

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第9期

Vol.34 No.9

2013

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

利用PUF被动采样技术研究长三角城市群大气中多环芳烃的时空分布及来源	张利飞, 杨文龙, 董亮, 史双昕, 周丽, 张秀蓝, 李玲玲, 钮珊, 黄业茹 (3339)
FTIR对大气颗粒物PM _{2.5} 中硝酸盐的定量分析	刘娜, 魏秀丽, 高闽光, 徐亮, 焦洋, 李胜, 童晶晶, 程已阳 (3347)
福建茫荡山地区春季大气O ₃ 、HONO、HCHO、H ₂ O ₂ 对·OH的贡献率研究	刘昊, 王会祥 (3352)
水体类固醇雌激素污染现状研究进展	都韶婷, 金崇伟, 刘越 (3358)
嘉兴市地表水中兽用抗生素的污染现状调查	闫幸, 余卫娟, 兰亚琼, 李立, 吕升, 叶朝霞, 张永明, 刘锐, 陈吕军 (3368)
上海食用鱼中短链氯化石蜡的污染特征	姜国, 陈来国, 何秋生, 孟祥周, 封永斌, 黄玉妹, 唐才明 (3374)
水体环境内毒素活性的鲎法定量检测及影响因素研究	张灿, 刘文君, 张明露, 田芳, 孙雯, 钱令嘉, 战锐 (3381)
四环素类抗生素对淡水绿藻的毒性作用	徐冬梅, 王艳花, 饶桂维 (3386)
光照对东海典型赤潮藻生长及硝酸还原酶活性的影响	李鸿妹, 石晓勇, 丁雁雁, 唐洪杰 (3391)
围隔实验中浒苔在不同营养盐条件下的生长比较	庞秋婷, 李凤, 刘湘庆, 王江涛 (3398)
长江口及邻近海域浮游植物色素分布与群落结构特征	赖俊翔, 俞志明, 宋秀贤, 韩笑天, 曹西华, 袁涌铨 (3405)
长江中下游湖泊超微型真核藻类遗传多样性研究	李胜男, 史小丽, 谢微微, 龚伊, 孔繁翔 (3416)
峡谷型水源水库的氮、磷季节变化及其来源分析	黄廷林, 秦昌海, 李璇 (3423)
九龙江河流-库区系统沉积物磷特征及其生态学意义	鲁婷, 陈能汪, 陈朱虹, 王龙剑, 吴杰忠 (3430)
氮在高含沙水向人工浅水湖泊补水期间的变化规律	陈友媛, 申宇, 杨世迎 (3437)
石灰石和黄铁矿-石灰石人工湿地净化河水的研究	张菁, 李睿华, 李杰, 胡俊松, 孙茜茜 (3445)
杭州湾潮滩湿地3种优势植物碳氮磷储量特征研究	邵学新, 李文华, 吴明, 杨文英, 蒋科毅, 叶小齐 (3451)
滇池优势挺水植物茭草和芦苇降解过程中DOM释放特征研究	谢理, 杨浩, 渠晓霞, 朱元荣, 鄢元波, 张明礼, 吴丰昌 (3458)
自来水处理工艺对溶解相中全氟化合物残留的影响	张鸿, 陈清武, 王鑫璇, 柴之芳, 沈金灿, 杨波, 刘国卿 (3467)
J市饮用水氯消毒副产物分析及其健康风险评价	李晓玲, 刘锐, 兰亚琼, 余素林, 文晓刚, 陈吕军, 张永明 (3474)
水中硫酸根及溶解氧质量浓度变化对管垢金属元素释放的影响	吴永丽, 石宝友, 孙慧芳, 张枝焕, 顾军农, 王东升 (3480)
重金属捕集剂对水中微量Hg(II)的处理研究	胡运俊, 盛田田, 薛晓芹, 谭丽莎, 徐新华 (3486)
聚合氯化铁-聚(环氧氯丙烷-二甲胺)复合絮凝剂在模拟水处理中的混凝特性研究	刘新新, 杨忠莲, 高宝玉, 王燕, 岳钦艳, 李倩 (3493)
镁铝复合脱色絮凝剂的微观结构形态及絮凝机制	桑义敏, 常雪红, 车越, 谷庆宝 (3502)
钴掺杂铁酸铋活化过硫酸盐降解水中四溴双酚A的研究	欧阳磊, 丁耀彬, 朱丽华, 唐和清, 廖海星 (3507)
以海泡石为载体的双金属多相类芬顿催化剂的制备及表征	宿程远, 李伟光, 刘兴哲, 王恺尧, 王勇 (3513)
氧化还原介体调控亚硝酸盐反硝化特性研究	赵丽君, 马志远, 郭延凯, 席振华, 杜海峰, 刘晓宇, 郭建博 (3520)
缓释碳源滤池用于二级出水的深度脱氮	唐蕾, 李彭, 左剑恶, 袁琳, 李再兴 (3526)
微膨胀对好氧颗粒污泥脱氮过程中N ₂ O产生量的研究	陈丽丽, 高大文 (3532)
Fenton试剂与CPAM联合调理对污泥脱水效果的影响研究	马俊伟, 刘杰伟, 曹芮, 岳东北, 王洪涛 (3538)
高效厌氧氨氧化颗粒污泥的动力学特性	唐崇俭, 熊蕾, 王云燕, 郑平 (3544)
内蒙古温带草原氮沉降的观测研究	张菊, 康荣华, 赵斌, 黄永梅, 叶芝祥, 段雷 (3552)
湘中矿区不同用地类型面源Cd输出负荷的原位实验研究	刘孝利, 曾昭霞, 陈喆, 铁柏清, 陈求稳, 叶长城 (3557)
蠡湖沉积物重金属形态及稳定性研究	王书航, 王雯雯, 姜霞, 宋倩文 (3562)
密云县境内潮河流域土壤重金属分析评价	于洋, 高宏超, 马俊花, 李迎霞, 莫雁, 孔彦鸿 (3572)
西北干旱区黄河沿岸典型工业带表土磁性特征及其环境意义	许淑婧, 张英, 余晔, 王博, 夏敦胜 (3578)
复合稳定剂对砷污染土壤的稳定研究	王浩, 潘利祥, 张翔宇, 李萌, 宋宝华 (3587)
湖南下水湾铅锌尾矿库优势植物重金属含量及富集特征	何东, 邱波, 彭尽晖, 彭亮, 胡凌雪, 胡瑶 (3595)
安太堡露天矿复垦地不同人工植被恢复下的土壤酶活性和肥力比较	王翔, 李晋川, 岳建英, 周小梅, 郭春燕, 卢宁, 王宇宏, 杨生权 (3601)
三苯基锡的微生物降解及其对降解菌的影响	叶锦韶, 田云, 尹华, 彭辉, 黄捷, 麻榆佳 (3607)
二氯甲烷降解菌Methylobacterium rhodesianum H13的分离鉴定及降解特性研究	刘洪霞, 朱润晔, 欧阳杜娟, 庄庆丰, 陈东之, 陈建孟 (3613)
引物选择对污泥微生物多样性分析的影响	徐爱玲, 吴等等, 宋志文, 任杰, 夏岩, 董珊珊, 刘梦 (3620)
钙铝类水滑石衍生复合氧化物的SO ₂ 储存性能研究	曹琳, 王海林, 解强 (3627)
基于转运站满负荷的北京市新东西城区生活垃圾物流优化方案研究	袁京, 李国学, 张红玉, 罗一鸣 (3633)
重金属污染土壤治理与生态修复论坛会议论文	
多证据分析技术在地表重金属污染评价中的应用研究	姜林, 钟茂生, 朱笑盈, 姚珏君, 夏天翔, 刘辉 (3641)
我国城市不同功能区地表灰尘重金属分布及来源	李晓燕, 刘艳青 (3648)
黄河下游滩区开封段土壤重金属分布特征及其潜在风险评价	张鹏岩, 秦明周, 闫江虹, 胡长慧, 赵亚平 (3654)
青岛北站规划区原场地表层土壤重金属污染研究	朱磊, 贾永刚, 潘玉英 (3663)
某铅蓄电池厂土壤中铅的含量分布特征及生态风险	郑立保, 陈卫平, 焦文涛, 黄锦楼, 魏福祥 (3669)
某铅冶炼厂对周边土壤质量和人体健康的影响	周小勇, 雷梅, 杨军, 周广东, 郭广慧, 陈同斌, 万小铭, 梁琪, 乔鹏伟 (3675)
某铅蓄电池厂表土不同粒径中铅分布规律研究	岳希, 孙体昌, 黄锦楼 (3679)
原位生物稳定固化技术在铬污染场地治理中的应用研究	张建荣, 李娟, 许伟 (3684)
淋洗剂对多金属污染尾矿土壤的修复效应及技术研究	朱光旭, 郭庆军, 杨俊兴, 张晗芝, 魏荣菲, 王春雨, Marc Peters (3690)
铅蓄电池厂污染土壤中重金属铅的清洗及形态变化分析	任贝, 黄锦楼, 苗明升 (3697)
超声波辅助化学萃取对某工业场地铅污染土壤修复效果研究	王鑫杰, 黄锦楼, 刘志强, 岳希 (3704)
摩擦清洗修复铅污染土壤的参数优化及清洗效率评价	杨雯, 黄锦楼, 彭会清, 李思拓 (3709)
土壤重金属钝化修复剂生物炭对镉的吸附特性研究	郭文娟, 梁学峰, 林大松, 徐应明, 王林, 孙约兵, 秦旭 (3716)
无机稳定剂对重金属污染土壤的化学稳定修复研究	曹梦华, 祝玺, 刘黄诚, 王琳玲, 陈静 (3722)
《环境科学》征稿简则(3404) 《环境科学》征订启事(3444) 信息(3492, 3551, 3696, 3715)	

利用 PUF 被动采样技术研究长三角城市群大气中多环芳烃的时空分布及来源

张利飞, 杨文龙, 董亮, 史双昕, 周丽, 张秀蓝, 李玲玲, 钮珊, 黄业茹

(国家环境分析测试中心, 国家环境保护二噁英污染控制重点实验室, 北京 100029)

摘要: 大气是环境污染研究领域重要的介质之一, 大气被动采样技术在近 10 年来已发展成为主动大流量采样的重要补充手段. 利用聚氨酯泡沫 (polyurethane foam, PUF) 被动采样技术在区域尺度上对长三角城市群大气中的多环芳烃 (PAHs) 进行监测. 通过对 31 组采样点的研究发现, 长三角城市群大气中 PAHs 的浓度在 $10.1 \sim 367 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 之间, 苯并[a]芘 (BaP) 年平均浓度高达 $2.25 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 超出 GB 3095-2012 规定限值两倍多. PAHs 季节变化趋势为秋季 > 冬季 > 春季 > 夏季, 秋冬季节长三角城市群大气中 BaP 的超标范围较大, 其中冬季有明显的 BaP 排放. 交通石油源、煤和生物质燃烧和焦炉排放源是该区域大气中 PAHs 的主要来源, 贡献率依次为 38.1%、42.4% 和 19.5%.

关键词: 大气被动采样; 长三角城市群; 多环芳烃; 季节变化; 来源

中图分类号: X131.1; X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)09-3339-08

PUF Passive Air Sampling of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmosphere of the Yangtze River Delta, China: Spatio-Temporal Distribution and Potential Sources

ZHANG Li-fei, YANG Wen-long, DONG Liang, SHI Shuang-xin, ZHOU Li, ZHANG Xiu-lan, LI Ling-ling, NIU Shan, HUANG Ye-ru

(State Environmental Protection Key Laboratory of Dioxin Pollution Control, National Research Center for Environmental Analysis and Measurement, Beijing 100029, China)

Abstract: Atmosphere is regarded to be an important media in the environmental pollution research area. Passive air sampling was one of the effective complementary sampling techniques for the active high volume air sampler in recent decades. A regional scale investigation on the atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) was conducted in the Yangtze River Delta (YRD). Polyurethane foam based passive air samplers were used to collect the atmospheric PAHs from 31 sampling sites in this area. PAHs concentrations ranged from $10.1 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ to $367 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ in this study. The annual average concentration of benzo[a]pyrene (BaP) reached $2.25 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, which was two times higher exceeding the national standard, GB 3095-2012. The atmospheric PAHs during four seasons decreased in the following order: autumn > winter > spring > summer. Larger BaP excessive areas were found in autumn and winter than other seasons. Moreover, an obvious emission of BaP was confirmed during the winter time. Traffic related petroleum combustion, coal and biomass burning, and coke oven were identified as potential sources of atmospheric PAHs, contributing 38.1%, 42.4%, and 19.5%, respectively.

Key words: passive air sampling; Yangtze River Delta; PAHs; seasonal variation; sources

长三角城市群人口稠密, 环境空气中的污染物直接威胁到人体的健康^[1]. 多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 属半挥发性有机污染物, 在环境空气、水体和土壤中普遍存在^[2,3]. 2012 年新发布的《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 对 PAHs 中致癌性最强的苯并[a]芘 (benzo[a]pyrene, BaP) 进行了限定, 规定环境空气中 BaP 的日平均浓度和年平均浓度限值分别为 $2.5 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $1.0 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$.

大气中 PAHs 等半挥发性有机污染物的传统采样方法是主动大流量采样法. Chen 等^[3] 利用大流

量采样器研究了位于长三角的上海市城郊大气中 PAHs 的季节变化、气粒分配及来源. 研究表明, 上海市城区和郊区大气中 PAHs 的年均浓度分别为 $167 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $216 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 其中 BaP 的浓度分别为 $2.63 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $3.15 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 地面挥发、城市交通和燃煤是 PAHs 的主要来源. 主动大流量采样法以

收稿日期: 2012-12-11; 修订日期: 2013-01-25

基金项目: 国家重点基础研究发展规划 (973) 项目 (2009CB421602); 科学技术部创新方法研究专项 (2010IM031000)

作者简介: 张利飞 (1979 ~), 男, 博士, 副研究员, 主要研究方向为 POPs 分析测试.

* 通讯联系人, E-mail: lfzhang@cneac.com

抽气泵和吸附材料富集已知体积空气,是监测气态污染物浓度最精确的方法^[4]. 但由于成本和运输等因素的限制,大流量采样法不能同时开展大量点位大气样品的采集. 大气被动采样 (passive air sampling, PAS) 技术在近 10 年多来得到快速发展,已成为主动大流量采样法的重要补充手段^[5]. 加拿大学者 Shoeib 等^[6] 开发的基于聚氨酯泡沫 (polyurethane foam, PUF) 材料的大气被动采样器,其制作与安装简便,造价低廉,目前已被广泛接受和使用. 刘向等^[7] 于 2005 年利用 PUF 大气被动采样技术对我国 32 个城市大气中的 PAHs 进行了观测,其中长三角地区的南京、上海和杭州大气中 PAHs 的春冬两季浓度分别在 $140 \sim 175 \text{ ng} \cdot \text{d}^{-1}$ 和 $188 \sim 227 \text{ ng} \cdot \text{d}^{-1}$ 之间. Wang 等^[8] 于 2006 ~ 2007 年间利用相同的 PUF-PAS 研究了上海地区大气中 PAHs 的污染特征及来源. 大气中 PAHs 的浓度冬季高夏季低,气态中 13 种 PAHs 的总浓度为 $36 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,其中 BaP 的浓度为 $0.17 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$. 茚、菲、荧蒽、芘和蒽为浓度较高的单体. 木材和生物质燃烧是冬季上海大气中 PAHs 的主要来源.

到目前为止,利用 PUF 大气被动采样技术,在我国经济快速发展的长三角城市群开展密集布点监测,研究大气中 PAHs 时空分布及来源的报道鲜见. 本研究在我国长三角城市群利用 PUF 大气被动采样技术开展区域密集布点监测. 一方面在区域尺度上对长三角城市群大气中 PAHs 的污染水平和时空分布特征进行研究; 另一方面通过数据分析和对比,探讨大气中 PAHs 的潜在来源,以期阐明我国经济快速发展区域大气 PAHs 污染演变趋势提供科学依据.

1 材料与方法

1.1 样品采集

2010 年 6 月 4 日 ~ 2011 年 6 月 7 日,以昆山市、吴江市、苏州市、常熟市、南通市、张家港市、江阴市和无锡市为研究区域 (东经 $120.2^\circ \sim 121^\circ$, 北纬 $29.9^\circ \sim 32.1^\circ$), 布设 PAS 采样点 31 组 (图 1), 按照城市、城乡结合部和农村分三类布设, 每个采样点平行安装 2 个采样器, 利用 Harner 型 PAS 在长三角城市群开展大气样品的采集. 样品按照春、夏、秋、冬四季分别进行采集, 每次采集周期为 12 周左右 (夏: 2010 年 6 月 4 日 ~ 2010 年 8 月 30 日, 共 87 d; 秋: 2010 年 8 月 30 日 ~ 2010 年 11 月 29 日, 共 91 d; 冬: 2010 年 11 月 29 日 ~ 2011 年 3 月

11 日, 共 102 d; 春: 2011 年 3 月 11 日 ~ 2011 年 6 月 7 日, 共 88 d). 每次采集均带有 2 个空白, 除 PAS15 位于钢铁企业周边外, 其它采样点周围均无直接的人类活动干扰.



图 1 长三角城市群大气被动采样点位分布图示意

Fig. 1 Passive air sampling sites in the Yangtze River Delta

有机溶剂均为农残级, 购于美国 J. T. Baker 公司. PUF 碟片规格为: 直径 14 cm, 厚度 1.35 cm, 表面积 365 cm^2 , 体积 207 cm^3 , 密度 $0.0213 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$. 碟片在使用前依次用沸水和丙酮清洗, 然后正己烷: 二氯甲烷 (体积比 1:1) 混合溶液加速溶剂提取 (ASE300, 美国 Dionex 公司) 3 次. 提取完毕, 用铝箔包裹置于真空干燥器中使溶剂完全挥发, 保存于聚乙烯密封袋中备用. 样品采集后, PUF 用铝箔包裹置于密封袋中, 转移至实验室后, 保存于 -20°C 的冰箱中待分析.

1.2 样品分析

美国 EPA 规定的 16 种优先监测的多环芳烃包括萘 (naphthalene, Nap)、苊烯 (acenaphthylene, Acy)、苊 (acenaphthene, Ace)、茚 (fluorene, Flu)、菲 (phenanthrene, Phe)、蒽 (anthracene, Ant)、荧蒽 (fluoranthene, Flt)、芘 (pyrene, Pyr)、苯并[a]蒽 (benzo[a]anthracene, BaA)、蒽 (chrysene, Chr)、二苯并[ah]蒽 (dibenzo[a,h]anthracene, DahA)、苯并[b]荧蒽 (benzo[b]fluoranthene, BbF)、苯并[k]荧蒽 (benzo[k]fluoranthene, BkF)、苯并[a]芘 (benzo[a]pyrene, BaP)、茚并[123cd]芘 (indeno

[1,2,3-c,d] pyrene, IP) 和苯并[ghi]茈 (benzo[ghi]perylene, BghiP) 混合标准溶液购自德国 Dr. Ehrenstorfer 公司. 定量用内标苝菲、苝蒽和苝蒽购自美国 AccuStandard 公司.

样品以正己烷: 二氯甲烷 (体积比 1:1) 混合溶液加速溶剂提取 (ASE300, 美国 Dionex 公司), 固相萃取柱 (Florisil 1.0 g, 6 mL, 美国 Supelco 公司) 净化, 平行蒸发浓缩 (CVE-3100, 日本 Eyela 公司) 至 1 mL, 加入定量内标混匀后, 用 GC-MS (QP-2010plus, 日本岛津公司) 测定. 具体样品处理和仪器测定条件见文献[9].

2 结果与讨论

2.1 质量保证与质量控制

PUF-PAS 的采样速率受到温度、风速和颗粒物

等因素的影响^[5], 为监控不同采样点 PAS 装置的工作状态与效能, 采样前在 PUF 上添加一定量的效能化合物 (deuration compounds, DCs) 的做法常被推荐使用^[4,10], 这种做法尤其适用于较大区域范围内大气样品的采集^[4]. 本研究涉及的区域范围相对较小, 采样周期内各点位间的风速、温度等参数差异性相对不明显, 因此在采样过程中未使用 DCs. 此外, 为减小各采样点数据的波动, 研究过程中在每个采样点布设平行双 PAS. 图 2 为 BaP 在春、夏、秋、冬四季大气平行双 PAS 样品中的浓度 ($\text{ng} \cdot \text{sampler}^{-1}$) 对比. 从中可以看出, 除 PAS3、PAS6 和 PAS29 等个别点位中 BaP 浓度差异较大外, 其它均表现较好的一致性. 秩和检验 (Wilcoxon signed ranks test) 表明, 春、夏、秋、冬四季大气平行双 PAS 样品中 BaP 的浓度在 0.05 水平上没有显著差别.

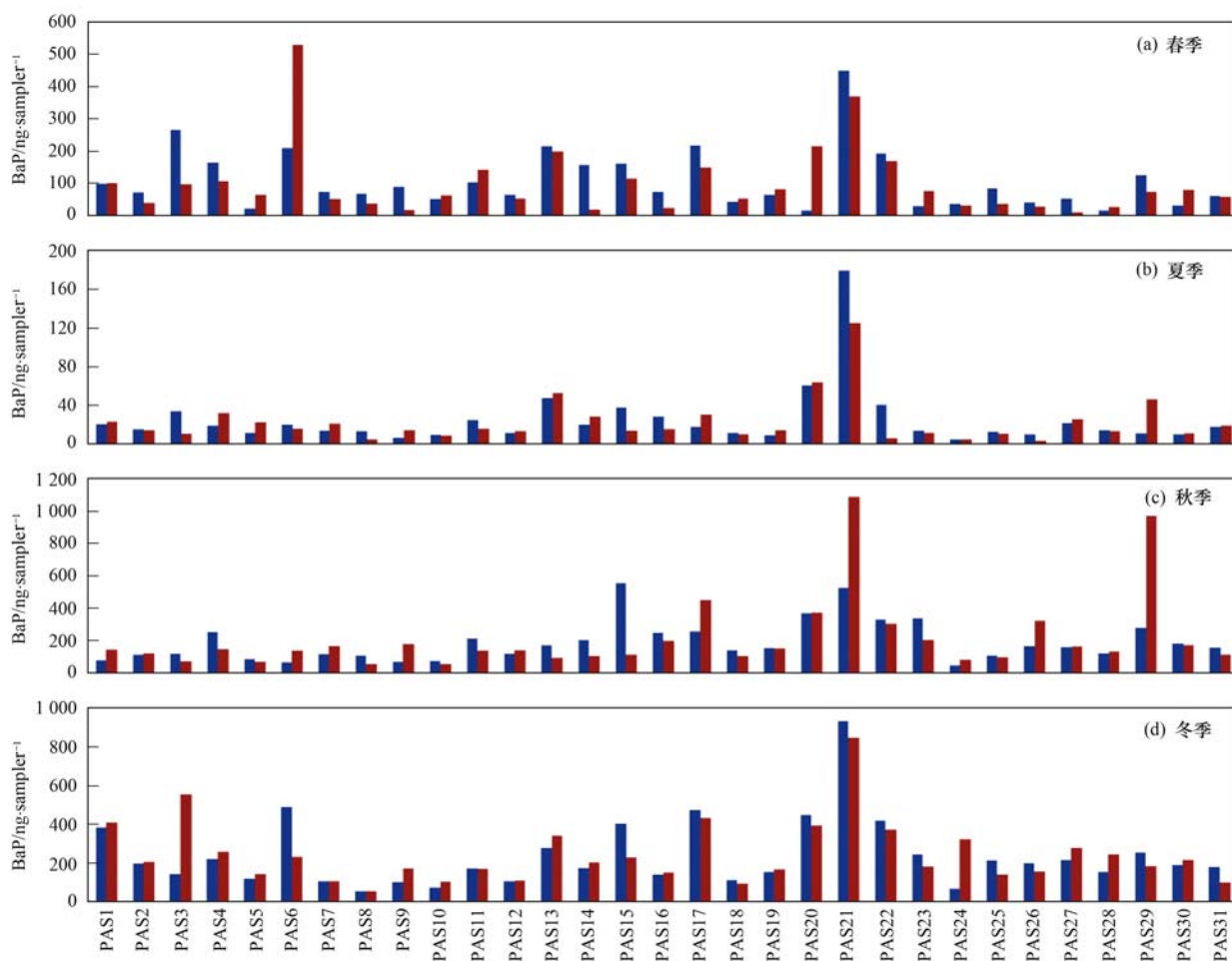


图 2 平行双 PAS 样品中 BaP 对比

Fig. 2 Comparison of BaP in parallel PAS samples

样品分析过程的质量控制包括全程序空白、空白加标和与质控样品比对等措施^[9]. 当采样时间为 100 d (采样体积 400 m^3 左右) 时, 方法检出限为 0.5

$\sim 8.0 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$, PAHs 的空白加标回收率范围为 73% ~ 120%. 样品分析时, 鉴于萘的挥发性较高, 其测定不确定性大, 且背景空白水平难以控制, 本研

究中不对萘做进一步分析. 另外,在空白中有一定量的 Phe、Flu、Ace 和 Flt 等气相化合物检出,本研究中报道的 PAHs 各单体浓度值为平行双 PAS 扣除空白后的平均值.

2.2 PAHs 的污染水平

Motelay-Massei 等^[11]在利用 PUF-PAS 研究加拿大多伦多城乡区域大气中 PAHs 时认为,该采样器在 120 d 左右对 PAHs 为线性吸附. 在假定 PUF-PAS 在 100 d 左右的采样时期内对 PAHs 为线性吸附的前提下,本研究的 PAS 采样速率采用 Klanova 等^[10]报道的气相化合物,即低分子量 ($M_r < 210$) PAHs 的采样速率为 $7 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$; 颗粒相化合物,即高分子量 ($M_r > 210$) PAHs 的采样速率为 $0.7 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$. 此外,萘具有较大的饱和蒸气压和较强的挥发性,PUF 短时间就会达到饱和,因此本研究中总 PAHs 浓度为除去萘之后的 15 种 PAHs 浓度之和.

长三角城市群大气中 PAHs 的浓度在 $10.1 \sim 367 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 之间,春、夏、秋、冬四季平均浓度分别为 59.8 、 31.7 、 177 和 $116 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,年平均值为 $96.3 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$. 低于上海市城郊大气中 PAHs 的浓度 (城市: $167 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$; 郊区: $216 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[3]. 长三角城市群大气中 PAHs 各单体浓度,以 Phe、Flt、Chr

和 BbF 等气相 PAHs 浓度较高,分别占总 PAHs 的 21.9% 、 13.4% 、 22.2% 和 11.1% ,与南京市冬季大气中 PAHs 的污染水平和单体分布特征相似^[12],但与上海市城郊大气中 PAHs 的单体分布特征稍有不同^[3]. 有研究表明,对于气相 PAHs 而言,不同季节的温度和风速变化将导致 PAS 的采样速率产生两倍偏差^[10],这可能是导致其单体分布特征差异的原因. 此外,由于本研究所用的采样器为 PUF-PAS,对高分子量 PAHs 浓度的计算,其采样速率统一采用 $0.7 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$,忽略了各 PAHs 单体间 $\lg P_L$ 的差异,这也可能是导致上述差异的原因.

BaP 在春、夏、秋、冬四季的平均浓度依次为 1.65 、 0.37 、 3.20 和 $3.79 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,年平均浓度高达 $2.25 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,超出 GB 3095-2012 规定限值两倍多. 该浓度与 Chen 等^[3]利用大流量采样器研究报道的上海市城郊大气中 BaP 的浓度 (城市: $2.63 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$; 郊区: $3.15 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) 相当,但高于 Wang 等^[8]利用 PUF-PAS 在上海的研究结果 ($0.17 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$). 由于 PAH 各个单体的性质差异较大,且污染来源较多,PAHs 在不同区域大气中的分布很不均匀^[7]. 不同的采样时间、地点和能源消费格局可能是导致 BaP 数据差异的原因.

表 1 长三角城市群大气中多环芳烃的浓度¹⁾/ $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$

Table 1 Concentration of atmospheric PAHs in the Yangtze River Delta/ $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$

化合物	最小值	最大值	中位值	平均值				
				春	夏	秋	冬	全年
Acy 苾烯	n. d.	1.386	0.057	0.049	0.030	0.351	0.140	0.142 ± 0.224
Ace 苾	n. d.	1.954	0.002	0.039	0.009	0.033	0.397	0.120 ± 0.249
Flu 苾	n. d.	7.707	2.087	0.703	0.310	4.242	4.252	2.377 ± 2.168
Phe 菲	1.306	70.60	17.74	11.767	6.228	40.502	25.783	21.07 ± 16.73
Ant 蒽	0.010	54.27	0.349	1.925	0.108	1.297	0.614	0.986 ± 4.858
Flt 荧蒽	1.396	47.72	11.73	8.851	4.972	23.456	14.346	12.91 ± 9.675
Pyr 芘	0.765	33.63	6.744	4.717	2.435	15.182	8.790	7.781 ± 6.376
BaA 苯并[a]蒽	0.282	36.43	4.600	2.822	1.994	13.129	7.991	6.484 ± 6.352
Chr 䓛	2.993	96.27	16.95	13.157	9.069	43.870	19.413	21.38 ± 17.31
BbF 苯并[b]荧蒽	1.139	50.35	9.098	5.716	3.198	18.836	15.041	10.70 ± 9.264
BkF 苯并[k]荧蒽	0.502	13.19	2.731	2.910	1.129	4.537	4.207	3.196 ± 2.480
BaP 苯并[a]芘	0.070	14.10	1.644	1.646	0.371	3.206	3.794	2.254 ± 2.363
IP 茚并[123cd]芘	0.320	15.87	2.072	2.012	0.936	4.247	4.603	2.949 ± 2.687
DahA 二苯并[ah]蒽	0.039	3.078	0.507	0.778	0.128	0.776	1.069	0.688 ± 0.624
BghiP 苯并[ghi]芘	0.307	16.02	2.316	2.687	0.782	3.609	6.104	3.295 ± 2.892
$\sum_{15} \text{PAHs}$	10.09	366.8	83.81	0.049	0.030	0.351	0.140	96.32 ± 74.77

1) n. d.:未检出

在本研究中,PUF-PAS 的采样速率还采用全球大气 PAS 观测计划 (global atmospheric passive sampling, GAPS) 推荐的 $3.5 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 进行浓度计算,并与利用 Klanova 等^[10]报道的采样速率计算得到的

浓度进行了比较 (图 3).

GAPS 推荐 $3.5 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 的 PAS 采样速率主要针对的是有机氯农药、多氯联苯等半挥发性有机物,对于同时在气相和颗粒相分配的 PAHs 不完全适

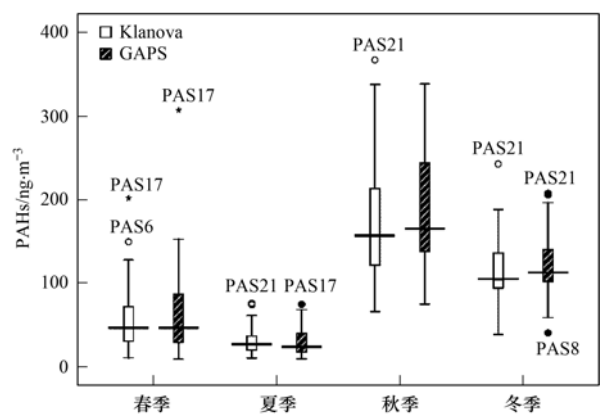


图3 不同采样速率计算得到的 PAHs 浓度

Fig. 3 PAHs concentration calculated from different sampling rates

用. 图3列出了两种采样速率计算获得的 PAHs 浓度. t 检验结果表明,采用 Klanova 和 GAPS 两种速率计算获得的总 PAHs 浓度无显著性差异 ($P = 0.483$). 但采用 GAPS 单一 $3.5 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 的采样速率将导致计算获得的气相 PAHs 浓度偏高,颗粒相

PAHs 浓度偏低. 因此,对于颗粒相 PAHs,如 BaP 的浓度计算不适合单纯地采用 $3.5 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 的 PAS 采样速率进行.

2.3 PAHs 的时空分布特征

通过 Surfer 9.1 软件(美国 Golden Software 公司),对长三角城市群大气 31 组 PAS 采样点位的 PAHs 数据用 Kriging 插值法进行拟合,获得长三角城市群春、夏、秋、冬四季大气中 PAHs 的时空分布特征图(图4).

从图4(a)可以看出,长三角城市群大气中的 PAHs 季节变化趋势为秋季 > 冬季 > 春季 > 夏季,与上海地区大气中 PAHs 的季节变化趋势相吻合^[3,7,8]. 从空间上看,浓度较高的 PAHs 采样点不在城市而是在乡镇. 位于无锡市梅村镇的 PAS21、苏州市浒墅关镇的 PAS23 和张家港市锦丰镇的 PAS15 在秋冬季节具有较高的 PAHs 浓度;位于无锡市惠山区 PAS17、常熟市海虞镇 PAS6 和南通市平潮镇 PAS13 在春夏季具有较高的 PAHs 浓度. 这

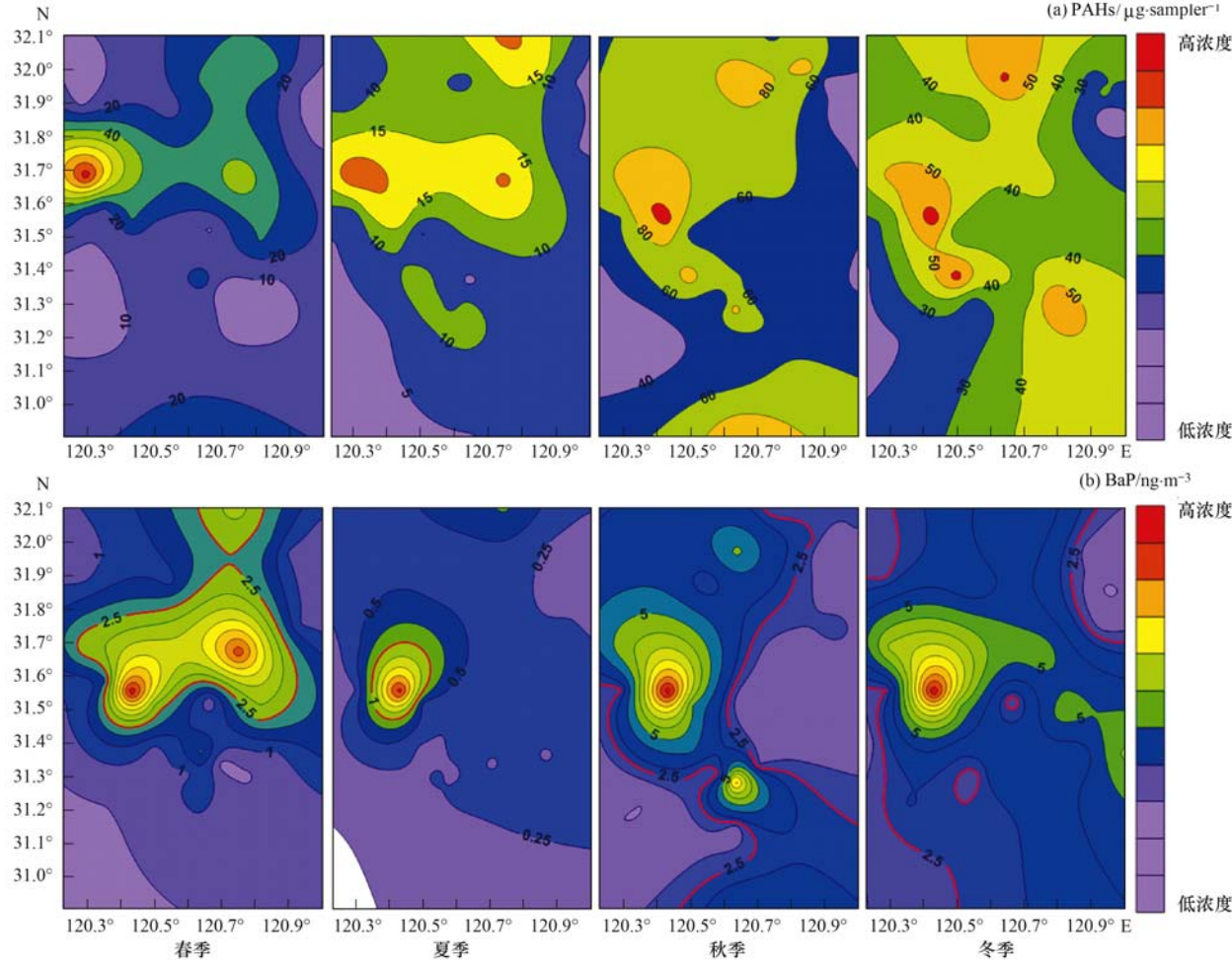


图4 长三角城市群大气中 PAHs 和 BaP 的时空分布

Fig. 4 Spatio-temporal distribution of PAHs and BaP in the atmosphere of Yangtze River Delta

些采样点均位于城市的工业卫星镇,经济发展和城镇建设速度快,大气中较高的 PAHs 浓度可能与当地工业发展格局有关.

从长三角城市群大气中 BaP 的时空分布[图 4(b)]可以看出,BaP 与 PAHs 的时空分布基本一致,其中位于无锡市梅村镇的 PAS21 具有最高的 BaP 浓度(冬季 $14.1\text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$).图 4(b)中给出了 GB 3095-2012 规定的日平均($2.5\text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)和年平均($1.0\text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)限值线,秋冬季节长三角城市群大气中超出 BaP 浓度限值的范围较大,BaP 污染严重;春夏季节超出 BaP 浓度限值的范围相对较小.由于本研究使用的 PUF 主要采集气态和粒径小于 100 nm 的颗粒物^[10],该粒径大小的颗粒物可直接进入人体肺泡^[13],威胁人体健康^[14],长三角城市群大气中秋冬季节较大范围高浓度 BaP 污染应引起关注.这是首次利用 PUF-PAS 在区域尺度获得长三角城市群大气中 BaP 的超标范围.

2.4 PAHs 的来源

长三角城市群四季大气样品中 PAHs 的总量与 BaP 的量呈显著正相关关系($P < 0.01$),相关系数为 0.707 (图 5),说明该区域大气中 BaP 的释放与总 PAHs 浓度具有一定的协同关系.值得注意的是,冬季大气中 PAHs 与 BaP 的线性斜率远小于其它季节,说明与其它季节相比,长三角城市群冬季大气中的 BaP 浓度相对偏高,可能存在 BaP 的排放.

表 2 长三角城市群大气样品中 PAHs 的比值

Table 2 Ratios of PAHs in the air samples of Yangtze River Delta

比值	类别	春季	夏季	秋季	冬季
Flt/(Flt + Pyr)	城市	0.653	0.671	0.616	0.623
	城乡结合部	0.641	0.653	0.594	0.619
	农村	0.649	0.655	0.611	0.632
BaA/(BaA + Chr)	城市	0.170	0.169	0.216	0.287
	城乡结合部	0.168	0.176	0.226	0.280
	农村	0.167	0.158	0.225	0.273
IP/(IP + BghiP)	城市	0.425	0.540	0.519	0.428
	城乡结合部	0.424	0.554	0.538	0.426
	农村	0.429	0.531	0.508	0.435

由表 2 可知,城市、城乡结合部和农村三类 Flt/(Flt + Pyr)、BaA/(BaA + Chr)和 IP/(IP + BghiP)的比值没有显著差异.长三角城市群所有大气样品中 Flt/(Flt + Pyr)比值均大于 0.5 ,说明该区域大气中 PAHs 主要源自煤和生物质燃烧^[2,12,16];BaA/(BaA + Chr)比值在春夏季小于 0.2 ,说明以石油源为主,而秋冬季节其比值在 $0.2\sim0.35$ 之间,说明为石油源和燃烧源的混合源^[17,18];IP/(IP +

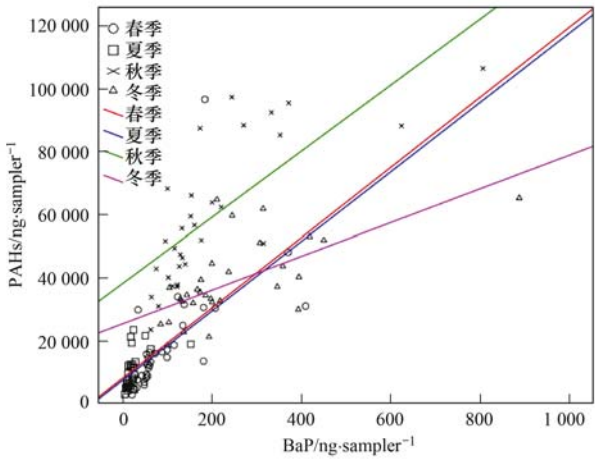


图 5 长三角城市群大气样品中 PAHs 总量与 BaP 量的相关性
Fig. 5 Correlation of total PAHs and BaP in the air samples of Yangtze River Delta

不同的污染源类型是导致 PAHs 污染特征差异的主要原因,特征化合物的比值可以为识别 PAHs 的来源提供参考^[2].由于 PAHs 的排放源成分复杂,源与源之间没有确定的界限,因此在使用比值法进行源解析时必须谨慎^[15].本研究中使用 Flt/(Flt + Pyr)、BaA/(BaA + Chr)和 IP/(IP + BghiP)的比值进行 PAHs 来源判定.长三角城市群的 31 组大气样品中,按照其所处的城市($n = 13$)、城乡结合部($n = 13$)和农村($n = 5$)三类进行统计,相关 PAHs 特征化合物的比值见表 2.

BghiP)比值在夏秋季节大于 0.5 ,也表明其为煤或生物质的燃烧^[19,20].由相关 PAHs 特征化合物的比值判定煤和生物质燃烧、交通石油源为长三角城市群大气样品中 PAHs 的主要组成部分.

本研究采集的长三角城市群大气样品数量较多($n = 124$),适合利用主成分分析法进行 PAHs 污染来源的解析(表 3).利用主成分分析法分别对春、夏、秋、冬四季大气样品中的 PAHs 单体分别进行

分析, 每个季节均提取 3 个主成分 (principal component, PC). 由表 3 可以看出, 3 个主成分可以解释总变量的 89.3% 以上. 其中 PC1 以五环和六环 PAHs (BaP、IP、DahA 和 BghiP) 为主, 代表机动车尾气和天然气等相关的交通石油燃烧^[19,21]; PC2 以三环的 Phe、Ant 和 Flt 为主, 代表煤和生物质燃烧为主的排放源; PC3 以 Ace 和 Flu 等二环单体为主, 代表焦炉燃烧源^[22~24].

表 3 长三角城市群 PAS 大气样品主成分分析结果

Table 3 PCA results on PAS samples from the Yangtze River Delta												
化合物	春季			夏季			秋季			冬季		
	PC1	PC2	PC3	PC1	PC2	PC3	PC1	PC2	PC3	PC1	PC2	PC3
Acy	0.430	0.095	0.839	0.173	0.013	0.726	0.696	0.422	-0.148	0.185	0.312	0.693
Ace	0.525	-0.059	0.654	0.056	0.264	0.790	0.155	0.142	0.947	0.234	0.040	0.896
Flu	0.482	0.407	0.729	0.143	0.676	0.669	0.468	0.680	0.362	0.400	0.488	0.710
Phe	0.352	0.750	0.539	0.086	0.882	0.248	0.434	0.740	-0.050	0.378	0.865	0.286
Ant	0.026	0.982	0.075	0.455	0.781	0.170	0.528	0.724	0.012	0.314	0.800	0.321
Flt	0.400	0.479	0.732	0.349	0.906	0.111	0.359	0.836	0.333	0.420	0.876	0.169
Pyr	0.369	0.295	0.794	0.495	0.846	0.084	0.367	0.864	0.263	0.389	0.895	0.163
BaA	0.806	0.110	0.443	0.852	0.472	-0.018	0.517	0.655	0.515	0.734	0.609	0.204
Chr	0.748	0.189	0.570	0.743	0.576	0.064	0.441	0.755	0.435	0.685	0.682	0.186
BbF	0.847	0.149	0.493	0.932	0.300	0.153	0.737	0.547	0.372	0.838	0.487	0.214
BkF	0.914	0.144	0.349	0.894	0.393	0.036	0.768	0.534	0.316	0.854	0.416	0.277
BaP	0.924	0.119	0.316	0.916	0.132	0.222	0.890	0.337	0.206	0.942	0.190	0.223
IP	0.912	0.143	0.375	0.958	0.200	0.170	0.827	0.451	0.317	0.858	0.396	0.311
DahA	0.926	0.207	0.282	0.955	0.200	0.097	0.814	0.385	0.414	0.855	0.401	0.305
BghiP	0.903	0.144	0.396	0.957	0.183	0.161	0.821	0.472	0.291	0.853	0.422	0.291
变量/%	48.21	14.73	29.93	47.76	29.20	12.34	39.10	36.32	15.49	42.26	33.81	17.00
累积变量/%	48.21	62.94	92.87	47.76	76.96	89.30	39.10	75.42	90.91	42.26	76.07	93.07

将主成分分析结果结合多元线性回归分析, 可在各主成分与总 PAHs 浓度间建立关联, 进而获得各主成分对总 PAHs 浓度的贡献率^[23,25]. 表 4 中给出了长三角城市群春、夏、秋、冬四季大气中 PAHs 浓度与各主成分多元线性回归分析的结果.

表 4 多元线性回归分析结果和各主成分贡献率

Table 4 Results on multiple liner regression and contribution of each principal component								
季节	多元线性回归分析结果				贡献率/%			
	方程	r^2	P		PC1	PC2	PC3	
春季	$\sum_{15} \text{PAHs} = 24.9\text{PC1} + 24.8\text{PC2} + 23.3\text{PC3}$	0.325	0.011		34.1	34.0	31.9	
夏季	$\sum_{15} \text{PAHs} = 11.0\text{PC1} + 12.4\text{PC2} + 2.6\text{PC3}$	0.214	0.077		42.3	47.7	10.0	
秋季	$\sum_{15} \text{PAHs} = 44.8\text{PC1} + 58.1\text{PC2} + 25.4\text{PC3}$	0.156	0.184		34.9	45.3	19.8	
冬季	$\sum_{15} \text{PAHs} = 29.1\text{PC1} + 30.0\text{PC2} + 11.6\text{PC3}$	0.118	0.311		41.2	42.4	16.4	

由此可知, 煤和生物质燃烧及交通石油源对长三角城市群大气中 PAHs 的贡献率在 80% 左右, 以夏、秋和冬这 3 个季节较为明显. 这与本研究区域相近的上海郊区大气中 PAHs 的来源一致^[3,8]. 交通石油源、煤和生物质燃烧和焦炉排放源对长三角城市群大气中 PAHs 的年平均贡献率分别为 38.1%、42.4% 和 19.5%.

3 结论

(1) 长三角城市群大气中 PAHs 的浓度在 10.1 ~ 367 ng·m⁻³ 之间, 年平均值为 96.3 ng·m⁻³. 各单体浓度以 Phe、Flt、Chr 和 BbF 较高. 其中, BaP

年平均浓度高达 2.25 ng·m⁻³, 超出 GB 3095-2012 规定限值两倍多.

(2) PAHs 季节变化趋势为秋季 > 冬季 > 春季 > 夏季, 浓度较高的 PAHs 采样点在城市下辖的乡镇区域. 秋冬季节大气中超出 BaP 浓度限值的范围较大. 冬季大气中 PAHs 与 BaP 的线性斜率远小于其它季节, 说明该区域在冬季可能存在 BaP 的排放.

(3) 主成分分析法和多元线性回归法分析表明, 交通石油源、煤和生物质燃烧和焦炉排放源是该区域大气中 PAHs 的主要来源, 贡献率分别为 38.1%、42.4% 和 19.5%.

(4)本研究利用布设平行双 PUF-PAS,在小尺度范围进行半挥发性有机污染物的密集监测,为研究区域大气污染物的演变趋势开辟了新思路。

参考文献:

- [1] Zhou Y, Fu J S, Zhuang G, *et al.* Risk-based prioritization among air pollution control strategies in the Yangtze River Delta, China[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2010, **118**(9): 1204-1210.
- [2] Lü J G, Xu R J, Zhang Q H, *et al.* Primary investigation of the pollution status of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in water and soil of Xuanwei and Fuyuan, Yunnan Province, China [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2009, **54**(19): 3528-3535.
- [3] Chen Y J, Feng Y L, Xiong S C, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmosphere of Shanghai, China [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2011, **172**(1-4): 235-247.
- [4] Moeckel C, Harner T, Nizzetto L, *et al.* Use of depuration compounds in passive air samplers: Results from active sampling-supported field deployment, potential uses, and recommendations [J]. *Environmental Science and Technology*, 2009, **43**(9): 3227-3232.
- [5] 张干, 刘向. 大气持久性有机污染物 (POPs) 被动采样[J]. *化学进展*, 2009, **21**(Z1): 297-306.
- [6] Shoeib M, Harner T. Characterization and comparison of three passive air samplers for persistent organic pollutants [J]. *Environmental Science and Technology*, 2002, **36**(19): 4142-4151.
- [7] 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): 26-31.
- [8] Wang X Y, Li Q B, Luo Y M, *et al.* Characteristics and sources of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Shanghai, China [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2010, **165**(1-4): 295-305.
- [9] 张利飞, 黄业茹, 史双昕, 等. 土壤中多环芳烃和酞酸酯类有机污染物气相色谱-质谱测定方法中的质量控制与质量保证[J]. *色谱*, 2010, **28**(5): 465-469.
- [10] Klanova J, Eupr P, Kohoutek J, *et al.* Assessing the influence of meteorological parameters on the performance of polyurethane foam-based passive air samplers[J]. *Environmental Science and Technology*, 2008, **42**(2): 550-555.
- [11] Motelay-Massei A, Harner T, Shoeib M, *et al.* Using passive air samplers to assess urban-rural trends for persistent organic pollutants and polycyclic aromatic hydrocarbons. 2. Seasonal trends for PAHs, PCBs, and organochlorine pesticides [J]. *Environmental Science and Technology*, 2005, **39**(15): 5763-5773.
- [12] 张红亮, 樊曙先, 顾凯华, 等. 南京冬季市区和郊区气溶胶中 PAHs 浓度的昼夜特征及粒径分布[J]. *环境科学*, 2012, **33**(7): 2172-2179.
- [13] Lepeule J, Laden F, Dockery D, *et al.* Chronic exposure to fine particles and mortality: An extended follow-up of the Harvard six cities study from 1974 to 2009 [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2012, **120**(7): 965-970.
- [14] Wei Y, Han I K, Shao M, *et al.* PM_{2.5} constituents and oxidative DNA damage in humans [J]. *Environmental Science and Technology*, 2009, **43**(13): 4757-4762.
- [15] Galarréau E. Source specificity and atmospheric processing of airborne PAHs: implications for source apportionment [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(35): 8139-8149.
- [16] 吕金刚, 毕春娟, 陈振楼, 等. 上海市崇明岛农田土壤中多环芳烃分布和生态风险评价[J]. *环境科学*, 2012, **33**(12): 4270-4275.
- [17] 于国光, 王铁冠, 王玮, 等. 内蒙古鄂尔多斯市大气气溶胶中的多环芳烃[J]. *中国环境科学*, 2008, **28**(1): 12-17.
- [18] 李文慧, 张承中, 马万里, 等. 西安采暖季大气中多环芳烃的污染特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2010, **31**(7): 1432-1437.
- [19] 钱冉冉, 闫景明, 吴水平, 等. 厦门市冬春季灰霾期间大气 PM₁₀ 中多环芳烃的污染特征及来源分析[J]. *环境科学*, 2012, **33**(9): 2939-2945.
- [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, **33**(4): 489-515.
- [21] Ravindra K, Sokhi R, Van Grieken R. Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons: source attribution, emission factors and regulation [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(13): 2895-2912.
- [22] Liu C H, Tian F L, Chen J W, *et al.* A comparative study on source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments of the Daliao River, China: Positive matrix factorization and factor analysis with non-negative constraints[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2010, **55**(10): 915-920.
- [23] Larsen R K III, Baker J E. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere: A comparison of three methods [J]. *Environmental Science and Technology*, 2003, **37**(9): 1873-1881.
- [24] Simcik M F, Eisenreich S J, Liou P J. Source apportionment and source/sink relationships of PAHs in the coastal atmosphere of Chicago and Lake Michigan [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(30): 5071-5079.
- [25] Tao Y Q, Yao S C, Xue B, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in surface sediments from drinking water sources of Taihu Lake, China: sources, partitioning and toxicological risk [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2010, **12**(12): 2282-2289.

CONTENTS

PUF Passive Air Sampling of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Atmosphere of the Yangtze River Delta, China: Spatio-Temporal Distribution and Potential Sources	ZHANG Li-fei, YANG Wen-long, DONG Liang, <i>et al.</i> (3339)
Quantitative Analysis of Nitrate in Atmospheric Particulates PM _{2.5} with Fourier Transform Infrared Spectroscopy	LIU Na, WEI Xiu-li, GAO Min-guang, <i>et al.</i> (3347)
Study on Contribution Factor to Atmospheric ·OH by O ₃ , HONO, HCHO and H ₂ O ₂ in Spring at Mangdang Mountain, Fujian Province	LIU Hao, WANG Hui-xiang (3352)
A Review on Current Situations of Steroid Estrogen in the Water System	DU Shao-ting, JIN Chong-wei, LIU Yue (3358)
A Study on the Veterinary Antibiotics Contamination in Groundwater of Jiaxing	LÜ Xing, YU Wei-juan, LAN Ya-qiong, <i>et al.</i> (3368)
Contamination Characteristics of Short-Chain Chlorinated Paraffins in Edible Fish of Shanghai	JIANG Guo, CHEN Lai-guo, HE Qiu-sheng, <i>et al.</i> (3374)
Detection of Endotoxin Activity in Water Environment and Analysis of Influence Factors for TAL Assay	ZHANG Can, LIU Wen-jun, ZHANG Ming-lu, <i>et al.</i> (3381)
Cellular Response of Freshwater Green Algae to the Toxicity of Tetracycline Antibiotics	XU Dong-mei, WANG Yan-hua, RAO Gui-wei (3386)
Illumination's Effect on the Growth and Nitrate Reductase Activity of Typical Red-Tide Algae in the East China Sea	LI Hong-mei, SHI Xiao-yong, DING Yan-yan, <i>et al.</i> (3391)
Compare the Growth of <i>Enteromorpha prolifera</i> Under Different Nutrient Conditions	PANG Qiu-ting, LI Feng, LIU Xiang-qing, <i>et al.</i> (3398)
Phytoplankton Pigment Patterns and Community Structure in the Yangtze Estuary and Its Adjacent Areas	LAI Jun-xiang, YU Zhi-ming, SONG Xiu-xian, <i>et al.</i> (3405)
Genetic Diversity of Picoeukaryotic Phytoplankton in the Lakes Along the Middle-lower Reaches of the Yangtze River	LI Sheng-nan, SHI Xiao-li, XIE Wei-wei, <i>et al.</i> (3416)
Studies on Seasonal Variation and Sources of Nitrogen and Phosphorus in a Canyon Reservoir Used as Water Source	HUANG Ting-lin, QIN Chang-hai, LI Xuan (3423)
Characteristics of Sediment Phosphorus in the Jiulong River-Reservoir System and Its Ecological Significance	LU Ting, CHEN Neng-wang, CHEN Zhu-hong, <i>et al.</i> (3430)
Variation of Nitrogen During the High Suspended Sediments Concentration Water Supply in an Artificial Shallow Lake	CHEN You-yuan, SHEN Yu, YANG Shi-ying (3437)
Limestone and Pyrite-Limestone Constructed Wetlands for Treating River Water	ZHANG Jing, LI Rui-hua, LI Jie, <i>et al.</i> (3445)
Dynamics of Carbon, Nitrogen and Phosphorus Storage of Three Dominant Marsh Plants in Hangzhou Bay Coastal Wetland	SHAO Xue-xin, LI Wen-hua, WU Ming, <i>et al.</i> (3451)
Dissolved Organic Matter Release of <i>Zizania caduciflora</i> and <i>Phragmites australis</i> from Lake Dianchi	XIE Li, YANG Hao, QU Xiao-xia, <i>et al.</i> (3458)
Influence of Tap Water Treatment on Perfluorinated Compounds Residue in the Dissolved Phase	ZHANG Hong, CHEN Qing-wu, WANG Xin-xuan, <i>et al.</i> (3467)
Study on Chlorinated Disinfection Byproducts and the Relevant Health Risk in Tap Water of J City	LI Xiao-ling, LIU Rui, LAN Ya-qiong, <i>et al.</i> (3474)
Effect of the Change in Sulphate and Dissolved Oxygen Mass Concentration on Metal Release in Old Cast Iron Distribution Pipes	WU Yong-li, SHI Bao-you, SUN Hui-fang, <i>et al.</i> (3480)
Research on Low-level Hg(II) Removal from Water by the Heavy Metal Capturing Agent	HU Yun-jun, SHENG Tian-tian, XUE Xiao-qin, <i>et al.</i> (3486)
Coagulation Characteristics of Polyferric Chloride-Poly (Epichlorohydrin-Dimethylamine) Composite Flocculant for Simulated Water Treatment	LIU Xin-xin, YANG Zhong-lian, GAO Bao-yu, <i>et al.</i> (3493)
Microstructure Morphology and Flocculation Mechanism of the Decolorizing Flocculant Poly-aluminum(III)-magnesium(II)-sulfate	SANG Yi-min, CHANG Xue-hong, CHE Yue, <i>et al.</i> (3502)
Efficient Degradation of Tetrabromobisphenol A in Water by Co-doped BiFeO ₃	OUYANG Lei, DING Yao-bin, ZHU Li-hua, <i>et al.</i> (3507)
Preparation Bimetallic Heterogeneous Fenton-Like Catalyst as Sepiolite Supported and Its Surface Chemical Characterization	SU Cheng-yuan, LI Wei-guang, LIU Xing-zhe, <i>et al.</i> (3513)
Nitrite Denitrification Characteristics with Redox Mediator	ZHAO Li-jun, MA Zhi-yuan, GUO Yan-kai, <i>et al.</i> (3520)
Advanced Nitrogen Removal Using Innovative Denitrification Biofilter with Sustained-Release Carbon Source Material	TANG Lei, LI Peng, ZUO Jian-e, <i>et al.</i> (3526)
N ₂ O Production in Nitrogen Removal by Micro-expansion of Granular Sludge	CHEN Li-li, GAO Da-wen (3532)
Sludge Dewaterability with Combined Conditioning Using Fenton's Reagent and CPAM	MA Jun-wei, LIU Jie-wei, CAO Rui, <i>et al.</i> (3538)
Kinetic Characteristics of High-rate ANAMMOX Granules	TANG Chong-jian, XIONG Lei, WANG Yun-yan, <i>et al.</i> (3544)
Monitoring Nitrogen Deposition on Temperate Grassland in Inner Mongolia	ZHANG Ju, KANG Rong-hua, HUANG Bin, <i>et al.</i> (3552)
Non-Point Loads of Soluble Cadmium by <i>in situ</i> Field Experiment with Different Landuses, in Central Hunan Province Mining Area	LIU Xiao-li, ZENG Zhao-xia, CHEN Zhe, <i>et al.</i> (3557)
Heavy Metal Speciation and Stability in the Sediment of Lihu Lake	WANG Shu-hang, WANG Wen-wen, JIANG Xia, <i>et al.</i> (3562)
Analysis and Evaluation of Heavy Metals Along the Chaohe River in Miyun County	YU Yang, GAO Hong-chao, MA Jun-hua, <i>et al.</i> (3572)
Magnetic Properties of Topsoils in Typical Industrial Belt Along the Yellow River in Arid Regions in Northwest China and Their Environmental Significance	XU Shu-jing, ZHANG Ying, YU Ye, <i>et al.</i> (3578)
Study on Composite Stabilization of Arsenic (As) Contaminated Soil	WANG Hao, PAN Li-xiang, ZHANG Xiang-yu, <i>et al.</i> (3587)
Heavy Metal Contents and Enrichment Characteristics of Dominant Plants in a Lead-Zinc Tailings in Xiashuiwan of Hunan Province	HE Dong, QIU Bo, PENG Jin-hui, <i>et al.</i> (3595)
Comparison of Soil Fertility Among Open-pit Mine Reclaimed Lands in Antaibao Regenerated with Different Vegetation Types	WANG Xiang, LI Jin-chuan, YUE Xiang-yi, <i>et al.</i> (3601)
Biodegradation of Triphenyltin and Its Effect on <i>Klebsiella pneumoniae</i>	YE Jin-shao, TIAN Yun, YIN Hua, <i>et al.</i> (3607)
Isolation and Degradation Characteristics of Dichloromethane-Degradation Bacterial Strain by <i>Methylobacterium rhodesianum</i> H13	LIU Hong-xia, ZHU Run-ye, OUYANG Du-juan, <i>et al.</i> (3613)
Effect of Different Primers on Microbial Community of Activated Sludge	XU Ai-ling, WU Deng-deng, SONG Zhi-wen, <i>et al.</i> (3620)
Reaction of SO ₂ over CaAl Mixed Oxides Derived from Hydrotalcites Samples	CAO Lin, WANG Hai-lin, XIE Qiang (3627)
Optimization for MSW Logistics of New Xicheng and New Dongcheng Districts in Beijing Based on the Maximum Capacity of Transfer Stations	YUAN Jing, Li Guo-xue, ZHANG Hong-yu, LUO Yi-ming <i>et al.</i> (3633)
Application of Multiple Lines of Evidence Analysis Technology in the Assessment of Sites Contaminated by Heavy Metals	JIANG Lin, ZHONG Mao-sheng, ZHU Xiao-ying, <i>et al.</i> (3641)
Heavy Metals and Their Sources in Outdoor Settled Dusts in Different Function Areas of Cities	LI Xiao-yan, LIU Yan-qing (3648)
Study on Distribution Characteristics and Potential Ecological Risk of Soil Heavy Metals in the Yellow River Beach Region in Kaifeng City	ZHANG Peng-yang, QIN Ming-zhou, YAN Jiang-hong, <i>et al.</i> (3654)
Study on Pollution Evaluation of Heavy Metal in Surface Soil of the Original Site of Qingdao North Station	ZHU Lei, JIA Yong-gang, PAN Yu-ying (3663)
Distribution Characteristics and Ecological Risk of Pb in Soils at a Lead Battery Plant	ZHENG Li-bao, CHEN Wei-ping, JIAO Wei-tao, <i>et al.</i> (3669)
Effect of Lead on Soil Quality and Human Health Around a Lead Smeltery	ZHOU Xiao-yong, LEI Mei, YANG Jun, <i>et al.</i> (3675)
Distribution Characteristics of Lead in Different Particle Size Fractions of Surface Soil of a Lead-acid Battery Factory Contaminated Site	YUE Xi, SUN Ti-chang, HUANG Jin-lou (3679)
Research on the Application of <i>In-situ</i> Biological Stabilization Solidification Technology in Chromium Contaminated Site Management	ZHANG Jian-rong, LI Juan, XU Wei (3684)
Research on the Effect and Technique of Remediation for Multi-Metal Contaminated Tailing Soils	ZHU Guang-xu, GUO Qing-jun, YANG Jun-xing, <i>et al.</i> (3690)
Analysis of Washing Efficiency and Change in Lead Speciation in Lead-contaminated Soil of a Battery Factory	REN Bei, HUANG Jin-lou, MIAO Ming-sheng (3697)
Remediation Efficiency of Lead-Contaminated Soil at an Industrial Site by Ultrasonic-assisted Chemical Extraction	WANG Xin-jie, HUANG Jin-lou, LIU Zhi-qiang, <i>et al.</i> (3704)
Parameters Optimization and Cleaning Efficiency Evaluation of Attrition Scrubbing Remediation of Pb-Contaminated Soil	YANG Wen, HUANG Jin-lou, PENG Hui-qing, <i>et al.</i> (3709)
Adsorption of Cd ²⁺ on Biochar from Aqueous Solution	GUO Wen-juan, LIANG Xue-feng, LIN Da-song, <i>et al.</i> (3716)
Effect of Inorganic Amendments on the Stabilization of Heavy Metals in Contaminated Soils	CAO Meng-hua, ZHU Xi, LIU Huang-cheng, <i>et al.</i> (3722)

《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)

2013年9月15日 34卷 第9期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 34 No. 9 Sep. 15, 2013

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: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行人