

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第1期

Vol.35 No.1

2014

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

雾霾重污染期间北京居民对高浓度 PM _{2.5} 持续暴露的健康风险及其损害价值评估	谢元博, 陈娟, 李巍 (1)
长白山 PM _{2.5} 中水溶性离子季节变化特征研究	赵亚南, 王跃思, 温天雪, 戴冠华 (9)
青岛大气颗粒物数浓度变化及对能见度的影响	柯馨姝, 盛立芳, 孔君, 郝泽彤, 屈文军 (15)
重庆市大气二噁英污染水平及季节变化	张晓岭, 卢益, 朱明吉, 蹇川, 郭志顺, 邓力, 孙静, 张芹, 罗财红 (22)
西南地区再生铝冶炼行业二噁英大气排放	卢益, 张晓岭, 郭志顺, 蹇川, 朱明吉, 邓力, 孙静, 张芹 (30)
西南地区新型干法水泥生产中的二噁英大气排放	张晓岭, 卢益, 蹇川, 郭志顺, 朱明吉, 邓力, 孙静, 张芹 (35)
杭州市办公场所室内空气中 PBDEs 的污染现状与特征	蒋欣慰, 孙鑫, 裴小强, 金漫彤, 李云龙, 沈学优 (41)
模拟不同排放源排放颗粒及多环芳烃的粒径分布研究	符海欢, 田娜, 商惠斌, 张彬, 叶素芬, 陈晓秋, 吴水平 (46)
川东北地区元素大气沉降通量及其季节变化	童晓宁, 周厚云, 游镇烽, 汤静, 刘厚均, 黄颖, 贺海波 (53)
重庆市铁山坪 2001 ~ 2010 年酸沉降变化	余德祥, 马萧萧, 谭炳全, 赵大为, 张冬保, 段雷 (60)
汉江上游金水河流域氮湿沉降	王金杰, 张克荣, 吴川, 张全发 (66)
麦秸及其烟尘中正构脂肪酸的组成	刘刚, 李久海, 吴丹, 徐慧 (73)
兰州市室内大气降尘环境磁学特征及其随高度变化研究	吴铎, 魏海涛, 赵瑞瑞, 张蕊, 刘建宝 (79)
中亚热带针阔混交林土壤-大气界面释汞通量研究	马明, 王定勇, 申源源, 孙荣国, 黄礼昕 (85)
水稻秸秆生物炭对耕地土壤有机碳及其 CO ₂ 释放的影响	柯跃进, 胡学玉, 易卿, 余忠 (93)
黄海和东海海域溶解铋地球化学分布特征	吴晓丹, 宋金明, 吴斌, 李学刚 (100)
浑河上游(清原段)水环境中重金属时空分布及污染评价	马迎群, 时瑶, 秦延文, 郑丙辉, 赵艳民, 张雷 (108)
POCIS 采样技术应用于九龙江流域水环境中雌激素的检测	张利鹏, 王新红, 李永玉, 吴玉玲, 张祖麟 (117)
降雨条件下岩溶地下水微量元素变化特征及其环境意义	陈雪彬, 杨平恒, 蓝家程, 莫雪, 师麟 (123)
锡林河流域地表水水化学主离子特征及控制因素	唐玺雯, 吴锦奎, 薛丽洋, 张明泉, Frauke Barthold, Lutz Breuer, Hans-Georg Frede (131)
子牙河水系河流氮素组成及空间分布特征	赵钰, 单保庆, 张文强, 王超 (143)
水稻种植对中亚热带红壤丘陵区小流域氮磷养分输出的影响	宋立芳, 王毅, 吴金水, 李勇, 李裕元, 孟岑, 李航, 张满意 (150)
黄东海表层沉积物中磷的分布特征	宋国栋, 刘素美, 张国玲 (157)
河流沉积物中有机磷提取剂 (NaOH-EDTA) 提取比例与机制研究	张文强, 单保庆, 张洪, 唐文忠 (163)
沉积物短期扰动下 BAPP 再生和转化机制	武晓飞, 李大鹏, 汪明 (171)
三峡库区典型农村型消落带沉积物风险评价与重金属来源解析	敖亮, 雷波, 王业春, 周谐, 张晟 (179)
太湖东部不同类型湖区疏浚后沉积物重金属污染及潜在生态风险评价	毛志刚, 谷孝鸿, 陆小明, 曾庆飞, 谷先坤, 李旭光 (186)
滇池沉积物中主要污染物含量时间分异特征研究	王心宇, 周丰, 伊旋, 郭怀成 (194)
浓度层析荧光光谱局部匹配溢油鉴别技术	王春艳, 史晓凤, 李文东, 张金亮 (202)
光电 Fenton 技术处理污泥深度脱水液研究	王现丽, 王世峰, 吴俊峰, 濮文虹, 杨昌柱, 张敬东, 杨家宽 (208)
同步脱氮除磷颗粒污泥硝化反硝化特性试验研究	刘小英, 林慧, 马兆瑞, 王磊, 刘静伟, 郭超, 姜应和 (214)
垃圾填埋场渗滤液短程生物脱氮的长期稳定性实验研究	孙洪伟, 郭英, 彭永臻 (221)
油田区土壤石油烃组分残留特性研究	胡迪, 李川, 董倩倩, 李立明, 李广贺 (227)
水稻光合同化碳在土壤中的矿化和转化动态	谭立敏, 彭佩钦, 李科林, 李宝珍, 聂三安, 葛体达, 童成立, 吴金水 (233)
土地利用及退耕对喀斯特山区土壤活性有机碳的影响	廖洪凯, 李娟, 龙健, 张文娟, 刘云飞 (240)
水稻土团聚体 Cu ²⁺ 吸附过程中铝的溶出及土壤溶液 pH 变化	许海波, 赵道远, 秦超, 李玉姣, 董长勋 (248)
Cr(VI) 对两种黏土矿物在单一及复合溶液中 Cu(II) 吸附的影响	刘娟娟, 梁东丽, 吴小龙, 屈广周, 钱勋 (254)
淹水时长对 3 种丛枝菌根 (AM) 真菌感染 2 种湿地植物的影响	马雷猛, 王鹏腾, 王曙光 (263)
太湖水质与水生生物健康的关联性初探	周笑白, 张宁红, 张咏, 牛志春, 刘雷, 于红霞 (271)
3 种典型污染物对水生生物的急性毒性效应及其水质基准比较	姜东生, 石小荣, 崔益斌, 李梅 (279)
某制药废水对发光细菌急性毒性的评价研究	杜丽娜, 杨帆, 穆玉峰, 余若祯, 左剑恶, 高俊发, 余忻, 滕丽君, 汤薪瑶 (286)
异丙甲草胺与锌共存对斜生栅藻毒性手性差异影响	胡晓娜, 张淑娟, 陈彩东, 刘惠君 (292)
Biotic Ligand Model 的简化模型及预测性能评价	王万宾, 陈莎, 吴敏, 苏德丽, 赵婧 (299)
基于 USEtox 的焦化行业优先污染物筛选排序研究	郝天, 杜鹏飞, 杜斌, 曾思育 (304)
微囊藻毒素降解菌 <i>Paucibacter</i> sp. CH 菌的分离鉴定及其降解特性	游狄杰, 陈晓国, 向荟圯, 欧阳溱, 杨冰 (313)
硝酸盐抑制油田采出水中硫酸盐还原菌活性研究	杨德玉, 张颖, 史荣久, 韩斯琴, 李光哲, 李国桥, 赵劲毅 (319)
降解纤维素产甲烷的四菌复合系	吴俊妹, 马安周, 崔萌萌, 于清, 齐鸿雁, 庄绪亮, 庄国强 (327)
中国陆地生态系统土壤异养呼吸变异的影响因素	谢薇, 陈书涛, 胡正华 (334)
内蒙古羊草草原根呼吸和土壤微生物呼吸区分的研究	史晶晶, 耿元波 (341)
南京河流夏季水-气界面 N ₂ O 排放通量	韩洋, 郑有飞, 吴荣军, 尹继福, 孙霞 (348)
杀菌剂对湖泊水体温室气体浓度分析的影响	肖启涛, 胡正华, James Deng, 肖薇, 刘寿东, 李旭辉 (356)
生物表面活性剂强化剩余污泥微生物燃料电池产电特性研究	彭海利, 张植平, 李小明, 杨麒, 罗琨, 易欣 (365)
不同硅铝比 Fe-ZSM-5 催化剂对氧化亚氮催化分解性能的研究	卢仁杰, 张新艳, 郝郑平 (371)
硫酸铵和尿素对废物焚烧过程中多种途径生成氯苯类的抑制作用	严密, 祁志福, 李晓东, 胡艳军, 陈彤 (380)
县域尺度的京津冀都市圈 CO ₂ 排放时空演变特征	汪浩, 陈操操, 潘涛, 刘春兰, 陈龙, 孙莉 (385)
保水剂性能及其农用安全性评价研究进展	李希, 刘玉荣, 郑袁明, 贺纪正 (394)
《环境科学》征订启事 (65)	
《环境科学》征稿简则 (220)	
信息 (226, 270, 298, 364)	

模拟不同排放源排放颗粒及多环芳烃的粒径分布研究

符海欢¹, 田娜¹, 商惠斌¹, 张彬¹, 叶素芬¹, 陈晓秋², 吴水平^{1*}

(1. 厦门大学环境与生态学院, 厦门 361102; 2. 福建省环境监测中心站, 福州 350003)

摘要: 采用再悬浮箱模拟得到不同粒径的烹调油烟、生物质和塑料燃烧烟尘、汽车尾气和发电机烟气等颗粒, 并用 GC/MS 对不同粒径颗粒中 18 种多环芳烃 (PAHs) 进行了分析。结果表明, 烹调油烟中颗粒物存在 0.44 ~ 1.0 μm 和 2.5 ~ 10 μm 两个峰值, 稻草和木材燃烧排放烟尘只有 0.44 ~ 1.0 μm 一个峰值, 塑料燃烧排放烟尘的峰值不明显, 汽车尾气尘因含有大量的水汽导致其粒径峰值出现在 2.5 ~ 10 μm , 而发电机排放的烟尘约 93% 集中在 ≤ 2.5 μm 的粒径范围。烹调油烟和汽车尾气尘中低环数 PAHs 在 2.5 ~ 10 μm 范围内的峰值明显; 随环数增加, 0.44 ~ 1.0 μm 范围内的峰值变得明显; 不同排放源亚微米颗粒中单一 PAH 占全部颗粒态中该 PAH 的比例都呈现随分子量的增大而增大的趋势。烹调油烟和燃烧排放颗粒中 PAHs 的组成以菲占主导, 但汽车尾气和发电机烟尘中含量最高的 PAHs 分别是萘和苯并[*g,h,i*] 花。来源特征比值的比较显示, 烹调油烟与生物质燃烧颗粒中 PAHs 的源特征较为接近, 但两者都不同于汽车尾气和发电机烟尘。

关键词: 颗粒物; 多环芳烃; 排放源; 粒径分布; 环境效应

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)01-0046-07

Size Distribution of Particle and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Particle Emissions from Simulated Emission Sources

FU Hai-huan¹, TIAN Na¹, SHANG Hui-bin¹, ZHANG Bin¹, YE Su-fen¹, CHEN Xiao-qiu², WU Shui-ping¹

(1. College of the Environment and Ecology, Xiamen University, Xiamen 361102, China; 2. Environmental Monitoring Center Station of Fujian Province, Fuzhou 350003, China)

Abstract: Particles from cooking lampblack, biomass and plastics burning smoke, gasoline vehicular exhausts and gasoline generator exhausts were prepared in a resuspension test chamber and collected using a cascade MOUDI impactor. A total of 18 polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) associated with particles were analyzed by GC-MS. The results showed that there were two peaks in the range of 0.44-1.0 μm and 2.5-10 μm for cooking lampblack, and only one peak in the range of 0.44-1.0 μm for straw and wood burning smoke. But there were no clear peak for plastics burning smoke. The peak for gasoline vehicular exhausts was found in the range of 2.5-10 μm due to the influence of water vapor associated with particles, while the particles from gasoline generator exhausts were mainly in the range of ≤ 2.5 μm (accounting for 93% of the total mass). The peak in 2.5-10 μm was clear for cooking lampblack and gasoline vehicular exhausts. The peak in the range of 0.44-1.0 μm became more and more apparent with the increase of PAHs molecular weight. The fraction of PAH on particles less than 1.0 μm to that on the total particles increased along with PAH's molecular weight. Phenanthrene was the dominant compound for cooking lampblack and combustion smoke, while gasoline vehicular exhausts and generator exhausts were characterized with significantly high levels of naphthalene and benzo[*g,h,i*] perylene, respectively. The distribution of source characteristic ratios indicated that PAHs from cooking lampblack and biomass burning were close and they were different from those of vehicular exhausts and generator exhausts.

Key words: particles; PAHs; emission sources; size distribution; environment effects

多环芳烃 (PAHs) 是大气环境中普遍存在的一类半挥发性有机污染物, 一旦进入大气, 就会在颗粒相和气相之间进行分配^[1], 其中毒性较强的中、高环数 PAHs 主要吸附于细颗粒, 而低环数 PAHs 则主要以气态形式存在^[2,3]。颗粒粒径越小, 越容易进入呼吸道的深部, 如粒径在 2.5 μm 以下的细颗粒物, 被吸入人体呼吸道后会直接进入支气管, 干扰肺部的气体交换, 引发包括哮喘、支气管炎和心血管病等方面的疾病^[4,5]。而且, 大气中颗粒态 PAHs 的沉降速率、迁移距离、光解速率、大气寿命等归趋行为都受其粒径分布的影响^[6]。

由于排放源及测量方法的不同, 文献报道的源排放颗粒物中 PAHs 的粒径分布略有差别, 但主要都集中于微米及亚微米粒径范围。如 Zielinska 等^[7]对汽车尾气的研究显示, 2 ~ 3 环 PAHs 的粒径分布没有明显的峰值, 但 ≥ 4 的 PAHs 在 0.18 ~ 0.32 μm 范围内具有明显峰值; Venkataraman 等^[8]发现燃烧木材、煤块及牛粪饼的炉灶排放的 PAHs 为单峰分

收稿日期: 2013-04-06; 修订日期: 2013-07-07

基金项目: 国家自然科学基金项目 (40971257, 41171365); 环境保护公益性行业科研专项 (201009004)

作者简介: 符海欢 (1994 ~), 女, 主要研究方向为大气颗粒物的有机组成, E-mail: 675282575@qq.com

* 通讯联系人, E-mail: wsp@xmu.edu.cn

布($0.40 \sim 1.01 \mu\text{m}$),且颗粒态 PAHs 的质量中值直径(MMD)比汽车尾气中 PAHs 的 MMD 高出 $5 \sim 10$ 倍;Yang 等^[9]发现在稻草燃烧期间,大气中颗粒态 PAHs 的粒径峰值在积聚模态($0.1 \sim 1 \mu\text{m}$),而非稻草燃烧期间(汽车尾气为主要来源)的峰值在超细模态($<0.1 \mu\text{m}$);陈颖军^[10]报道中国农村家用蜂窝煤燃烧排放的颗粒态 PAHs 绝大部分集中于亚微米范围;沈国峰^[11]的研究显示,农村炉灶中秸秆和灌木燃烧排放 PAHs 的粒径峰值为 $1.1 \sim 2.1 \mu\text{m}$,大于乔木燃烧排放 PAHs 的粒径峰值($<0.4 \mu\text{m}$)。大量研究显示,烹调油烟颗粒数浓度的粒径峰值都在超细模态^[12~14],但油烟颗粒中 PAHs 的粒径分布很少报道。

本研究通过在再悬浮箱内模拟烹调和燃料燃烧过程,采用分级采样器采集不同粒径的颗粒物,并对颗粒态中的 PAHs 进行分析,探讨不同排放源排放颗粒及 PAHs 粒径分布差异的原因,以期为进一步 PAHs 排放清单研究提供基础数据。

1 材料与方法

1.1 样品采集

利用实验室已建立的再悬浮箱模拟燃烧排放颗粒的方法,对烹调油烟、生物质燃烧烟尘、汽车尾气和发电机烟气等进行了模拟排放与采集^[15]。颗粒物的分级采样采用 MSP 公司的大流量碰撞采样器(Model 131, $100 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$),采集的颗粒粒径范围为 <0.25 、 $0.25 \sim 0.44$ 、 $0.44 \sim 1.0$ 、 $1.0 \sim 1.4$ 、 $1.4 \sim 2.5$ 、 $2.5 \sim 10$ 、 $10 \sim 16$ 和 $>16 \mu\text{m}$ 共 8 级。除最后一级($<0.25 \mu\text{m}$)采用直径为 90 mm 的玻璃纤维滤膜(孔径 $<0.3 \mu\text{m}$)外,其它粒级的颗粒物收集于直径为 75 mm 的玻璃纤维滤膜上。

按照 50 g 猪肉(五花肉) + 50 g 青菜(生菜) + 7.5 g 植物油(多力牌橄榄葵花油)的正常炒菜要求,在电磁炉上以正常程序分别进行 3 次炒菜实验。炒菜过程中,将舱门关闭至最小,尽量减少颗粒物的逸出。炒菜结束时,开启采样泵,采集 20 min ,将颗粒物按粒径大小分别收集于不同滤膜上。准确称取 20.0 g 稻草(南方水稻)、 20.0 g 木材(柳树)和 5.0 g 塑料(食品包装袋,PE 材质),分别置于家用香炉中进行燃烧实验,待燃烧殆尽时开启采样泵进行采集,采集时间分别为 40 、 40 和 32 min 。选择一小型汽油货车(五菱,车龄约 5a,累积里程约 $5 \times 10^5 \text{ km}$),将小货车怠速条件下排放的尾气泵入再悬浮箱。由于颗粒排放速度较低,为满足分析测试的要

求,保持小货车怠速持续运转 10 min 后再进行颗粒物采集,采集 20 min 后。将本田汽油发电机按正常发电状态产生的烟尘泵入再悬浮箱内,因排放烟尘量较大,持续 5 min 后即开始采样,为减少残留将采集时间延长至 40 min 。根据实验前分段连续采集使再悬浮箱内颗粒残留量下降 98% 以上来确定实际颗粒物的采样时间。每次实验前,再悬浮箱内都需要用水彻底清洗、擦干,再用真空泵抽气 30 min 以上,以便将箱内本底干扰降至最低。

1.2 样品处理与分析

采样前后滤膜都置于恒温恒湿箱(DEA-98D, 厦门德仪设备有限公司)中平衡 24 h 后(温度 25°C , 湿度 20%)再进行称重(AE240, METTLER, 感量 0.01 mg),称重后的样品冷冻保存(-18°C),一周内完成分析。取 $1/2$ 张滤膜,剪成约 1 cm^2 碎片,置于具 Teflon 隔垫螺口棕色玻璃管中,加入 10 mL 二氯甲烷,恒温水浴(25°C)超声萃取 3 次,每次 30 min 。按照实验室已建立的方法进行净化、浓缩及 GC-MS 测定^[3, 16]。采用 HP-5 MS 毛细管柱($30 \text{ m} \times 0.25 \text{ mm} \times 0.25 \mu\text{m}$)对 PAHs 进行色谱分离,以高纯氦气(纯度 $\geq 99.999\%$)为载气。进样口温度设为 250°C , $1 \mu\text{L}$ 不分流进样。GC 升温程序为:初温 50°C ,保持 2 min 后以 $30^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 120°C ,再以 $8^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 300°C ,保持 10 min 。样品在上机测试前,加入 $20 \mu\text{L}$ 浓度为 $50 \mu\text{g mL}^{-1}$ 的 $\text{C}_{24}\text{D}_{50}$ 内标物(SUPELCO, USA)进行体积校准。

共分析了包括 US EPA 16 种优控 PAHs 在内的 18 种 PAHs,即:萘(Nap)、苊烯(AcPy)、二氢苊(AcP)、芴(Flu)、菲(Phe)、蒽(Ant)、荧蒽(Flua)、芘(Py)、苯并[a]蒽(BaA)、䓛(Chr)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[j]荧蒽(BjF)、苯并[e]芘(BeP)、苯并[a]芘(BaP)、茚并[1,2,3-cd]芘(IP)、二苯并[a,h]蒽(DBA)和苯并[ghi]芘(BghiP)。其中, BbF、BkF 和 BjF 由于保留时间接近,在色谱柱上难以有效分离,合并积分进行定量,以 BbkjF 代表三者之和。

实验分析过程中,将一定量的多环芳烃混标(H-QME-01, AccuStandard)添加至干净的玻璃纤维滤膜上进行空白加标实验,得到 18 种 PAHs 的回收率范围为 $78\% \sim 104\%$ 。同一批的分级样品要同时进行处理,以降低组间误差;另外,每批样品处理的同时要保证有 2 个空白滤膜样品,以检测实验流程中来自器皿和试剂的干扰,以及实验流程的稳定性。空白样品中除 Nap 具有较高的检出量外(48.6

$\text{ng}\cdot\text{mL}^{-1}$),其他化合物的空白值介于 nd(未检出)~ $2.7\text{ ng}\cdot\text{mL}^{-1}$ 之间. Nap 具有较高的空白值,可能与样品前处理实验室附近厕所内卫生球的挥发释放的影响有关. 最后样品的定量结果经回收率和空白校正. 实验过程中所有溶剂均购自默克公司(色谱纯).

2 结果与讨论

2.1 不同排放源颗粒物的粒径分布特征

表1汇总了8次实验得到的颗粒物的排放因子、质量中值直径(MMD)及颗粒物中PAHs的浓度. 颗粒物的排放因子是以炒菜的食材总量(107.5 g)或燃烧饲料总量进行计算得到,其中汽车尾气和发电机因无法得知燃料燃烧量没有计算颗粒物的排放因子. 从表1中的数据可以看出,第1次模拟炒菜颗粒物的排放因子($3.21\times 10^3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)略低于后2次($3.93\sim 4.05\times 10^3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$),颗粒物的MMD也偏小,可能与第1次炒菜模拟时锅铲翻动不及时而出现局部油脂碳化有关. 第1次炒菜采集的颗粒物中PAHs的浓度为后2次炒菜的6~8倍,也证明存在局部油脂的高温碳化,排放的细颗粒也相对较多. 表1中的数据也表明,稻草燃烧产生颗粒物的排放

因子($11.8\times 10^3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)大于木材($3.79\times 10^3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)和塑料($9.36\times 10^3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$),主要是由于稻草和塑料燃烧排放的飞灰颗粒密度较小,在热力作用下易脱离燃烧本体,而木材含有较多的木质素,结构密实,挥发分析出速度慢,且析出的挥发物易在炉内完全燃烧. 郝吉明等^[17]对农村秸秆和木材炉灶颗粒排放的研究也显示,燃烧秸秆排放的颗粒质量浓度远大于燃烧木材的炉灶,并通过化学组成差异得出秸秆燃烧产生的颗粒是不完全燃烧产生的含碳成分以及K和Cl等易挥发的元素经气化-凝结过程而形成的无机组分,而木材燃烧排放的颗粒物主要由不完全燃烧产生的含碳成分组成.

不同燃烧源排放颗粒的质量浓度粒径分布如图1所示. 烹调油烟呈3峰态分布,主峰值在 $2.5\sim 10\text{ }\mu\text{m}$,可能来自水分在热油滴作用下的急剧汽化膨胀及高温下油滴的受热飞溅;次主峰在积聚模态($0.44\sim 1.0\text{ }\mu\text{m}$),来自油脂高温碳化及挥发分的气化-凝结形成过程;而 $>16\text{ }\mu\text{m}$ 的峰值较弱,可能来自更大粒径的油滴飞溅. 以往研究中,烹调油烟颗粒数浓度的粒径峰值在超细模态的报道较多^[12~14,18],但少有质量浓度粒径分布的报道,本研究是对油烟颗粒质量浓度粒径分布的必要补充.

表1 不同排放源颗粒物及PAHs的排放特征比较¹⁾

Table 1 Emission of particles and PAHs from different emission sources

项目	颗粒物排放因子/ $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$	MMD/ μm		颗粒中PAHs的浓度/ $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$					
		颗粒物	$\sum\text{PAH}$	2环	3环	4环	5环	6环	$\sum\text{PAHs}$
烹调1	3.21×10^3	1.70	1.09	4.21	41.2	35.3	9.82	14.5	105
烹调2	3.93×10^3	2.24	2.54	1.42	8.28	2.19	0.30	0.20	12.4
烹调3	4.05×10^3	2.05	1.75	2.73	9.85	3.66	0.64	0.43	17.3
稻草	11.8×10^3	0.48	0.65	5.61	100	127	65.4	70.8	369
木材	3.79×10^3	0.32	0.52	26.5	163	80.0	39.4	33.6	342
塑料	9.36×10^3	0.84	0.71	42.7	274	68.8	23.0	16.1	425
汽车尾气	—	2.42	2.43	26.6	28.9	6.19	1.97	5.38	69.0
发电机	—	0.22	0.18	40.4	153	3580	4973	21156	29902

1) $\sum\text{PAHs}$ 为18种PAHs的总和

稻草和木材燃烧排放的颗粒质量浓度都呈显著的单峰态分布,峰值在 $0.44\sim 1.0\text{ }\mu\text{m}$ 范围内,MMD分别为 $0.48\text{ }\mu\text{m}$ 和 $0.32\text{ }\mu\text{m}$,而粒径大于 $2.5\text{ }\mu\text{m}$ 的颗粒所占比例很低($<4\%$). Venkataraman等^[8]对印度生物质炉灶的研究也显示燃烧排放的颗粒呈单峰态分布(峰值出现在 $0.5\sim 0.8\text{ }\mu\text{m}$),韦思业等^[19]测量得到的中国农村薪柴炉灶排放颗粒的粒径峰值在 $0.4\sim 2.1\text{ }\mu\text{m}$ 范围,与本研究的结果接近;而郝吉明等^[17]得到的生物质露天焚烧和炉灶燃烧排放的颗粒质量浓度峰值都在 $0.26\sim 0.38\text{ }\mu\text{m}$ 范围,

Kleeman等^[20]报道的美国壁炉木材燃烧排放的颗粒物的粒径峰值更小,为 $0.1\sim 0.2\text{ }\mu\text{m}$. 生物质的种类、燃烧模拟方法及碰撞采样器分级的差异等都可能影响颗粒质量浓度的粒径峰值出现不同.

与生物质燃烧排放颗粒的单峰态分布不同,塑料包装纸燃烧排放颗粒物的质量谱为双峰分布,在 $0.44\sim 1.0\text{ }\mu\text{m}$ 和 $1.4\sim 2.5\text{ }\mu\text{m}$ 范围内存在2个较弱的峰值,排放颗粒的MMD更大($0.83\text{ }\mu\text{m}$),约84%的颗粒集中于粒径 $<2.5\text{ }\mu\text{m}$ 范围. 由于目前农村塑料垃圾处理能力的不足,相当部分的塑料垃

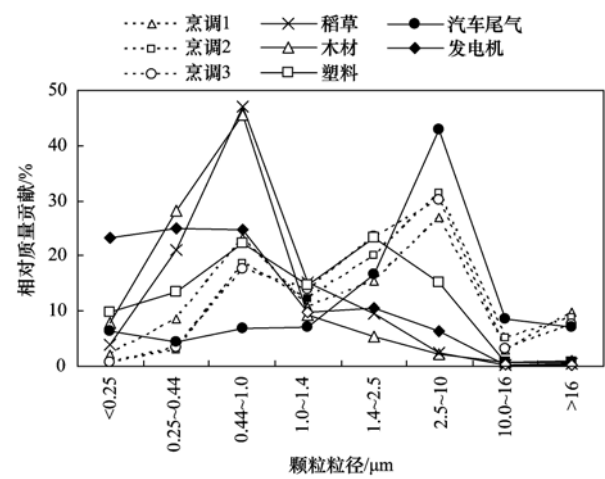


图1 不同排放源颗粒粒径分布

Fig. 1 Size distribution of particle from different emission sources

圾都是在炉灶内进行燃烧处理,其与其它庄稼秸秆一起燃烧排放的细颗粒及负载的有毒污染物对人体健康的影响不容忽视。

尽管汽车尾气和发电机烟尘都是来自 93 号汽油的燃烧排放,但汽车尾气中因含有大量的水汽,导致采集的烟尘颗粒主要集中在 2.5 ~ 10 μm 的粒径范围(约占颗粒总质量的 43%),而发电机烟尘在 3 个亚微米粒径段的比例相当,且 >2.5 μm 的颗粒只占颗粒总量的 7% 左右,其 MMD 值(0.22 μm)也比汽车尾气尘的 MMD 小近 10 倍。许忠扬等^[21]的研究显示,大型柴油客车尾气的颗粒质量浓度呈双模态分布,峰值出现在 0.40 ~ 0.65 μm 和 6.80 ~ 9.97 μm 两个粒径段,其中积聚模态颗粒来自燃料不完全燃烧的碳化与挥发分的挥发-凝结过程,而粗颗粒可能来自排气管内积尘的再释放; Zielinska 等^[7]测量柴油车和汽油车尾气尘的质量浓度峰值主要在 0.18 ~ 0.32 μm 范围,而宋健等^[22]测量得到国产中型 495A-33 型柴油机尾气尘的质量浓度峰值在 ≤1.1 μm 范围(质量贡献在 45% 左右),韩志伟等^[23]测量得到的重庆汽油车和柴油车尾气尘的粒径峰值分别为 4.7 ~ 5.7 μm 和 0.4 ~ 0.64 μm,所占

颗粒总量的比例约 31% 和 60%。因此,进一步的研究应在相同测试车辆及测试方法上进行多次测试才能获得较为稳定的结果。

2.2 不同排放源 PAHs 的粒径分布特征

从表 1 中的数据可以看出,第 1 次模拟炒菜排放颗粒中不同环数的 PAHs 及总量(∑PAHs)都显著高于后 2 次的测量值,∑PAHs 相差约为 6 ~ 8 倍。造成如此差异的原因主要是第 1 次模拟炒菜时,由于搅动方式不对,出现局部油脂碳化“糊锅”的现象,而产生了更多的 PAHs,∑PAHs 的 MMD 也相应降低。塑料燃烧排放颗粒中 ∑PAHs 的浓度为 425 μg·g⁻¹,显著高于稻草(369 μg·g⁻¹)和木材(342 μg·g⁻¹),说明塑料燃烧排放的颗粒物对人群潜在的危害更大。发电机烟尘中不同环数 PAHs 的浓度为汽车尾气尘中相应环数 PAHs 的 2 ~ 4 000 倍,且差异随环数增加而增大。其原因可能是发电机的烟尘以黑烟为主,来自烃类不完全燃烧而形成的 PAHs 与黑碳同步排放;而汽车发动机怠速时以高水汽含量的白烟为主,烃类物质燃烧条件好,黑炭及 PAHs 的生成量较低。发电机烟尘中 18 种 PAHs 达到了近 3% 的高含量,且中高环数 PAHs 几乎都集中在粒径 <1.0 μm 的亚微米颗粒中(图 2)。因此,在使用发电机时,将其置于良好的通风扩散环境是降低人群呼吸暴露量的关键。

按照 2.1 节中颗粒物排放因子的计算方法,模拟烹调颗粒态 ∑PAHs 的排放因子(=颗粒物排放因子 × 颗粒中 PAHs 的浓度)在 0.049 ~ 0.337 μg·g⁻¹ 范围内,远低于稻草(4.35 μg·g⁻¹)、木材(1.30 μg·g⁻¹)和塑料(3.98 μg·g⁻¹)的燃烧排放。由于不同研究者分析的 PAHs 种类存在区别,选择毒性最强的 BaP 进行排放因子的比较(表 2)。从表 2 中的数据可以看出,受采样方式和燃烧条件差异的影响,不同燃烧源 BaP 的排放因子存在数量级的差别。如郝吉明等^[17]报道燃煤炉灶 BaP 的排放因

表 2 不同燃烧源颗粒态 BaP 排放因子/μg·g⁻¹

Table 2 Emission factors of particulate BaP from different burning sources/μg·g⁻¹

燃料	燃烧方式	BaP	文献	燃料	燃烧方式	BaP	文献
稻草	香炉模拟	0.336 6	本研究 ¹⁾	稻草	家庭炉灶	0.3	[25] ¹⁾
木材	香炉模拟	0.057 2	本研究 ¹⁾	无烟煤	家庭炉灶	0.12	[25] ¹⁾
塑料	香炉模拟	0.038 2	本研究 ¹⁾	小麦秸秆	家庭炉灶	0.79 ± 0.31	[19] ²⁾
木材	家庭炉灶	0.54	[24] ¹⁾	玉米秸秆	家庭炉灶	0.64 ± 0.22	[19] ²⁾
煤球	家庭炉灶	0.001	[24] ¹⁾	木材	家庭炉灶	0.76 ± 0.23	[19] ²⁾
木材	家庭炉灶	0.003 ~ 0.42	[25] ¹⁾	烟煤	燃煤炉灶	1.62	[17] ²⁾

1) 颗粒物为 TSP; 2) 颗粒物为 PM_{2.5}

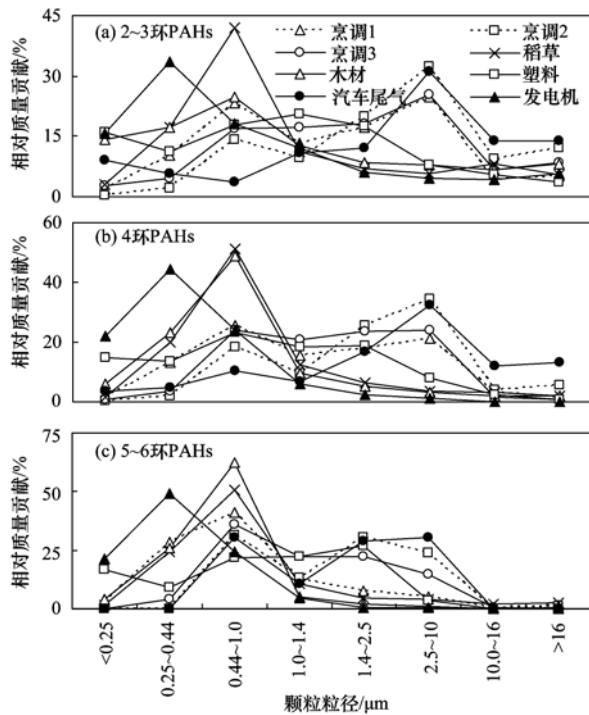


图2 不同排放源不同环数 PAHs 相对浓度的粒径分布

Fig. 2 Size distribution of PAHs with different rings from different emission sources

子为 $1.62 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$, 而 Oanh 等^[24]报道煤球炉灶的排放因子仅为 $0.001 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$; 本研究中稻草燃烧 BaP 的排放因子与 Oanh 等^[25]的结果接近, 而木材燃烧的排放因子低于文献^[17, 24]的数据近 1 个数量级。这些差异表明, 在进行排放因子研究时, 应尽量对实际炉灶进行模拟测量, 以进一步降低 PAHs 排

放因子的不确定性。

图2为不同环数 PAHs 的粒径谱分布图。对低环数 PAHs 来说, 只有烹调油烟和汽车尾气尘在 $2.5 \sim 10 \mu\text{m}$ 范围存在明显峰值, 在 $\leq 1.0 \mu\text{m}$ 范围内的峰值不完全一致; 随着 PAHs 环数增加, $2.5 \sim 10 \mu\text{m}$ 范围的峰值逐渐降低至消失, 而 $0.44 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 范围内的峰值变得更为明显, 说明中高环数 PAHs 有在细颗粒中富集的趋势。值得注意的是, 无论是低环还是高环 PAHs, 其粒径峰值一直处于 $0.25 \sim 0.44 \mu\text{m}$ 范围内, 而不同于颗粒物的粒径分布, 说明此粒径段颗粒中 PAHs 存在富集。

不同排放源产生 PAHs 的相对组成也存在一定的区别, 其中烹调油烟和燃烧排放颗粒物中以 Phe 占主导 ($18\% \sim 47\%$), 其次是 Flua、Py、IP 或 Flu。烹调1由于出现了“糊锅”现象, 导致高环数 PAHs 的量明显增加, 其 $5 \sim 6$ 环 PAHs 占总量的 23.2% , 接近木材燃烧烟尘的 21.3% , 但低于稻草燃烧的 36.9% , 而第2和第3次烹调模拟排放颗粒中 $5 \sim 6$ 环 PAHs 只占总量的 4.0% 和 6.2% 。汽车尾气尘中 Nap 和 Phe 的浓度最高, 分别占 $\sum$ PAHs 的 38% 和 33% , 其次是 BghiP; 发电机烟尘中 BghiP 的浓度最高, 占 $\sum$ PAHs 近一半左右, 其次是 IP。实际大气环境中 Phe 的浓度都显著高于其它化合物^[26, 27], 与其具有广泛的排放源有关。

比较粒径 $\leq 1.0 \mu\text{m}$ 颗粒中单一 PAHs 化合物占全粒径该化合物的相对比例 (图3), 可见, 随着环

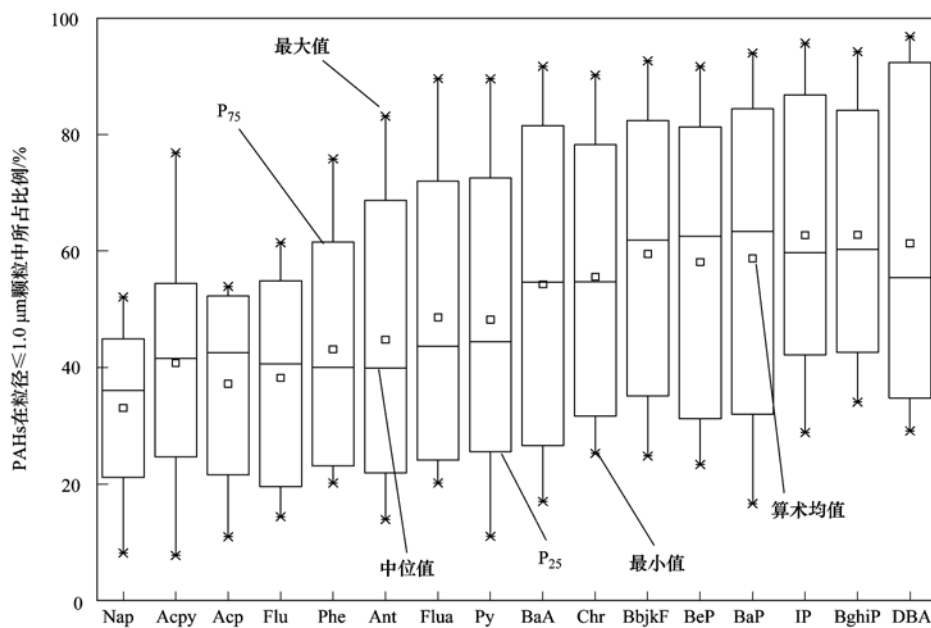


图3 污染源排放粒径 $\leq 1.0 \mu\text{m}$ 颗粒中 PAHs 占全粒径颗粒中 PAHs 的比例分布 ($n=8$)

Fig. 3 Comparison of PAH associated with $\leq 1.0 \mu\text{m}$ particles to total particles ($n=8$)

数和分子量的增大, PAHs 化合物更倾向于以超细颗粒的形式存在. PAHs 在离开燃烧源时, 温度快速下降, 气态 PAHs 迅速冷凝于颗粒物中. 高环数 PAHs 由于蒸气压更低, 有机质吸附系数更大^[28], 更易在比表面大的细颗粒中富集. 在实际大气环境中, 由于不同粒径颗粒物中有机碳和元素碳含量的差异更大, 高、低环数 PAHs 的粒径分布差异也更显著^[2,29].

大气环境中 PAHs 的源解析常用 Flua/Flua + Py 和 IP/IP + BghiP 两个特征比值来定性判断^[30,31], 其中, 草/木材/煤燃烧排放的 PAHs, 上述两个特征比值都大于 0.5, 石油燃烧产生的 PAHs, 比值 Flua/Flua + Py 介于 0.4 ~ 0.5 之间, IP/IP + BghiP 介于 0.2 ~ 0.5 之间; 而石油中 Flua/Flua + Py < 0.4. 图 4 为不同排放源的 Flua/Flua + Py 和 IP/IP + BghiP 的交汇图. 可以看出, 稻草和木材燃烧排放的 PAHs 具有较高的 IP/IP + BghiP (>0.5), 而汽车尾气和发电机烟尘中该比值较小 (<0.35); 尽管交汇图中烹调 1 远离烹调 2 和 3, 但据此定性判断方法, 烹调油烟与塑料燃烧都将归属于草/木材/煤燃烧来源, 进而导致在人口密集的居民区或存在垃圾露天焚烧用此方法出现偏离实际的误判; 汽油燃烧来源 Flua/Flua + Py 比值并未完全落入 0.4 ~ 0.5 的定性范围. 因此, 在采用特征比值进行 PAHs 来源分析时, 不能仅按照文献给定的区间范围进行判断, 还需要结合实际源排放情况进行分析, 尽可能降低 PAHs 来源解析的不确定性.

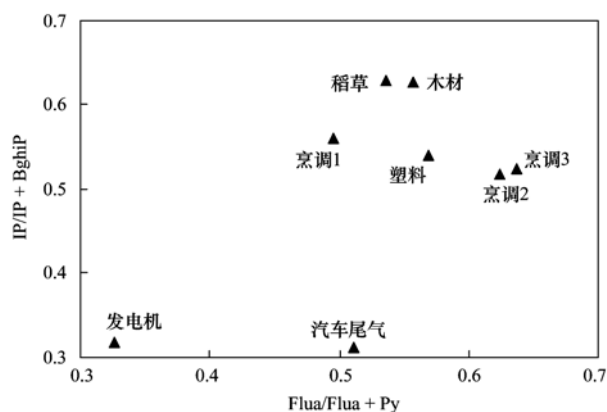


图 4 PAHs 来源特征比值 Flua/Flua + Py 和 IP/IP + BghiP 的比较

Fig. 4 Cross-plot of Flua/Flua + Py vs. IP/IP + BghiP for different emissions

3 结论

(1) 燃烧过程排放的颗粒粒径普遍小于烹调油烟, 炒菜过程中出现的“糊锅”现象, 可显著增加油

烟中粒径 $\leq 1.0 \mu\text{m}$ 细颗粒的排放比例.

(2) 硬质木材燃烧颗粒及 PAHs 的排放因子都小于稻草和塑料燃烧相应的排放因子, 但 BaP 的排放因子却表现为木材 > 塑料.

(3) 发电机烟尘中存在高浓度的细颗粒态 PAHs, 对工作场所人群的健康潜在危害不可忽视. 除了汽车尾气外, 不同排放源产生的 PAHs 更多吸附于细颗粒, 并且不同排放源产生的 PAHs 都呈现随分子量的增大而在亚微米颗粒中富集的趋势.

(4) 汽油燃烧产生的 PAHs 可区别于其它燃烧排放源, 但在采样点周围环境中存在烹调油烟或塑料垃圾焚烧时, 来源特征比值的应用受到限制.

致谢: 感谢厦门大学“大学生创新创业训练计划”的支持.

参考文献:

- [1] Callén M S, De la Cruz M T, López J M, *et al.* Some inferences on the mechanism of atmospheric gas/particle partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) at Zaragoza (Spain) [J]. *Chemosphere*, 2008, **73**(8): 1357-1365.
- [2] Wu S P, Tao S, Liu W X. Particle size distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons in rural and urban atmosphere of Tianjin, China [J]. *Chemosphere*, 2006, **62**(3): 357-367.
- [3] 刘碧莲, 吴水平, 杨冰玉, 等. 大气中多环芳烃气/粒分配的不确定性分析[J]. *环境科学*, 2011, **32**(9): 2794-2799.
- [4] 王宛怡, 王旗. 大气颗粒物对心血管系统疾病的影响及其机制的研究进展[J]. *环境与健康杂志*, 2009, **26**(9): 834-837.
- [5] 林治卿, 裘著革, 杨丹凤, 等. PM_{2.5} 的污染特征及其生物效应研究进展[J]. *解放军预防医学杂志*, 2005, **23**(2): 150-152.
- [6] Harrison R M, Van Grieken R E. *Atmospheric Particles* [M]. New York: John Wiley & Sons, 1998. 426-473.
- [7] Zielinska B, Sagebiel J, Arnott W P, *et al.* Phase and size distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in diesel and gasoline vehicle emissions [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(9): 2557-2567.
- [8] Venkataraman C, Negi G, Sardar S B, *et al.* Size distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons in aerosol emissions from biofuel combustion [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2002, **33**(3): 503-518.
- [9] Yang H H, Tsai C H, Chao M R, *et al.* Source identification and size distribution of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons during rice straw burning period [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(7): 1266-1274.
- [10] 陈颖军. 家用蜂窝煤燃烧烟气中碳颗粒和多环芳烃的排放特征[D]. 广州: 中国科学院广州地球化学研究所, 2004.
- [11] 沈国锋. 室内固体燃料燃烧产生的碳颗粒和多环芳烃的排放因子及影响因素[D]. 北京: 北京大学, 2012.
- [12] Yeung L L, To W M. Size distributions of the aerosols emitted

- from commercial cooking processes [J]. *Indoor and Built Environment*, 2008, **17**(3): 220-229.
- [13] Dennekamp M, Howarth S, Dick C A J, *et al.* Ultrafine particles and nitrogen oxides generated by gas and electric cooking [J]. *Occupational & Environmental Medicine*, 2001, **58**(8): 511-516.
- [14] Li C S, Lin W H, Jenq F T. Size distributions of submicrometer aerosols from cooking [J]. *Environment International*, 1993, **19**(2): 147-154.
- [15] 杨冰玉, 黄星星, 郑桢, 等. 厦门城区大气颗粒物 PM₁₀ 中有机酸源谱特征分析[J]. *环境科学*, 2013, **34**(1): 8-14.
- [16] 吴水平, 蓝天, 左谦, 等. 不同高度大气颗粒物中多环芳烃的粒径分布[J]. *环境化学*, 2005, **24**(1): 76-80.
- [17] 郝吉明, 段雷, 易红宏, 等. 燃烧源可吸入颗粒物的物理化学特征[M]. 北京: 科学出版社, 2008.
- [18] Buonanno G, Morawska L, Stabile L. Particle emission factors during cooking activities [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(20): 3235-3242.
- [19] 韦思业, 苏玉红, 沈国锋, 等. 农村室内薪柴燃烧的颗粒物和炭黑排放因子[J]. *生态毒理学报*, 2013, **8**(1): 29-36.
- [20] Kleeman M J, Schauer J J, Cass G R. Size and composition distribution of fine particulate matter emitted from wood burning, meat charbroiling, and cigarettes [J]. *Environmental Science and Technology*, 1999, **33**(20): 3516-3523.
- [21] 许忠扬, 吴伟伟, 肖德涛, 等. 大型柴油客车尾气对大气颗粒物粒径分布的影响[J]. *黑龙江科技信息*, 2008, (11): 47-48, 13.
- [22] 宋健, 叶舜华. 不同粒径柴油机排出颗粒物的致突变性研究[J]. *劳动医学*, 1996, **13**(4): 209-211.
- [23] 韩志伟, 张美根, 雷孝恩, 等. 重庆市总悬浮颗粒物来源及分布特征[J]. *气候与环境研究*, 2000, **5**(1): 45-50.
- [24] Oanh N T K, Reutergardh L B, Dung N T, *et al.* Emission of polycyclic aromatic hydrocarbons and particulate matter from domestic combustion of selected fuels [J]. *Environmental Science and Technology*, 1999, **33**(16): 2703-2709.
- [25] Oanh N T K, Albina D O, Ping L, *et al.* Emission of particulate matter and polycyclic aromatic hydrocarbons from selected cook stove-fuel system in Asia [J]. *Biomass and Bioenergy*, 2005, **28**(6): 579-590.
- [26] 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.
- [27] 马万里, 李一凡, 孙德智, 等. 哈尔滨市大气气相中多环芳烃的研究[J]. *环境科学*, 2009, **30**(11): 3167-3172.
- [28] Allen J O, Dookeran N M, Smith K A, *et al.* Measurement of polycyclic aromatic hydrocarbons associated with size-segregated atmospheric aerosols in Massachusetts [J]. *Environmental Science and Technology*, 1996, **30**(6): 1023-1031.
- [29] Venkataraman C, Friedlander S K. Size distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons and elemental carbon. 2. Ambient measurements and effects of atmospheric processes [J]. *Environmental Science and Technology*, 1994, **28**(4): 563-572.
- [30] 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.
- [31] Wu S P, Qian R R, Lee T C, *et al.* Seasonal variation for the ratio of BaP to BeP at different sites in Great Xiamen Bay [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2012, **14**(4): 1220-1230.

CONTENTS

An Assessment of PM _{2.5} Related Health Risks and Impaired Values of Beijing Residents in a Consecutive High-Level Exposure During Heavy Haze Days	XIE Yuan-bo, CHEN Juan, LI Wei (1)
Seasonal Variation of Water-Soluble Ions in PM _{2.5} at Changbai Mountain	ZHAO Ya-nan, WANG Yue-si, WEN Tian-xue, <i>et al.</i> (9)
Variation of Atmospheric Particle Number Concentrations in Qingdao and Its Impact on Visibility	KE Xin-shu, SHENG Li-fang, KONG Jun, <i>et al.</i> (15)
Concentrations of PCDD/Fs in the Atmosphere of Chongqing City and Its Seasonal Variation	ZHANG Xiao-ling, LU Yi, ZHU Ming-ji, <i>et al.</i> (22)
Atmospheric Emission of PCDD/Fs from Secondary Aluminum Metallurgy Industry in the Southwest Area, China	LU Yi, ZHANG Xiao-ling, GUO Zhi-shun, <i>et al.</i> (30)
Atmospheric Emission of PCDD/Fs from Modern Dry Processing Cement Kilns with Preheating in the Southwest Area, China	ZHANG Xiao-ling, LU Yi, JIAN Chuan, <i>et al.</i> (35)
Pollution Status and Characteristics of PBDEs in Indoor Air of Hangzhou	JIANG Xin-wei, SUN Xin, PEI Xiao-qiang, <i>et al.</i> (41)
Size Distribution of Particle and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Particle Emissions from Simulated Emission Sources	FU Hai-huan, TIAN Na, SHANG Hui-bin, <i>et al.</i> (46)
Atmospheric Deposition Fluxes and Seasonal Variations of Elements in Northeast of Sichuan, Central China	TONG Xiao-ning, ZHOU Hou-yun, YOU Chen-feng, <i>et al.</i> (53)
Trend in Acid Deposition at Tieshanping, Chongqing During 2001-2010	YU De-xiang, MA Xiao-xiao, TAN Bing-quan, <i>et al.</i> (60)
Wet Deposition of Atmospheric Nitrogen of the Jinshui Watershed in the Upper Hanjiang River	WANG Jin-jie, ZHANG Ke-rong, WU Chuan, <i>et al.</i> (66)
Chemical Compositions of <i>n</i> -Alkanoic Acids in Wheat Straw and Its Smoke	LIU Gang, LI Jiu-hai, WU Dan, <i>et al.</i> (73)
Magnetic Properties of Indoor Dustfall at Different Heights in Lanzhou	WU Duo, WEI Hai-tao, ZHAO Rui-rui, <i>et al.</i> (79)
Mercury Fluxes from Conifer-Broadleaf Forested Field in Central Subtropical Forest Zone	MA Ming, WANG Ding-yong, SHEN Yuan-yuan, <i>et al.</i> (85)
Impacts of Rice Straw Biochar on Organic Carbon and CO ₂ Release in Arable Soil	KE Yue-jin, HU Xue-yu, YI Qing, <i>et al.</i> (93)
Geochemical Distribution of Dissolved Bismuth in the Yellow Sea and East China Sea	WU Xiao-dan, SONG Jin-ming, WU Bin, <i>et al.</i> (100)
Temporal-spatial Distribution and Pollution Assessment of Heavy Metals in the Upper Reaches of Hunhe River (Qingyuan Section), Northeast China	MA Ying-qun, SHI Yao, QIN Yan-wen, <i>et al.</i> (108)
Determination of Estrogenic Compounds in Water of Jiulong River Using Polar Organic Chemical Integrative Sampler	ZHANG Li-peng, WANG Xin-hong, LI Yong-yu, <i>et al.</i> (117)
Variation Characteristics and Environmental Significant of Trace Elements Under Rainfall Condition in Karst Groundwater	CHEN Xue-bin, YANG Ping-heng, LAN Jia-cheng, <i>et al.</i> (123)
Major Ion Chemistry of Surface Water in the Xilin River Basin and the Possible Controls	TANG Xi-wen, WU Jin-kui, XUE Li-yang, <i>et al.</i> (131)
Forms and Spatial Distribution Characteristics of Nitrogen in Ziya River Basin	ZHAO Yu, SHAN Bao-qing, ZHANG Wen-qiang, <i>et al.</i> (143)
Impact of Rice Agriculture on Nitrogen and Phosphorus Exports in Streams in Hilly Red Soil Earth Region of Central Subtropics	SONG Li-fang, WANG Yi, WU Jin-shui, <i>et al.</i> (150)
Study on Distribution of Phosphorus in Surface Sediments of the Yellow Sea and the East China Sea	SONG Guo-dong, LIU Su-mei, ZHANG Guo-ling (157)
Characterization and Optimization of the NaOH-EDTA Extracts for Solution ³¹ P-NMR Analysis of Organic Phosphorus in River Sediments	ZHANG Wen-qiang, SHAN Bao-qing, ZHANG Hong, <i>et al.</i> (163)
Regeneration and Transformation of BAPP in Suspended Solids Under Short-term Sediment Disturbance	WU Xiao-fei, LI Da-peng, WANG Ming (171)
Sediment Risk Assessment and Heavy Metal Source Analysis in Typical Country Water Level Fluctuated Zone (WLFZ) of the Three Gorges	AO Liang, LEI Bo, WANG Ye-chun, <i>et al.</i> (179)
Pollution Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments from the Different Eastern Dredging Regions of Lake Taihu	MAO Zhi-gang, GU Xiao-hong, LU Xiao-ming, <i>et al.</i> (186)
Study on the Stages of Major Sediments in Dianchi Lake	WANG Xin-yu, ZHOU Feng, YI Xuan, <i>et al.</i> (194)
Oil Spill Identification Using Partial Surface Fitting Method Based on Concentration-Synchronous-Matrix-Fluorescence Spectra	WANG Chun-yan, SHI Xiao-feng, LI Wen-dong, <i>et al.</i> (202)
Treatment of Sludge Liquor Produced in Deep Dehydration by Photoelectro-Fenton Process	WANG Xian-li, WANG Shi-feng, WU Jun-feng, <i>et al.</i> (208)
Characteristics of Nitrification and Denitrification for Simultaneous Nitrogen and Phosphorus Removal by Granular Sludge	LIU Xiao-ying, LIN Hui, MA Zhao-rui, <i>et al.</i> (214)
Study on Long-Term Stability of Biological Nitrogen Removal via Nitrite from Real Landfill Leachate	SUN Hong-wei, GUO Ying, PENG Yong-zhen (221)
Compositions and Residual Properties of Petroleum Hydrocarbon in Contaminated Soil of the Oilfields	HU Di, LI Chuan, DONG Qian-qian, <i>et al.</i> (227)
Dynamics of the Mineralization and Transformation of Rice Photosynthesized Carbon in Paddy Soils - a Batch Incubation Experiment	TAN Li-min, PENG Pei-qin, LI Ke-lin, <i>et al.</i> (233)
Effects of Land Use and Abandonment on Soil Labile Organic Carbon in the Karst Region of Southwest China	LIAO Hong-kai, LI Juan, LONG Jian, <i>et al.</i> (240)
Aluminum Dissolution and Changes of pH in Soil Solution During Sorption of Copper by Aggregates of Paddy Soil	XU Hai-bo, ZHAO Dao-yuan, QIN Chao, <i>et al.</i> (248)
Effect of Cr(VI) Anions on the Cu(II) Adsorption Behavior of Two Kinds of Clay Minerals in Single and Binary Solution	LIU Juan-juan, LIANG Dong-li, WU Xiao-long, <i>et al.</i> (254)
Effect of Flooding Time Length on Mycorrhizal Colonization of Three AM Fungi in Two Wetland Plants	MA Lei-meng, WANG Peng-teng, WANG Shu-guang (263)
Preliminary Study on the Relationship Between the Water Quality and the Aquatic Biological Health Status of Taihu Lake	ZHOU Xiao-bai, ZHANG Ning-hong, ZHANG Yong, <i>et al.</i> (271)
Acute Toxicity of Three Typical Pollutants to Aquatic Organisms and Their Water Quality Criteria	JIANG Dong-sheng, SHI Xiao-rong, CUI Yi-bin, <i>et al.</i> (279)
Evaluation of the Acute Toxicity of Pharmaceutical Wastewater to Luminescent Bacteria	DU Li-na, YANG Fan, MU Yu-feng, <i>et al.</i> (286)
Influence of the Coexistence of Zn ²⁺ on the Enantioselective Toxicity of Metolachlor to <i>Scenedesmus obliquus</i>	HU Xiao-na, ZHANG Shu-xian, CHEN Cai-dong, <i>et al.</i> (292)
Simplification of Biotic Ligand Model and Evaluation of Predicted Results	WANG Wan-bin, CHEN Sha, WU Min, <i>et al.</i> (299)
Priority Pollutants Ranking and Screening of Coke Industry based on USEtox Model	HAO Tian, DU Peng-fei, DU Bin, <i>et al.</i> (304)
Isolation, Identification and Characterization of a Microcystin-degrading Bacterium <i>Paucibacter</i> sp. Strain CH	YOU Di-jie, CHEN Xiao-guo, XIANG Hui-yi, <i>et al.</i> (313)
Inhibition of the Activity of Sulfate-reducing Bacteria in Produced Water from Oil Reservoir by Nitrate	YANG De-yu, ZHANG Ying, SHI Rong-jiu, <i>et al.</i> (319)
Bioconversion of Cellulose to Methane by a Consortium Consisting of Four Microbial Strains	WU Jun-mei, MA An-zhou, CUI Meng-meng, <i>et al.</i> (327)
Factors Influencing the Variability in Soil Heterotrophic Respiration from Terrestrial Ecosystem in China	XIE Wei, CHEN Shu-tao, HU Zheng-hua (334)
Study on the Distinguishing of Root Respiration from Soil Microbial Respiration in a <i>Leymus chinensis</i> Steppe in Inner Mongolia, China	SHI Jing-jing, GENG Yuan-bo (341)
Nitrous Oxide Flux at the Water-Air Interface of the Rivers in Nanjing During Summer	HAN Yang, ZHENG You-fei, WU Rong-jun, <i>et al.</i> (348)
Effects of Antiseptic on the Analysis of Greenhouse Gases Concentrations in Lake Water	XIAO Qi-tao, HU Zheng-hua, James Deng, <i>et al.</i> (356)
Electricity Generation of Surplus Sludge Microbial Fuel Cell Enhanced by Biosurfactant	PENG Hai-li, ZHANG Zhi-ping, LI Xiao-ming, <i>et al.</i> (365)
Fe-ZSM-5 Catalysts with Different Silica-Alumina Ratios for N ₂ O Catalytic Decomposition	LU Ren-jie, ZHANG Xin-yan, HAO Zheng-ping (371)
Inhibition of Chlorobenzene Formation via Various Routes During Waste Incineration by Ammonium Sulfate and Urea	YAN Mi, QI Zhi-fu, LI Xiao-dong, <i>et al.</i> (380)
County Scale Characteristics of CO ₂ Emission's Spatial-Temporal Evolution in the Beijing-Tianjin-Hebei Metropolitan Region	WANG Hao, CHEN Cao-cao, PAN Tao, <i>et al.</i> (385)
Characterization and Soil Environmental Safety Assessment of Super Absorbent Polymers in Agricultural Application	LI Xi, LIU Yu-rong, ZHENG Yuan-ming, <i>et al.</i> (394)

《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)

2014年1月15日 35卷 第1期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 1 Jan. 15, 2014

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