型模拟再生水灌溉对土壤水盐运动的影响	吕斯丹, 陈卫平, 王美娥 (4100)
模型模拟土壤性质和植被种类对再生水灌溉水盐运移的影响	吕斯丹, 陈卫平, 王美娥 (4108)
再生水灌溉农田土壤镉累积规律模拟研究	赵忠明, 陈卫平, 焦文涛, 王美娥 (4115)
再生水灌溉土壤人工合成麝香累积模型模拟	王美娥, 陈卫平, 焦文涛 (4121)
城市绿化草坪再生水灌溉对地下水水质影响研究	王巧环, 陈卫平, 王效科, 任玉芬, 张烨 (4127)
北京市再生水的公众认知度评估	张炜铃, 陈卫平, 焦文涛 (4133)

研究报告

北京地区臭氧时空分布特征的飞机探测研究	陈鹏飞, 张蕾, 权建农, 高扬, 黄梦宇 (4141)
世博会期间上海市大气挥发性有机物排放强度及污染源研究	王红丽, 陈长虹, 黄海英, 王倩, 陈宜然, 黄成, 李莉, 张钢锋, 陈明华, 楼晟荣, 乔利平 (4151)
贡嘎山本底站大气中 VOCs 的研究	张军科, 王跃思, 吴方堃, 孙杰 (4159)
区域大气环境风险源识别与危险性评估	张晓春, 陈卫平, 马春, 詹水芬, 焦文涛 (4167)
稻草烟中正构烷烃和正构脂肪酸的碳同位素	刘刚, 孙丽娜, 李久海, 徐慧 (4173)
汽油轿车 NEDC 循环超细颗粒物排放特性	胡志远, 李金, 谭丕强, 楼狄明 (4181)
城市道路绿化带不同植物叶片附尘对大气污染的磁学响应	隆茜, 周菊珍, 孟颖, 达良俊 (4188)
闽江口养殖塘水-大气界面温室气体通量日进程特征	杨平, 仝川, 何清华, 黄佳芳 (4194)
模拟增温对冬小麦-大豆轮作农田土壤呼吸的影响	刘艳, 陈书涛, 胡正华, 任景全, 沈小帅 (4205)
广西大石围天坑中多环芳烃的大气传输与分异	孔祥胜, 祁士华, 孙蓓, 黄保健 (4212)
松花江流域冰封期水体中多环芳烃的污染特征研究	马万里, 刘丽艳, 齐虹, 白杨, 沈吉敏, 陈忠林, 李一凡 (4220)
温州城市河流中多环芳烃的污染特征及其来源	周婕成, 陈振楼, 毕春娟, 吕金刚, 许世远, 潘琪 (4226)
温州城市河流河岸带土壤中 PAHs 的污染特征与来源	周婕成, 毕春娟, 陈振楼, 王璐, 许世远, 潘琪 (4237)
辽河水系沉积物中 PAHs 的分布特征及风险评估	武江越, 刘征涛, 周俊丽, 高富 (4244)
某炼油厂退役场地土壤与浅层地下水酚类污染特征研究	裴芳, 罗泽娇, 彭进进, 祁士华 (4251)
某大型焦化企业污染场地中多环芳烃空间分布的分异性特征	刘庚, 郭观林, 南锋, 魏文侠, 李发生, 毕如田 (4256)
太原市污灌区有机氯农药垂直分布特征及源解析	廖小平, 张彩香, 赵旭, 向青清, 李佳乐 (4263)
上海市崇明岛农田土壤中多环芳烃分布和生态风险评价	吕金刚, 毕春娟, 陈振楼, 周婕成, 韩景超 (4270)
近 50 年来深圳湾红树林湿地 Hg、Cu 累积及其生态危害评价	李瑞利, 柴民伟, 邱国玉, 贺蓓 (4276)
北运河源头区沙河水库沉积物重金属污染特征研究	张伟, 张洪, 单保庆 (4284)
太湖表层沉积物重金属赋存形态分析及污染特征	秦延文, 张雷, 郑丙辉, 曹伟 (4291)
典型季风型温冰川消融期融水化学日变化特征	朱国锋, 蒲焘, 何元庆, 王培震, 张建龙, 张宁宁, 辛惠娟 (4300)
螺-草水质净化系统氮素环境归趋的实验研究	周露洪, 谷孝鸿, 曾庆飞, 毛志刚, 高华梅, 孙明波 (4307)
固定化果胶酶抑制铜绿微囊藻生长研究	沈清清, 彭谦, 赖泳红, 纪开燕, 韩秀林 (4316)
采用膜污染指数评估天然有机物在低压超滤膜中的污染行为	肖萍, 肖峰, 赵锦辉, 秦潼, 王东升, 冯金荣, 许光 (4322)
水体中甲基汞光化学降解特征研究	孙荣国, 毛雯, 马明, 张成, 王定勇 (4329)
土霉素在乙酸水溶液中的臭氧氧化降解研究	李时银, 李小荣, 朱怡苹, 朱江鹏, 王国祥 (4335)
酰胺咪唑光降解效能与机制及其影响因素研究	陈超, 赵倩, 封莉, 张立秋 (4340)
利用 FeS 去除水中硝基苯的试验研究	王夏琳, 李睿华 (4346)
地下污水管线泄漏原位自动监测模拟实验研究	郭磊, 贾永刚, 付腾飞, 刘晓磊, 赵战坤 (4352)
表面活性剂改性沸石对水中酚类化合物吸附性能研究	谢杰, 王哲, 吴德意, 李春杰 (4361)
抗生素类制药废水厌氧消化产物急性毒性的检测	季军远, 邢雅娟, 郑平 (4367)
废砖块作为人工湿地填料的除磷能力研究	王振, 刘超翔, 李鹏宇, 董健, 刘琳, 朱葛夫 (4373)
基于生物沸石复合滤料的间歇式脱氮水处理	庆承松, 鲍韬, 陈天虎, 陈冬, 谢晶晶 (4380)
硝酸盐对厌氧生物膜和颗粒污泥的同时产甲烷反硝化性能影响研究	钟晨宇, 叶杰旭, 李若愚, 陈胜, 孙德智 (4387)
水平电场作用下活性污泥的脱水研究	季雪元, 王毅力, 冯晶 (4393)
多重环境因子对氟胺磺隆在土壤中降解的影响	宋宁慧, 单正军, 石利利, 郭敏, 许静, 孔德洋 (4400)
碱后处理对互花米草沼渣理化特性的影响研究	陈广银, 郑正, 常志州, 王海芹, 叶小梅 (4406)
含砷废渣高温烧结过程砷的矿物相结构变化与环境释放行为	王兴润, 农泽喜, 王琪 (4412)
国家大气污染物排放标准体系研究	江梅, 张国宁, 张明慧, 邹兰, 魏玉霞, 任春 (4417)
环境基准向环境标准转化的机制探讨	毕岑岑, 王铁宇, 吕永龙 (4422)
对“有毒重金属”实施 2 种总量控制监管方式的利害分析	傅国伟 (4428)
《环境科学》第 33 卷(2012 年)总目录	(4434)
《环境科学》征订启事(4099)	《环境科学》征稿简则(4166)
信息(4180, 4219, 4225, 4275)	编辑征稿通知(4172)

广西大石围天坑中多环芳烃的大气传输与分异

孔祥胜^{1,2,3}, 祁士华^{1*}, 孙骞⁴, 黄保健²

(1. 中国地质大学(武汉)环境学院, 武汉 430074; 2. 中国地质科学院岩溶地质研究所, 桂林 541004; 3. 中国地质科学院岩溶生态系统与石漠化治理重点开放实验室, 桂林 541004; 4. 桂林市环境保护局, 桂林 541001)

摘要: 选择典型的岩溶地区广西乐业大石围天坑群为研究对象, 利用聚氨酯泡沫被动采样器(PUF-PAS)采集大石围天坑口部至地下河剖面空气样品, 并进行了气象参数的观测. 利用气相色谱-质谱仪(GC-MS)测定16种多环芳烃(PAHs)优先控制污染物. 结果表明, 大石围天坑至地下河空气中 $\sum$ PAHs浓度范围为33.76~150.86 ng·d⁻¹, 平均值80.36 ng·d⁻¹, 其中绝壁、底部和地下河浓度分别为67.17、85.36和101.67 ng·d⁻¹; 空气中PAHs以2~3环的菲、蒽、苯、芴4种为主, 占87.97%. PAHs的来源于大气传输的化石燃料的燃烧. 大石围天坑空气中PAHs的富集与传输过程为: 地表-绝壁-底部-地下河, 且浓度随深度/长度的增加有明显的增加趋势, 在西峰脚、天坑底部和地下河处, 低分子量的PAHs菲、蒽、芴和荧蒽发生了分异作用. 温度是影响天坑中PAHs大气传输、富集的主要因子, 其次为风向、风速和相对湿度; 相对湿度和温度都是PAHs分异作用的主要因子, 风速和风向为次要因子. 总体上, 天坑明显地展现了持久性有机污染物(POPs)的“冷陷阱效应”.

关键词: 多环芳烃; 大石围天坑; 传输; 分异作用; 气象参数

中图分类号: X131.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2012)12-4212-08

Transport and Differentiation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Air from Dashiwei Karst Sinkholes in Guangxi, China

KONG Xiang-sheng^{1,2,3}, QI Shi-hua¹, SUN Qian⁴, HUANG Bao-jian²

(1. School of Environmental Studies, China University of Geoscience, Wuhan 430074, China; 2. Institute of Karst Geology, Chinese Academy of Geological Sciences, Guilin 541004, China; 3. Key Open Laboratory of Karst Ecosystem and Rocky Desertification Control, Chinese Academy of Geological Sciences, Guilin 541004, China; 4. Environmental Protection Bureau of Guilin, Guilin 541001, China)

Abstract: The typical karst Dashiwei Sinkholes located in Leye County, Guangxi were chosen as the study object. The air samples from the opening of Dashiwei Sinkholes to the underground river profiles were collected by polyurethane foam passive samplers (PUF-PAS), and the meteorological parameters were observed. The 16 PAHs were analyzed using GC-MS. The results showed that the total PAHs concentration in air in Dashiwei Sinkholes ranged from 33.76 ng·d⁻¹ to 150.86 ng·d⁻¹, with an average of 80.36 ng·d⁻¹. The mean concentrations in the cliff, the bottom and the underground river profiles were 67.17, 85.36 and 101.67 ng·d⁻¹, respectively. The 2-3 rings PAHs (including phenanthrene, anthracene, naphthalene and fluorene) accounted for 87.97% of the total of PAHs. The transport and accumulation processes of PAHs in air in Dashiwei Sinkholes were: the ground to the cliff section to the bottom section and then to the underground river, and the total PAHs concentrations showed an obvious increasing tendency with the decrease in altitude or increase in the length of the underground river. Low molecular weight PAHs compounds (including phenanthrene, anthracene, fluorene and fluoranthene) in air went through differentiation at the bottom of the west peak, the bottom of the sinkhole and the underground river. The primary sources of PAHs were pyrogenic sources with atmosphere transport. Ambient temperature was the predominating factor influencing the transport and accumulation of gas phase PAHs in Dashiwei Sinkholes, following by wind speed, wind direction and relative humidity. Relative humidity and the temperature were the predominating factors influencing the differentiation, following by wind speed and wind direction. As a whole, a “cold trapping effect” of POPs was showed obviously in Dashiwei Sinkholes.

Key words: polycyclic aromatic hydrocarbons; Dashiwei Sinkholes; transport; differentiation; meteorological parameter

多环芳烃(PAHs)是具有较强致癌、致畸和致突变的物质, 美国环境保护署已经确定16种PAHs为优先控制污染物, 其主要来源于人类的能源燃烧过程^[1,2]. 大气环流、大气干湿沉降、气-土、气-水介质交换是多环芳烃扩散、迁移、传输的重要途径. 它们以“全球蒸馏”和“蚱蜢跳效应”的模式在全球或区域范围内进行大气远距离传输, 对偏远地

区的人类健康和生态系统构成威胁^[3,4]. 岩溶石山区独特的地表和地下组成的双层结构空间, 如洞穴、

收稿日期: 2012-02-21; 修订日期: 2012-04-05

基金项目: 中国地质科学院岩溶地质研究所所控项目(200720); 国家自然科学基金项目(40473043)

作者简介: 孔祥胜(1965~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为环境有机化学, E-mail: karstksx@126.com

* 通讯联系人, E-mail: shihuai@cug.edu.cn

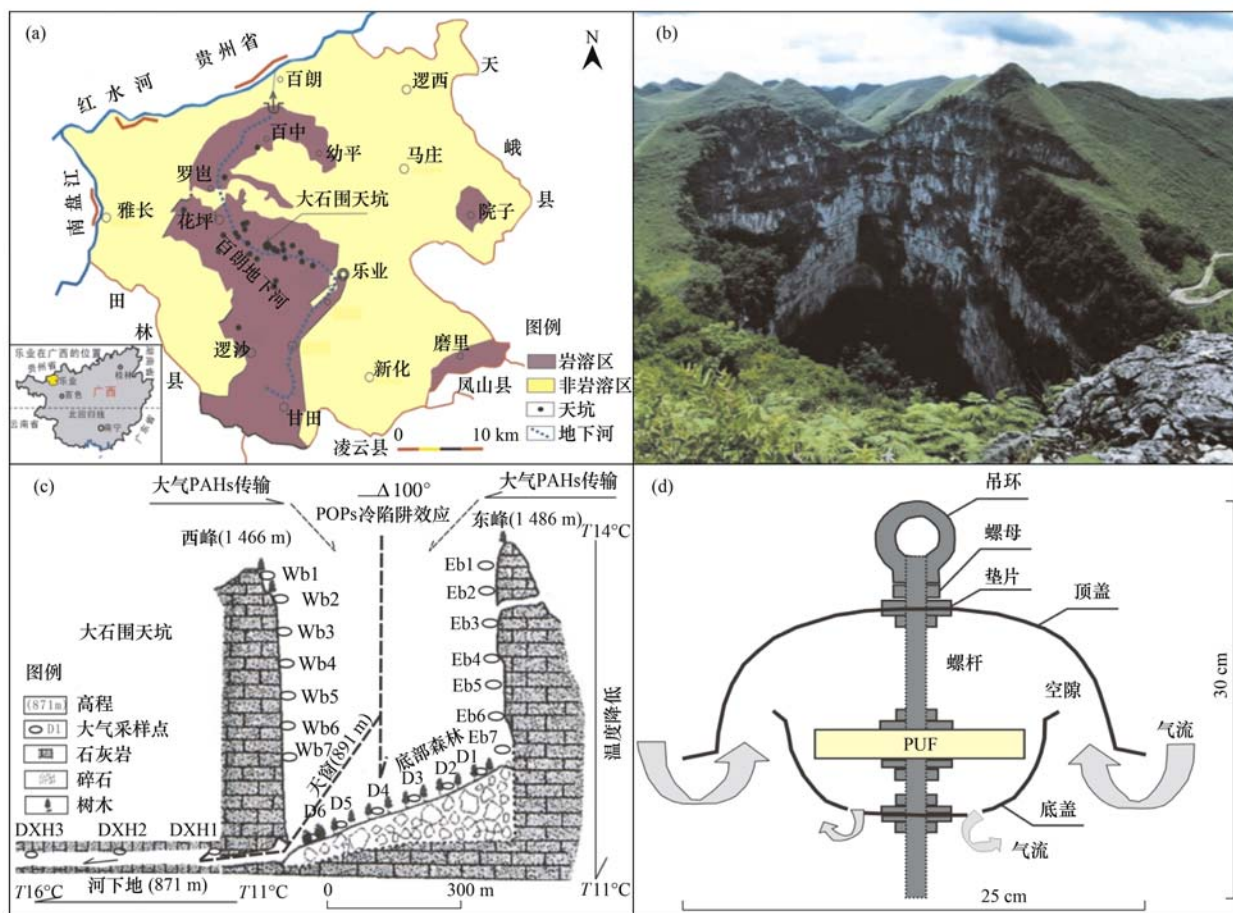
天坑、洼地、竖井、地下河等不同形态的岩溶地貌^[5],其特殊的山地环境和洞穴气候容易受到持久性有机污染物(persistent organic pollutants, POPs)的污染. 研究区位于北回归线附近的喀斯特山区,是热带和北温带的分界线,也是热带和亚热带地区 POPs 向北温带和寒冷带扩散、迁移的重要中转地带. 与平原相比,高山地区具有温度低、气压低、大气干湿沉降率高、山谷风及太阳光辐射等特征,对有机污染物远距离迁移具有冷凝沉降作用^[6,7]. 随着经济的快速发展,更多的 PAHs 污染源进入环境中,岩溶(洞穴)生态系统可能成为 POPs 最终残留或归宿地,洞穴生物多样性将受到威胁^[8,9]. 大气 PUF 被动采样装置已成功运用在大气污染物研究^[10~12]方面,但岩溶天坑、地下河空气中多环芳烃的研究未见报道. 本研究以广西大石围天坑和地下河为地点,采用大气 PUF 被动采样装置采样,利用气相色谱-质谱仪(GC-MS)测定 16 种多环芳烃,并

进行了气象参数观测,探索 PAHs 污染物在天坑、地下河大气中的环境行为,以期为了保护岩溶地区生态环境提供科学依据.

1 样品采集与测试

1.1 野外采样地点

2007 年 11 月~2008 年 3 月于大石围天坑安装聚氨酯泡沫(PUF)被动采样器进行为期 120 d 的空气样品采集. 根据当地气象条件,沿大石围天坑的东峰、西峰绝壁两侧每间隔 80 m 采样一个,各 560 m 共 14 个;从东峰脚至西峰脚的地下河天窗每间隔 100 m 采样一个,600 m 共 6 个样;沿地下河(洞穴)纵深每 250 m 采集空气样品 1 个,500 m 共 3 个;总计 23 个样品. 样品在野外包装于聚乙烯密封袋中,迅速带回实验室于 -20°C 冷冻保存至分析. 采样高程范围 871 ~ 1 480 m,采样点分布见图 1 (Eb6 号样品在采集过程中丢失).



(a) 研究区地理位置; (b) 大石围天坑照片; (c) 天坑采样位置; (d) PUF 被动采样器

图 1 大石围天坑地理位置及采样布点示意

Fig. 1 Schematic diagram of sampling locations and the PUF-passive sampler

1.2 气象参数观测

大石围天坑气象参数观测指标为温度、湿度、风速和风向,在冬季的晴天进行. 于2010年12月20~22日,观测采用PH现场自动气象站、ST-302型温湿度自动监测仪和PH便携式风速风向仪. PH现场自动气象站安放于东峰顶以观测区域范围的风速风向作为参照点;在大石围南垭口、东垭口、北垭口分别布设温湿度自动监测仪和PH便携式风速风向仪,以观测进出大石围天坑的风向风速,连续3 d,每天观测时段为08:00~19:00;天坑绝壁、底部和地下河(洞穴)内的观测由专业探险人员采用SRT单绳攀岩设备并携带温湿度自动监测仪和PH便携式风速风向仪,沿东峰绝壁(Eb1~Eb7)、天坑底部(D1~D6)、地下河(DXH1~DXH3)采样线路进行. 由于进入大石围天坑具有风险,因此天坑内的观测只进行1 d,地面与地下的观测同时进行.

1.3 材料与仪器

1.3.1 主要试剂与标准

有机试剂:实验中所用的二氯甲烷和正己烷(农残级)、丙酮(HPLC级);无水硫酸钠(分析纯),在450℃的马弗炉中焙烧4 h,干燥备用;硅胶、氧化铝:100~200目(层析级),用二氯甲烷经索氏提取器抽提72 h后,60℃下烘干,硅胶在180℃、氧化铝在240℃分别活化12 h,待冷至室温时再加入其重量的3%的去离子水降活性,平衡后储于干燥器中备用. 美国EPA规定的16种PAHs优先污染物混合标准溶液(美国Supesco):含二氢萘-d₁₀、萘-d₈、菲-d₁₀、蒽-d₁₂和芘-d₁₂. 内标标准:六甲基苯.

1.3.2 主要仪器

气相色谱-质谱联用仪(安捷伦6890N/5975MSD GC/MS,配Agilent 7683B自动进样器),冷冻干燥机,旋转蒸发仪(德国Heidolph4000型),索氏提取器.

1.3.3 样品的提取和净化

将采集空气样品的PUF称重,采用索氏萃取法用二氯甲烷循环蒸馏48 h,PAHs的回收率指示物在萃取之前加入到每一个样品中,萃取物被浓缩至5 mL,并溶解交换为正己烷,经的氧化铝与二氧化硅(1:2)色谱柱分离净化,用25 mL的二氯甲烷/正己烷(2:3,体积比)混合液淋洗柱体,过柱后的液体再继续浓缩至0.5 mL,然后转移至2 mL的细胞瓶中,氮吹至0.2 mL,加入4 μL内标物,放入冰箱中待测.

1.3.4 仪器分析条件和指标

检测器温度为180℃,炉温程序在60℃时保持5 min,并以3℃·min⁻¹的速率增加至290℃,在290℃保持40 min,同时进样器和检测器温度分别维持在270℃和280℃. 载气为氮,连续流动速率为1.5 mL·min⁻¹,浓缩样品的1 μL溶液以无分流模式进样分析. 16种PAHs指标为:2~3环为萘(Nap)、苊烯(Acy)、苊(Ace)、芴(Flu)、菲(Phe)、蒽(Ant)、荧蒽(FlA)7种;4环为芘(Pyr)、苯并[a]蒽(BaA)、䓛(Chr)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)5种;5环为苯并[a]芘(BaP)、茚并[1,2,3-cd]芘(InP)、二苯并[a,h]蒽(DaA)3种;六环为苯并[g,h,i]芘(BgP)1种.

1.3.5 质量控制/质量保证(QA/QC)

实验过程中的质量控制/质量保证(QA/QC)措施参见文献[13]. 整个分析过程按方法空白、加标空白、基质加标进行质量保证和质量控制,并用回收率指示物监测样品制备和基质影响. 本研究回收率指示物的回收率为72%~102%,回收率平均值为82%,方法检出限为0.001~0.005 ng.

2 结果与讨论

2.1 天坑空气中多环芳烃的含量和组成

大石围天坑东峰绝壁、西峰绝壁、天坑底部和地下河空气中的 $\sum$ PAHs浓度和数据统计见表1. PAHs的检出率情况:在天坑绝壁和底部空气中茚并[1,2,3-cd]芘、苯并[g,h,i]芘、二苯并[a,h]蒽、苯并[a]芘这4种化合物检出范围在16.7%~66.7%之间,其余单体PAHs均为100%;地下河空气中的PAHs检出率均为100%. 天坑空气中 $\sum$ PAHs平均浓度为80.36 ng·d⁻¹,其中2~3环、4环和5~6环的平均 $\sum$ PAHs浓度为77.12、3.16和0.08 ng·d⁻¹,其中东峰绝壁、西峰绝壁、天坑底部和地下河的 $\sum$ PAHs平均浓度分别为68.36、65.98、85.36和101.67 ng·d⁻¹. 经t检验法统计分析,天坑各地形空气中的PAHs浓度均值,在显著性水平0.25下,西峰、东峰绝壁分别与底部、地下河空气中的PAHs浓度均有显著差异;在显著性水平0.10下,西峰和东峰绝壁与底部没有显著差异,但与地下河有显著差异. PAHs组成2~3环、4环和5~6环分别占总量的95.97、3.93和0.10%,以2~3环的PAHs占绝对优势,其中蒽、菲、芴、萘4种占87.10%~88.27%,尤其是天坑底部和地下河

(洞穴) 空气中的菲比例分别高达 42.02% 和 49.26%, 各地形空气中不同环数的 PAHs 所占比例稍有差异. 与许多文献[12,14]报道的气相中多环芳烃组成的结果相一致. 相同的采样方法, 大石围天坑空气中的平均 $\sum$ PAHs 13 (除萘、蒽烯、蒾) 浓度 ($69.18 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$) 比刘向等^[12]报道的中国

城市大气中 $\sum$ PAHs 13 冬季 ($508 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$) 低 7.3 倍. 另外, 在天坑空气中含有一定比例的芴 (范围在 12.87% ~ 17.23% 之间), Khalili 等^[15] 和 Li 等^[16] 研究证实芴是焦煤燃烧产生的主要特征化合物之一, 因此天坑空气中 PAHs 可能来源于燃煤燃烧.

表 1 大石围天坑空气中的 PAHs 浓度和数据统计表/ $\text{ng}\cdot\text{d}^{-1}$
Table 1 Concentrations of PAHs and data statistic in air from Dashiwei Sinkholes/ $\text{ng}\cdot\text{d}^{-1}$

采样位置	东峰绝壁	西峰绝壁	天坑底部	地下河
2~3 环 $\sum$ PAHs	65.60	63.06	82.38	97.45
4 环 $\sum$ PAHs	2.70	2.82	2.98	4.13
5~6 环 $\sum$ PAHs	0.06	0.11	0.05	0.09
$\sum$ PAHs 平均值	68.36	65.99	85.41	101.67
$\sum$ PAHs 最小值	33.76	56.61	53.86	50.01
$\sum$ PAHs 最大值	91.24	71.11	150.45	140.51
标准差	21.87	5.74	39.48	46.54

2.2 大石围天坑中多环芳烃的大气传输
2.2.1 东-西峰绝壁剖面 PAHs 的大气传输

如图 2(a) 所示, 东峰、西峰绝壁空气中的 $\sum$ PAHs 浓度空间分布均自上而下呈双峰状, 在绝壁上部高程 1 380 ~ 1 300 m 和下部高程 980 m 处出现较高峰值, 东峰绝壁两峰值浓度分别为 $84.16 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$ 和 $91.21 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$; 西峰两峰值浓度分别为 $71.11 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$ 和 $71.04 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$. 东峰绝壁空气中的 PAHs 浓度分布差异较大. 总体分布为: 东峰高于西峰, 高程 1 300 m 以上部位和下部 980 m 采样点浓度高于中部 (1 220 ~ 1 060 m). 这一现象是天坑的 PAHs “冷陷阱效应” 记录, 因为 1 250 ~ 1 267 m 高程是天坑上部与下部之间的分界线, 上部是代表天坑外 PAHs 的大气传输, 而下部 (即 1 250 ~ 897 m 以下) 为封闭的巨大空间, 绝壁温差从天坑口部至底部随深度呈梯度下降, 范围为 $2.1 \sim 4.5^\circ\text{C}$ (平均值 3.4°C). 因此此过程呈现一个快速向下传输过程^[17] (即空气中 PAHs 的沉降与不同风向风速有关, 较低风速有利于降尘的沉降, 当风速逐渐增加, 沉降速率逐渐减少); 其次, 从图 2(a) 中看出, 在 1 250 ~ 1 267 m 高程分界线处相对湿度稍有增高, 因此推测是由于天坑内的雾气产生一个不断反复上升、下沉的运动, 即相当于雨水对大气中 PAHs 的一个淋滤沉降过程^[18]. 另外, 东峰 1 220 m 高程处 (Eb4) 出现最小值, 这是受到洞穴风的影响, 因为在此处的上方发育有蚂蜂洞, 而 Eb4 采样点又在中洞附近, 经观察, 这两个洞穴上下垂直, 均有洞穴风向天坑中流动, 蚂蜂洞洞穴的风速在 $1 \sim 5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 之

间. 因此温差对东峰、西峰绝壁空气中 PAHs 的传输、富集起着主要作用, 风向和较慢的风速以及较高相对湿度有利于 PAHs 的富集.

2.2.2 天坑底部-地下河剖面 PAHs 的大气传输
如图 2(b) 所示, 天坑底部东峰脚 D1 ~ 西峰脚天窗 D6 剖面 $\sum$ PAHs 浓度空间分布呈一个峰值, $\sum$ PAHs 浓度最高值出现在天坑底部中心偏西的 D4 位置, 在东峰脚 D1 ~ D3 和西峰天窗附近 D6 则呈现出较低的 $\sum$ PAHs 浓度值. 天坑底部的温差从 D1 ~ D6 逐渐降低, 范围为 $5.0 \sim 1.5^\circ\text{C}$ (平均值 3.6°C), 相对湿度逐渐增大. 通过观测, D1、D2、D3 剖面有风从东至西流动, 在 D4、D5 地带气流速度较慢或静风, 这是因为有东北风从东垭口吹向西峰后下沉的回转风与其相遇, 因此在 D4、D5 地带形成一个缓冲区 (即静风或小风区), 而 D6 采样点有较快气流向天窗-地下河流动. 因此空气中 PAHs 在 D4、D5 处大量聚集. 从图 2(b) 可以看出, 大石围天坑天窗至地下河 (洞穴) 空气中 $\sum$ PAHs 浓度呈现随距离逐渐升高的趋势, 在 500 m 处达到一个高峰值. 地下河 DXH1 ~ DXH3 剖面的温差随纵深逐渐降低, 范围为 $-0.5 \sim -3.2^\circ\text{C}$ (平均值 -1.6°C), 相对湿度逐渐增大, 天窗向地下河内流动的气流风速较大 (达 $0 \sim 5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$), 洞外空气携带的 PAHs 向洞内迁移, 随着风速减慢聚集在洞内的 PAHs 浓度升高. 但是温度与风向风速有着内在的联系, 因为大石围天坑-地下河 (洞穴) 的风速风向遵循洞穴 “烟囱效应” 原理: 即洞内、洞外空气的温度升高, 密

度 d 变小,低温密度 d 增大. 当冬季时, $d_{\text{外}} > d_{\text{内}}$,漏斗空气向地下河(洞穴)内流动;当夏季时, $d_{\text{外}} < d_{\text{内}}$,地下河(洞穴)空气向漏斗内流动. 因此冬季地下河(洞穴)中的风向向地下河内流动,以及风速大小取决于洞穴外较低的温度变化. 因此在天坑底部-地下河空气中 PAHs 的传输和富集过程中,温差还是起到重要的作用,而风速风向和相对湿度的作用与东、西峰绝壁同理.

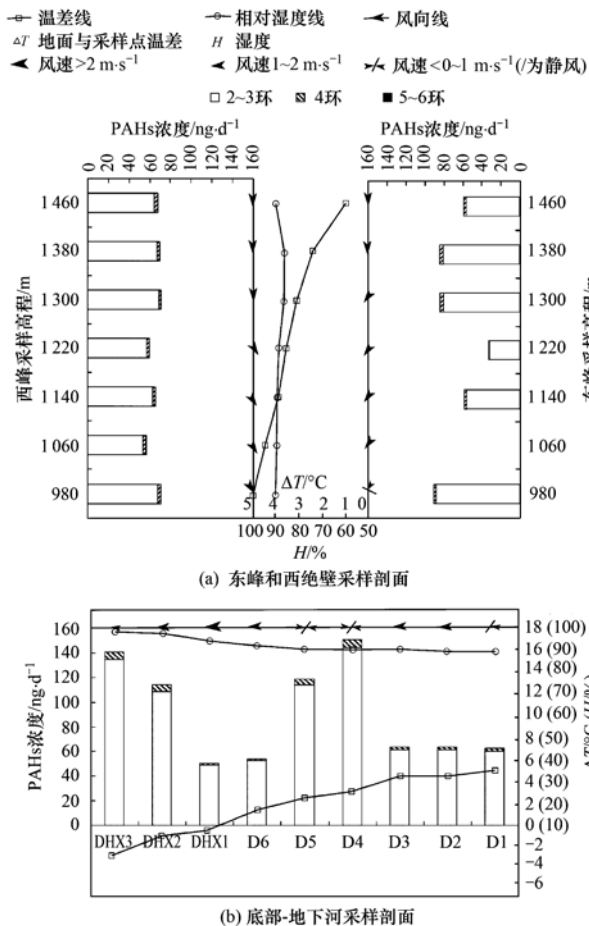


图2 大石围天坑中 PAHs 的大气传输与气象因子

Fig. 2 Relationship of atmospheric transport of PAHs and the meteorological factors in Dashiwei Sinkholes

2.2.3 大石围天坑中 PAHs 的大气传输过程

大石围天坑坑口地面高程为:南垭口(高程 1 267 m)、北垭口(高程 1 251 m)、东垭口(高程 1 394 m),把高程 1 251 m 以上(即 1 300 ~ 1 460 m)的采样点作为地面空气层,1 251 m 以下作为地下空气层. 按高程划分为 5 个空气层. 即高程 1 251 m 以上为第一层空气层,高程 1 220 ~ 1 060 m 为第二空气层,高程 980 m 为第三空气层,高程 960 ~ 897 m 为第四空气层,高程 897 ~ 871 m 为第五空气层. 经统计,它们的 $\sum$ PAHs 浓度平均值分别为 72.65、

53.29、79.92、85.36 和 101.67 ng·d⁻¹. 如图 3 所示,大石围天坑空气中温差随绝壁深度下降至下部达到最大值后,在天坑底部开始沿天窗-地下河随纵深回升,并大于地面温度;相对湿度则随深度由绝壁-底部-地下河逐渐增大. 空气中 PAHs 传输的过程为:天坑地面-绝壁-底部-地下河呈现逐渐沉降、聚集的过程,大石围天坑就像一个名符其实的“天然被动采样器”对空气中的 PAHs 具有富集作用.

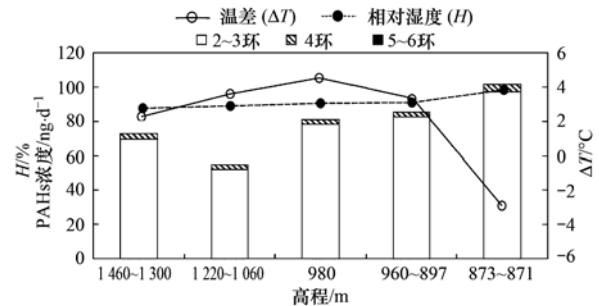


图3 大石围天坑中大气 PAHs 的传输过程

Fig. 3 Atmospheric transport processes of PAHs in Dashiwei Sinkholes

2.3 天坑大气中 PAHs 组分的分异

大石围天坑空气中 PAHs 的分异现象可从天坑的不同部位低分子质量(2~3 环)和中高分子质量(4~6 环)PAHs 所占百分比以及单个 PAH 组分的变化得到验证. 根据天坑内气象因素的不同,东、西峰绝壁按上(Eb1 ~ Eb3, Wb1 ~ Wb3)、中(Eb4 ~ Eb6, Wb4 ~ Wb6)、下(Eb7, Wb7)层位划分,天坑底部按东部(D1 ~ D3)、中部(D4 ~ D5)、西部(D6)划分,地下河按距天窗距离入口(DXH1)、250 m (DXH2)、500 m (DXH3)划分. 经统计,PAHs 低分子质量和中高分子质量组分的质量分数变化见图 4. 从中可知,东峰由上至下 2~3 环 PAHs 呈递增趋势,这与所观测天坑产生的温差和风速加大(蚂蜂窝和中洞的洞穴风向天坑内流动)是相符的;西峰则相反,由上至下 2~3 环 PAHs 呈递减趋势,4~6 环 PAHs 呈递增趋势,而且 5~6 环 PAHs 在所有剖面中所占的比例最大,这与温差逐渐增大和相对湿度高相一致的;天坑底部由东向西 2~3 环 PAHs 呈中间低,两侧高的分布,而 4~6 环 PAHs 则向中部偏西的 D4、D5 位置聚集,这与此处的温差逐渐减小、静风或小风一致;地下河(洞穴)内 4~6 环 PAHs 呈抛物线分布,在距离天窗 250 m (DXH2)处出现最大值,随后在 500 m (DXH3)温度最高处(16℃)有降低的趋势,这与所观测到的冬季地下河(洞穴)中不同气候带^[19]气象因子是相符的,即温度逐渐升

高、风速逐渐降低、相对湿度逐渐加大. 总体上, 温差是影响天坑不同部位空气中 PAHs 分异作用的主要因子, 风速和相对湿度为协同因子.

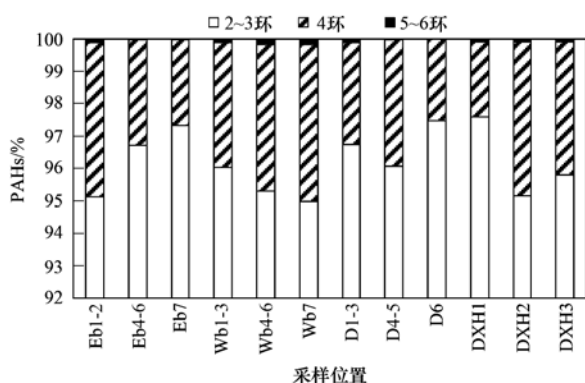


图 4 大石围天坑空气中 PAHs 质量分数的变化

Fig. 4 Variation of PAHs percentages in air in Dashiwei Sinkholes

图 5 给出了天坑不同剖面的 16 个 PAH 的成分谱变化. 东峰绝壁空气中从上至下菲、蒽、芴两种化合物有轻微升高, 荧蒽则轻微降低, 分异现象不显著; 西峰绝壁的上、中部 (Wb1 ~ Wb6) 的成分谱与东峰的基本一致, 但是下部 (Wb7) 芴、菲两个化合物所占百分比与上、中部的平均值分别上升了 7.49%、17.71%, 蒽则降低了 29.32%, PAHs 发生了显著的分异现象; 同样, 在天坑底部 D4 和 D5、地下河 DXH2 和 DXH3 采样点 PAHs 也发生了显著的分异现象. 天坑底部 D4 和 D5 芴、菲分别上升了 5.48% 和 4.75%、26.72% 和 22.69%, 蒽则分别降低了 26.75% 和 22.79%; 地下河 DXH2 和 DXH3 芴、菲分别上升了 4.97% 和 5.34%、27.35% 和 29.32%. 在以上的这些采样点中与相应剖面相比,

芴呈小幅升高, 菲呈大幅升高, 蒽呈大幅降低. 芴、菲、蒽化合物为何会发生较大的变化? 从 PAHs 的来源分析, 上述发生分异现象采样点的 Phe/Ant 比值^[20] 分别为 22.37、15.34 和 6.80、13.13 和 13.14, 可能来源于石油源, 其余采样点 Phe/Ant 比值则为 0.95 左右, 表明来源于化石燃料燃烧源. 值得注意的是, 这些采样点均有燃烧源的采样点相隔, 因此推测不会来源于自然造岩作用和地下河 (洞穴) 的二次释放.

那么是何因素使 Wb7、天坑底部 D4-5、地下河 DXH2、DXH3 采样点的菲、蒽、芴和荧蒽发生分异呢? 以及芴组分比例为何增高呢? 气象条件的变化是影响半挥发性有机污染物在大气中分布的重要因素之一^[21~23], 李军等^[24] 研究报道对于气相中的 PAHs, 气象因子中温度的影响占了绝对优势, 其次为风速, 即温度 > 风速 > 其它因素. 另有文献^[25] 报道细菌可以从芳香环的氢氧基团把蒽降解生成 cis-1,2-二氢蒽-1,2-二醇. 从 PAHs 的物理化学性质分析, 菲、蒽、芴和荧蒽的溶解度和蒸气压分别为 $1.1 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $2.0 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ 、 $0.045 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ 、 $1.9 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $9.0 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ 、 $0.26 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $1.2 \times 10^{-3} \text{ Pa}$. 因此, 根据这些物理化学参数可以推测: 首先, 较低温度可使菲、蒽、芴和荧蒽在天坑中不同深度上发生轻微的成分分异 (见图 5 东峰剖面); 其次, 尽管菲、蒽两者分子量相同 (178), 但是菲、芴的蒸气压是蒽的 24 倍和 100 倍, 使菲、芴容易存在气相中, 蒽、荧蒽则相对易于吸附在颗粒物中沉降到底部的土壤中, 因此蒸气压是

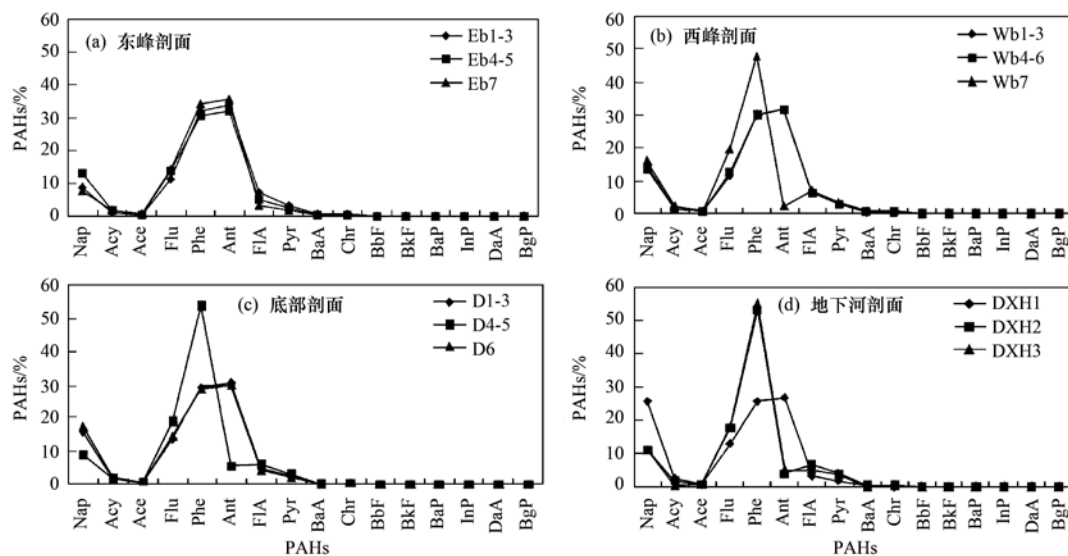


图 5 大石围天坑空气中 PAHs 组分的分异作用

Fig. 5 Differentiation of the 16 PAHs components in air in Dashiwei Sinkholes

引起上述采样点发生明显的分异现象的原因之一;再次,菲、芴的溶解度较大,在西峰脚下 Wb7、天坑底部 D4 和 D5、地下河 DXH2 和 DXH3 采样点的湿度较大,风速减慢或静风环境有利于空气中菲、芴与水汽的溶解作用,由于菲、芴的溶解度分别高于蒎 20、42 倍,从而使菲和芴与蒎产生分异. 因此相对湿度和温差对空气中 PAHs 的分异作用同为重要因子,风速风向是次要因子.

3 结论

(1)大石围天坑东峰绝壁空气中 $\sum$ PAHs 浓度范围为 $33.76 \sim 91.24 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$, 平均值 $68.36 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$; 西峰绝壁空气中 $\sum$ PAHs 浓度平均值为 $65.98 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$; 天坑底部 $\sum$ PAHs 浓度范围为 $53.86 \sim 150.86 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$, 平均值为 $85.36 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$; 地下河空气中 $\sum$ PAHs 浓度范围为 $50.01 \sim 140.51 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$, 平均值为 $101.54 \text{ ng}\cdot\text{d}^{-1}$. 空气中 PAHs 组成以轻分子质量菲、蒎、芴、蔡 4 种为主(占 88.22%), 中、高环只占 3.56%. 本研究区空气中 PAHs 来源于化石燃料燃烧. 天坑空气中 $\sum$ PAHs 浓度比中国城市大气冬季的低 7.3 倍, 尚处在低污染水平.

(2)大石围天坑空气中 PAHs 的空间富集过程为:地表-绝壁-底部-地下河, PAHs 浓度随温度逐渐降低/高程下降呈增加趋势;天坑内 2~3 环 PAHs 的芴、菲、蒎、荧蒎发生了分异现象;利用 PUF 能够很好地解释岩溶地形地貌空气中 PAHs 的传输过程.

(3)影响岩溶天坑空气中 PAHs 传输、富集的主要因子是温度,其次为风速、风向和相对湿度;相对湿度和温度是 PAHs 分异作用的主要因子,风速和风向为次要因子.

致谢:感谢中国地质大学(武汉)环境学院邢新丽、杨丹、张俊鹏、许峰博士在实验室有机污染物分析工作中的帮助. 同时,感谢乐业县旅游局飞猫探险队冼琼飞、黄元星等在野外调查工作中的大力支持.

参考文献:

- [1] Menzie C A, Potocki B P, Santodonato J. Exposure to carcinogenic PAHs in the environment [J]. *Environmental Science and Technology*, 1992, **26**(7): 1278-1284.
- [2] Xu S S, Liu W X, Tao S. Emission of Polycyclic aromatic hydrocarbons in China [J]. *Environmental Science and Technology*, 2006, **40**(3): 702-708.
- [3] Wania F, Mackay D. Tracking the distribution of persistent organic pollutants-control strategies for these contaminants will require a better understanding of how they around the globe[J]. *Environmental Science and Technology*, 1996, **30**(9): 390A-396A.
- [4] Gouin T, Mackay D, Jones K C, *et al.* Evidence for the "grasshopper" effect and fractionation during long range atmospheric transport of organic contaminants[J]. *Environmental Pollution*, 2004, **128**(1-2): 139-148.
- [5] 袁道先, 蔡桂鸿. 岩溶环境学[M]. 重庆: 重庆出版社, 1988.
- [6] Daly G L, Wania F. Organic contaminants in mountains[J]. *Environmental Science and Technology*, 2005, **39**(2): 385-398.
- [7] 叶常明. 多介质环境污染研究[M]. 北京: 北京出版社, 1997. 34.
- [8] 李学珍, 焦忠久, 牛长缨, 等. 广西乐业县洞穴动物物种多样性调查初报[A]. 见: 陈伟海, 朱德浩, 朱学稳. 洞穴探险、研究、开发与保护——全国洞穴学术会议论文选集[C]. 北京: 地质出版社, 2008. 378-385.
- [9] 朱学稳, 黄保健, 朱德浩, 等. 广西乐业大石围天坑群发现探测定义与研究[M]. 南宁: 广西科学技术出版社, 2003.
- [10] Harner T, Pozo K, Gouin T, *et al.* Global pilot study for persistent organic pollutants (POPs) using PUF disk passive air sampler[J]. *Environmental Pollution*, 2006, **144**(2): 445-452.
- [11] Jaward F M, Farrar N J, Harner T, *et al.* Passive air sampling of PAHs and PCNs across Europe[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2004, **23**(6): 1355-1364.
- [12] 刘向, 张干, 李军, 等. 利用 PUF 大气被动采样技术监测中国城市大气中的多环芳烃[J]. *环境科学*, 2007, **28**(1): 28-33.
- [13] 林峥, 麦碧娴, 张干, 等. 沉积物中多环芳烃和有机氯农药定量分析的质量保证和质量控制[J]. *环境化学*, 1999, **18**(2): 115-121.
- [14] 毕新慧, 盛国英, 谭吉华, 等. 多环芳烃 (PAHs) 在大气中的相分布[J]. *环境科学学报*, 2004, **24**(1): 200-206.
- [15] Khalili N R, Scheff P A, Holsen T M. PAH source finger prints for coke ovens, diesel and, gasoline engines, highway tunnels, and wood combustion emissions[J]. *Atmospheric Environment*, 1995, **29**(4): 533-542.
- [16] Li J, Zhang G, Li X D, *et al.* Source seasonality of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in a subtropical city, Guangzhou, South China[J]. *Science of the Total Environment*, 2006, **355**(1-3): 145-155.
- [17] 张树才, 王开颜, 沈亚婷, 等. 北京东南郊大气降尘中的多环芳烃[J]. *农业环境科学学报*, 2007, **26**(4): 1568-1574.
- [18] Dickhut R M, Gustafson K E. Atmospheric washout of polycyclic aromatic hydrocarbons in the Southern Chesapeake Bay Region [J]. *Environmental Science and Technology*, 1995, **29**(6): 1518-1525.

- [19] 何才华, 王宗艳. 洞穴环境与洞穴旅游[A]. 见: 陈伟海, 朱德浩, 朱学稳. 洞穴探险、研究、开发与保护——全国洞穴学术会议论文集[C]. 北京: 地质出版社, 2008. 320-322.
- [20] Yunker M B, Macdonald R W, Vingarzan R, *et al.* PAHs in the Fraser River Basin: a critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition [J]. *Organic Geochemistry*, 2002, **32**: 489-515.
- [21] Wania F, Haugen J E, Lei Y D, *et al.* Temperature dependence of atmospheric concentrations of semivolatile organic compounds [J]. *Environmental Science and Technology*, 1998, **32** (8): 1013-1021.
- [22] Pankow J F, Storey J M E, Yamasaki H. Effect of relative humidity on gas/particle partitioning of semi-volatile organic compounds to urban particulate matter [J]. *Environmental Science and Technology*, 1993, **27**(10): 2220-2226.
- [23] Cortes D R, Basu I, Sweet C W, *et al.* Temporal trends in and influence of wind on PAH concentrations measured near the Great Lakes [J]. *Environmental Science and Technology*, 2000, **34** (3): 356-360.
- [24] 李军, 张干, 祁士华. 广州市大气中多环芳烃分布特征、季节变化及其影响因素[J]. *环境科学*, 2004, **25**(3): 7-13.
- [25] Evans W C, Fernley H N, Griffiths F. Oxidative metabolism of phenanthrene and anthracene by soil pseudomonads. the Ring-Fission mechanism [J]. *Biochemistry*, 1965, **95**: 819-831.

《环境科学》多项引证指标名列前茅

2011年12月2日,中国科学技术信息研究所在中国科技论文统计结果发布会上公布了2010年度中国科技论文统计结果.统计结果显示2010年度《环境科学》多项引证指标位居环境科学技术、安全科学技术类科技期刊前列.

综合评价总分86.5,排名第一(排名前三名的期刊分别是《环境科学》86.5,《中国环境科学》77.9,《环境科学学报》77.3).

总被引频次5197,排名第一(排名前三名的期刊分别是《环境科学》5197,《环境科学学报》3914,《农业环境科学学报》3700).

影响因子1.125,排名第三(排名前三名的期刊分别是《环境科学研究》1.531,《中国环境科学》1.457,《环境科学》1.125).

综合评价总分是根据中国科技期刊综合评价指标体系,计算多项科学计量指标(总被引频次、影响因子、他引率、基金论文比、引文率等),采用层次分析法确定重要指标的权重,分学科对每种期刊进行综合评定,计算出每个期刊的综合评价总分.这项指标屏蔽了各个学科之间总体指标背景值的差异,使科技期刊可以进行跨学科比较.根据发布的统计结果,2010年度《环境科学》综合评价总分86.5,在被统计的1998种核心期刊中名列第27位,在被统计的36种环境科学技术、安全科学技术类期刊中名列第一.

CONTENTS

Preface	CHEN Wei-ping (4069)
Ecological Risks of Reclaimed Water Irrigation: A Review	CHEN Wei-ping, ZHANG Wei-ling, PAN Neng, <i>et al.</i> (4070)
Study on Soil Enzyme Activities and Microbial Biomass Carbon in Greenland Irrigated with Reclaimed Water	PAN Neng, HOU Zhen-an, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i> (4081)
Soil Salinity in Greenland Irrigated with Reclaimed Water and Risk Assessment	PAN Neng, CHEN Wei-ping, JIAO Wen-tao, <i>et al.</i> (4088)
Effect of Reclaimed Water Irrigation on Soil Properties and Vertical Distribution of Heavy Metal	ZHAO Zhong-ming, CHEN Wei-ping, JIAO Wen-tao, <i>et al.</i> (4094)
Simulation of Effect of Irrigation with Reclaimed Water on Soil Water-Salt Movement by ENVIRO-GRO Model	LÜ Si-dan, CHEN Wei-ping, WANG Mei-e (4100)
Simulation of Effects of Soil Properties and Plants on Soil Water-salt Movement with Reclaimed Water Irrigation by ENVIRO-GRO Model	LÜ Si-dan, CHEN Wei-ping, WANG Mei-e (4108)
Modeling the Cd Accumulation in Agricultural Soil Irrigated with Reclaimed Water	ZHAO Zhong-ming, CHEN Wei-ping, JIAO Wen-tao, <i>et al.</i> (4115)
Model Simulation of the Transportation, Transformation and Accumulation of Synthetic Musk in Soils Input Through Recycle Water Irrigation	WANG Mei-e, CHEN Wei-ping, JIAO Wen-tao (4121)
Impacts of Reclaimed Water Irrigation of Urban Lawn on Groundwater Quality	WANG Qiao-huan, CHEN Wei-ping, WANG Xiao-ke, <i>et al.</i> (4127)
Public Awareness Assessment of Water Reuse in Beijing	ZHANG Wei-ling, CHEN Wei-ping, JIAO Wen-tao (4133)
Temporal and Spatial Distribution of Ozone Concentration by Aircraft Sounding over Beijing	CHEN Peng-fei, ZHANG Qiang, QUAN Jian-nong, <i>et al.</i> (4141)
Emission Strength and Source Apportionment of Volatile Organic Compounds in Shanghai During 2010 EXPO	WANG Hong-li, CHEN Chang-hong, HUANG Hai-ying, <i>et al.</i> (4151)
Study on Atmospheric VOCs in Gongga Mountain Base Station	ZHANG Jun-he, WANG Yue-si, WU Fang-kun, <i>et al.</i> (4159)
Regional Atmospheric Environment Risk Source Identification and Assessment	ZHANG Xiao-chun, CHEN Wei-ping, MA Chun, <i>et al.</i> (4167)
Carbon Isotopic Compositions of <i>n</i> -Alkanes and <i>n</i> -Alkanoic Acids in the Smoke from Combustion of Rice Straw	LIU Gang, SUN Li-na, LI Jiu-hai, <i>et al.</i> (4173)
Research on NEDC Ultrafine Particle Emission Characters of a Port Fuel Injection Gasoline Car	HU Zhi-yuan, LI Jin, TAN Pi-qiang, <i>et al.</i> (4181)
Magnetic Response of Street Tree Leaves to Particulate Pollution in Shanghai	LONG Qian, ZHOU Ju-zhen, MENG Jie, <i>et al.</i> (4188)
Diurnal Variations of Greenhouse Gas Fluxes at the Water-Air Interface of Aquaculture Ponds in the Min River Estuary	YANG Ping, TONG Chuan, HE Qing-hua, <i>et al.</i> (4194)
Effects of Simulated Warming on Soil Respiration in a Cropland Under Winter Wheat-Soybean Rotation	LIU Yan, CHEN Shu-tao, HU Zheng-hua, <i>et al.</i> (4205)
Transport and Differentiation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Air from Dashiwei Karst Sinkholes in Guangxi, China	KONG Xiang-sheng, QI Shi-hua, SUN Qian, <i>et al.</i> (4212)
Pollution Characteristics of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Water of Songhua River Basin During the Icebound Season	MA Wan-li, LIU Li-yan, QI Hong, <i>et al.</i> (4220)
Pollution Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Urban Rivers of Wenzhou City	ZHOU Jie-cheng, CHEN Zhen-lou, BI Chun-juan, <i>et al.</i> (4226)
Pollution Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Riparian Soils Along Urban Rivers of Wenzhou City	ZHOU Jie-cheng, BI Chun-juan, CHEN Zhen-lou, <i>et al.</i> (4237)
Spatial Distribution and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Partial Surface Sediments of Liaohe River	WU Jiang-yue, LIU Zheng-tao, ZHOU Jun-li, <i>et al.</i> (4244)
Phenols Pollutants in Soil and Shallow Groundwater of a Retired Refinery Site	PEI Fang, LUO Ze-jiao, PENG Jin-jin, <i>et al.</i> (4251)
Heterogeneous Characteristic of PAHs' Spatial Distribution in a Large Coking Site of China	LIU Geng, GUO Guan-lin, NAN Feng, <i>et al.</i> (4256)
Vertical Distribution and Source Analysis of Organochlorine Pesticides in Sewage Irrigation Area, Taiyuan City	LIAO Xiao-ping, ZHANG Cai-xiang, ZHAO Xu, <i>et al.</i> (4263)
Distribution and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Agricultural Soil of the Chongming Island in Shanghai	LÜ Jin-gang, BI Chun-juan, CHEN Zhen-lou, <i>et al.</i> (4270)
Mercury and Copper Accumulation During Last Fifty Years and Their Potential Ecological Risk Assessment in Sediment of Mangrove Wetland of Shenzhen, China	LI Rui-li, CHAI Min-wei, QIU Guo-yu, <i>et al.</i> (4276)
Characteristics of Heavy Metal Pollution in the Sediments from Shahe Reservoir, the Upper Reach of the North Canal River	ZHANG Wei, ZHANG Hong, SHAN Bao-qing (4284)
Speciation and Pollution Characteristics of Heavy Metals in the Sediment of Taihu Lake	QIN Yan-wen, ZHANG Lei, ZHENG Bing-hui, <i>et al.</i> (4291)
Chemical Composition and Daily Variation of Melt Water During Ablation Season in Monsoonal Temperate Glacier Region: A Case Study of Baishui Glacier No. 1	ZHU Guo-feng, PU Tao, HE Yuan-qing, <i>et al.</i> (4300)
Experimental Study on the Environmental Fate of Nitrogen in Snail-Macrophyte Ecosystem for Water Purification	ZHOU Lu-hong, GU Xiao-hong, ZENG Qing-fei, <i>et al.</i> (4307)
Growth Inhibition Effect of Immobilized Pectinase on <i>Microcystis aeruginosa</i>	SHEN Qing-qing, PENG Qian, LAI Yong-hong, <i>et al.</i> (4316)
A Novel Approach of Using Fouling Index to Evaluate NOM Fouling Behavior During Low Pressure Ultrafiltration Process	XIAO Ping, XIAO Feng, ZHAO Jing-hui, <i>et al.</i> (4322)
Characteristics of Monomethylmercury Photodegradation in Water Body	SUN Rong-guo, MAO Wen, MA Ming, <i>et al.</i> (4329)
Degradation of Oxytetracycline with Ozonation in Acetic Acid Solvent	LI Shi-yin, LI Xiao-rong, ZHU Yi-ping, <i>et al.</i> (4335)
Photodegradation Performance and Mechanisms of Carbamazepine and Its Impact Factors	CHEN Chao, ZHAO Qian, FENG Li, <i>et al.</i> (4340)
Investigation of Nitrobenzene Removal by Iron Sulfide (FeS)	WANG Xia-lin, LI Rui-hua (4346)
Experimental Research on <i>In-Situ</i> Auto-Monitoring for Underground Sewage Pipeline Leakage	GUO Lei, JIA Yong-gang, FU Teng-fei, <i>et al.</i> (4352)
Adsorption of Phenol Chemicals by Surfactant-Modified Zeolites	XIE Jie, WANG Zhe, WU De-yi, <i>et al.</i> (4361)
Acute Toxicity of Antibiotics and Anaerobic Digestion Intermediates in Pharmaceutical Wastewaters	JI Jun-yuan, XING Ya-juan, ZHENG Ping (4367)
Study on Phosphorus Removal Capability of Constructed Wetlands Filled with Broken Bricks	WANG Zhen, LIU Chao-xiang, LI Peng-yu, <i>et al.</i> (4373)
Denitrification Water Treatment with Zeolite Composite Filter by Intermittent Operation	QING Cheng-song, BAO Tao, CHEN Tian-hu, <i>et al.</i> (4380)
Influence of Nitrate on the Simultaneous Methanogenesis and Denitrification Reaction of Anaerobic Biofilm and Granular Sludge	ZHONG Chen-yu, YE Jie-xu, LI Ruoyu, <i>et al.</i> (4387)
Study on Dewatering of Activated Sludge Under Applied Electric Field	JI Xue-yuan, WANG Yi-li, FENG Jing (4393)
Effects of Multiple Environmental Factors on Trifluorsulfuron-methyl Degradation in Soils	SONG Ning-hui, SHAN Zheng-jun, SHI Li-li, <i>et al.</i> (4400)
Effect of Alkaline Post-Treatment on Physicochemical Property of Digested <i>Spartina alterniflora</i>	CHEN Guang-yin, ZHENG Zheng, CHANG Zhi-zhou, <i>et al.</i> (4406)
Structural Changes in Mineral Phases and Environmental Release Behavior of Arsenic During Sintering of Arsenic-containing Waste	WANG Xing-run, NONG Ze-xi, WANG Qi (4412)
Study on Emission Standard System of Air Pollutants	JIANG Mei, ZHANG Guo-ning, ZHANG Ming-hui, <i>et al.</i> (4417)
Mechanism for Transformation of Environmental Criteria into Environmental Standards in China	BI Cen-cen, WANG Tie-yu, LÜ Yong-long (4422)
Effect Analysis on the Two Total Load Control Methods for Poisonous Heavy Metals	FU Guo-wei (4428)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2012年12月15日 33卷 第12期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 33 No. 12 Dec. 15, 2012

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 70.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行