

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第5期

Vol.35 No.5

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

长三角地区秸秆燃烧排放因子与颗粒物成分谱研究	唐喜斌, 黄成, 楼晟荣, 乔利平, 王红丽, 周敏, 陈明华, 陈长虹, 王倩, 李贵玲, 李莉, 黄海英, 张钢锋 (1623)
南京市大气颗粒物中水溶性离子的粒径分布和来源解析	薛国强, 朱彬, 王红磊 (1633)
2011年春季沙尘天气影响下上海大气颗粒物及其化学组分的变化特征	李贵玲, 周敏, 陈长虹, 王红丽, 王倩, 楼晟荣, 乔利平, 唐喜斌, 李莉, 黄海英, 陈明华, 黄成, 张钢锋 (1644)
结合外场观测分析珠三角二次有机气溶胶的数值模拟	郭晓霜, 司徒淑婷, 王雪梅, 丁翔, 王新明, 闫才青, 李小滢, 郑玫 (1654)
2013年夏季嘉兴市一次光化学事件的观测分析	沈利娟, 李莉, 吕升, 张孝寒, 吴博, 章国骏, 王翥 (1662)
移动监测法测量厦门春秋季节近地面 CO ₂ 的时空分布	李燕丽, 邢振雨, 穆超, 杜可 (1671)
秸秆烟尘和灰烬中元素碳的稳定同位素组成	刘刚, 李久海, 徐慧, 吴丹, 刘艳 (1680)
连续测量大气·OH的化学电离飞行时间质谱仪的研制	窦健, 花磊, 侯可勇, 蒋蕾, 谢园园, 赵无垠, 陈平, 王卫国, 田地, 李海洋 (1688)
我国重点城市水源及水厂出水中乙草胺的残留水平	于志勇, 金芬, 李红岩, 安伟, 杨敏 (1694)
巢湖水体组分垂向分布特征及其对水下光场的影响	马孟泉, 张玉超, 钱新, 马荣华, 段洪涛 (1698)
京杭大运河(杭州段)典型断面水生植物多样性调查及其与水环境相关性研究	陆胤, 许晓路, 张德勇, 王莉, 朱旭妮, 冯凤, 周巧君, 谢鹏 (1708)
合肥市典型景观水体氮磷污染特征及富营养化评价	李如忠, 刘科峰, 钱靖, 杨继伟, 张翩翩 (1718)
重庆园博园龙景湖新建初期内源氮磷分布特征及扩散通量估算	潘延安, 雷沛, 张洪, 单保庆, 李杰 (1727)
千岛湖库区及其主要入库河流水中有机氯农药残留污染特征及健康风险评价	唐访良, 张明, 徐建芬, 阮东德, 陈峰, 吴志旭, 程新良 (1735)
九龙江流域潜在病原菌污染分析	侯丽媛, 胡安谊, 马英, 于昌平 (1742)
江湖关系变化对鄱阳湖沉积物重金属分布及生态风险影响	刘婉清, 倪兆奎, 吴志强, 王圣瑞, 曾清如 (1750)
鄱阳湖-乐安河湿地水土环境中重金属污染的时空分布特征	简敏菲, 李玲玉, 徐鹏飞, 陈朴青, 熊建秋, 周雪玲 (1759)
典型岩溶水系统中溶解性有机质的运移特征	姚昕, 邹胜章, 夏日元, 许丹丹, 姚敏 (1766)
基于扰动分析方法的 AnnAGNPS 模型水文水质参数敏感性分析	席庆, 李兆富, 罗川 (1773)
混合胁迫条件下蓝藻运动特性研究	孙秀秀, 丛海兵, 高郑娟, 崔朝杰, 曹倩倩 (1781)
不同波长和强度光照对水体汞还原的影响	李希嘉, 钟紫旋, 孙荣国, 杨鲲, 王定勇 (1788)
地下水中常见离子对纳米零价铁除 Se(IV) 动力学的影响	杨文君, 郭迎庆, 杜尔登 (1793)
溴氧化铋可见光催化降解高效氯氟酯的研究	彭一莱, 赵小蓉, 贾漫珂, 周薇, 黄应平 (1798)
石墨烯基磁性复合材料吸附水中亚甲基蓝的研究	常青, 江国栋, 胡梦璇, 黄佳, 唐和清 (1804)
电化学氧化 PFOA 阳极材料筛选及其机制研究	卓琼芳, 邓述波, 许振成, 余刚 (1810)
典型抗生素在中国西南地区某污水处理厂中的行为和归趋	甘秀梅, 严清, 高旭, 张怡昕, 訾成方, 彭绪亚, 郭劲松 (1817)
颗粒状大孔阴树脂去除有机物以及缓解膜污染的效果与机制	何欢, 董秉直, 许光红, 闫昭辉 (1824)
石墨-活性炭纤维复合电极电吸附处理含盐废水的研究	周贵忠, 王兆丰, 王珣, 李文倩, 李少香 (1832)
酞基甲基化聚苯乙烯的制备及废水生化处理应用	张华雨, 许晴, 牛春梅, 王亚君, 侯正浩, 李绍英, 陈延明, 廉静, 吴士彬, 郭建博 (1838)
FePMo ₁₂ 催化电化学反应降解染料废水的研究	王栗, 岳琳, 郭建博, 杨景亮, 廉静, 罗晓, 王开红 (1843)
实际污水培养好氧颗粒污泥及其特性研究	杨淑芳, 张健君, 邹高龙, 杜至力 (1850)
SFBR 中好氧颗粒污泥的培养及特性研究	龙焙, 杨昌柱, 濮文虹, 杨家宽, 白俊, 王晶, 周玄月, 蒋国盛, 李春阳, 刘福标 (1857)
不同好/厌氧区容积负荷对生物膜/颗粒污泥耦合工艺脱氮除磷的影响	尹航, 刘畅, 高辉, 高大文 (1866)
黄原酸化废弃污泥吸附 Cu ²⁺ 研究	岑艳, 全向春, 姜晓满 (1871)
轮叶黑藻和穗花狐尾藻对铜的吸收机制研究	薛培英, 李国新, 赵全利 (1878)
不同烧制温度下玉米秸秆生物炭的性质及对苯的吸附性能	黄华, 王雅雄, 唐景春, 朱文英 (1884)
北京常见绿化树种叶片富集重金属能力研究	李少宁, 孔令伟, 鲁绍伟, 陈波, 高琛, 石媛 (1891)
泰州市区重金属污染的薛袋法与路生法评价研究	陈勤, 方炎明, 颜赞, 陈步金 (1901)
放牧对呼伦贝尔草甸草原土壤呼吸温度敏感性的影响	王旭, 闫瑞瑞, 邓钰, 闫玉春, 辛晓平 (1909)
苹果园土壤呼吸的变化及生物和非生物因素的影响	王蕊, 郭胜利, 刘庆芳, 张彦军, 姜继超, 郭慧敏, 李如剑 (1915)
重庆铁山坪森林土壤汞释放通量的影响因子研究	王琼, 罗遥, 杜宝玉, 叶芝祥, 段雷 (1922)
上海市郊区养殖场周边环境砷含量特征	奚功芳, 周守标, 丁海城, 姚春霞, 孔娟娟 (1928)
不同施氮量下水稻分蘖期光合碳向土壤碳库的输入及其分配的量化研究: ¹³ C 连续标记法	谭立敏, 吴昊, 李卉, 周萍, 李科林, 王久荣, 葛体达, 袁红朝, 吴金水 (1933)
污灌区盐分累积对土壤汞吸附行为影响的模拟研究	郑顺安, 李晓华, 徐志宇 (1939)
石灰干化污泥稳定后土壤中 Pb、Cd 和 Zn 浸出行为的研究	李翔, 宋云, 刘永兵 (1946)
大连市海产品中短链氯化石蜡的含量与分布研究	虞俊超, 王宝盛, 王亚韩, 孟梅, 陈茹, 江桂斌 (1955)
应用生物配体模型(BLM)研究辽河与太湖水体中铜对大型溞的急性毒性	周腾耀, 曹莹, 覃璐玫, 张亚辉, 曾鸿鸣, 闫振广, 刘征涛 (1962)
氧化铜纳米颗粒对水稻幼苗根系代谢毒性的研究	王淑玲, 张玉喜, 刘汉柱, 辛华 (1968)
吐温 80 对苏云金芽孢杆菌降解三苯基锡的促进机制	黄捷, 叶锦韶, 尹华, 彭辉, 马嘉雯, 唐立椿, 王惜若 (1974)
牛粪混合液微生物燃料电池长期运行稳定性研究	焦燕, 张国栋, 赵庆良 (1981)
针铁矿对城市生活垃圾有机组分厌氧发酵的影响	杨露露, 岳正波, 陈天虎, 王进 (1988)
城市生活垃圾集装箱转运过程中污染物产生状况研究	王晓媛, 刘殷华, 汪飞, 黄长缨, 陆峰, 谢冰 (1994)
铈插层黏土负载铁催化剂在 H ₂ S 选择性催化氧化过程中催化性能的研究	孙超, 张鑫, 郝郑平, 窦广玉, 孙春宝 (2002)
脱硫酸类水滑石衍生复合氧化物不同方法的制备与表征	祝春蕾, 王海林, 孙春宝 (2010)
固定污染源排气中 PM _{2.5} 采样方法综述	蒋靖坤, 邓建国, 李振, 李兴华, 段雷, 郝吉明 (2018)
产甲烷微生物研究概况	李煜珊, 李耀明, 欧阳志云 (2025)
《环境科学》征稿简则(1961) 《环境科学》征订启事(1967) 信息(1643, 1687, 1803, 1837)	

秸秆烟尘和灰烬中元素碳的稳定同位素组成

刘刚¹, 李久海¹, 徐慧¹, 吴丹¹, 刘艳²

(1. 南京信息工程大学环境科学与工程学院, 南京 210044; 2. 中国科学院地质与地球物理研究所兰州油气资源研究中心, 兰州 730000)

摘要: 选取稻草、麦草和玉米秸秆各 6 个品种, 进行室内模拟焚烧试验, 用同位素质谱计测定了灰烬和烟尘中元素碳 (EC) 的同位素比值。结果表明, 稻草明火和闷烧烟尘中 EC 的 $\delta^{13}\text{C}$ 平均值分别是 -28.3‰ 、 -28.7‰ , 比稻草总碳分别轻 2.7‰ 、 3.0‰ 。麦草明火和闷烧烟尘中 EC 的 $\delta^{13}\text{C}$ 平均值分别为 -28.5‰ 、 -28.0‰ , 比麦草总碳分别轻 0.1‰ 、重 0.4‰ 。玉米秸秆明火和闷烧烟尘中 EC 的 $\delta^{13}\text{C}$ 平均值分别为 -17.2‰ 、 -13.6‰ , 比秸秆总碳分别轻 3.4‰ 、重 0.2‰ 。在稻草明火和闷烧灰烬中, EC 的 $\delta^{13}\text{C}$ 平均值分别是 -27.5‰ 、 -27.3‰ , 比稻草总碳分别轻 1.8‰ 、 1.6‰ 。在麦草的明火和闷烧灰烬中, EC 的 $\delta^{13}\text{C}$ 平均值分别为 -27.4‰ 和 -26.0‰ , 比麦草总碳分别重 0.9‰ 和 2.4‰ 。在玉米秸秆的明火和闷烧灰烬中, EC 的 $\delta^{13}\text{C}$ 平均值分别为 -15.0‰ 和 -14.8‰ , 比玉米秆总碳分别轻 1.2‰ 和 1.0‰ 。3 类秸秆, 尤其是稻草和玉米秸秆, 其烟尘和灰烬中的 EC 均发生了明显的同位素分馏。其同位素组成对于识别和估算大气气溶胶中此类秸秆燃烧来源的 EC 有参考意义。

关键词: 秸秆; 烟尘; 灰烬; 元素碳; 同位素

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)05-1680-08 DOI: 10.13227/j.hjx.2014.05.007

Isotope Compositions of Elemental Carbon in the Smoke and Ash from Crop Straw Combustion

LIU Gang¹, LI Jiu-hai¹, XU Hui¹, WU Dan¹, LIU Yan²

(1. School of Environmental Science and Engineering, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 2. Lanzhou Center for Oil and Gas Resources, Institute of Geology and Geophysics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China)

Abstract: Six genotypes of straws for rice, maize and wheat, respectively, were combusted under flaming and smoldering conditions, and the isotope compositions for elemental carbon (EC) in the straw smoke and ash were investigated with an isotopic mass spectrometer. The results showed that the mean $\delta^{13}\text{C}$ values for EC in the flaming and smoldering smoke of rice straw were -28.3‰ and -28.7‰ , with depletions of 2.7‰ and 3.0‰ relative to that of total carbon (TC) in the straw, respectively. The mean $\delta^{13}\text{C}$ values for EC in the flaming and smoldering smoke of wheat straw were -28.5‰ and -28.0‰ , with a depletion of 0.1‰ and enrichment of 0.4‰ comparing to TC in the straw, respectively. The average values in two types of maize straw smoke were -17.2‰ and -13.6‰ , with a depletion of 3.4‰ and an enrichment of 0.2‰ relative to TC in the straw, respectively. The mean $\delta^{13}\text{C}$ ratios for EC in the flaming and smoldering ash of rice straw were -27.5‰ and -27.3‰ , with depletions of 1.8‰ and 1.6‰ comparing with TC in the straw, respectively. In the flaming and smoldering ash of wheat straw, the mean ratios were -27.4‰ and -26.0‰ , with enrichments of 0.9‰ and 2.4‰ relative to TC in the straw, respectively. In the two types of ash for maize straw, the average $\delta^{13}\text{C}$ values for EC were -15.0‰ and -14.8‰ , which were 1.2‰ and 1.0‰ lighter than those of the straw TC. In general, evident isotope fractionations occur between EC in both smoke and ash and TC in the corresponding straws, especially for rice and maize straws. The isotopic ratios may be useful in identifying and estimating the contribution of EC from straw combustion to ambient aerosol.

Key words: crop straw; smoke; ash; elemental carbon; isotope

元素碳 (EC) 是大气 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要成分之一。 $\text{PM}_{2.5}$ 中 EC 的质量分数在 4% 以上^[1~4]。黑碳 (BC) 气溶胶通过吸收阳光、影响云的形成等途径对气候产生负面影响。BC 是继 CO_2 之后引起全球气候变暖的第二种物质^[5~7]。大气中的 EC 主要来源于煤、石油等化石燃料, 以及生物质的燃烧过程。2000 年全球排放到大气中的 BC 多达 7 500 Gg^[5]。作物秸秆露天焚烧现象在全球范围内普遍存在, 尤其在发展中国家^[8~12]。中国每年有上亿吨的秸秆被露天焚

烧, 其中玉米、小麦、水稻等作物秸秆所占比例最大。2000 年中国因秸秆露天焚烧而排放的 BC 占大气中 BC 总排放量的 6.9% ~ 11.2%^[13]。由此可见, 秸秆焚烧是大气中 BC 或 EC 的重要来源。目前, 主要根据 $\text{PM}_{2.5}$ 中 OC、EC 的含量比值等方法来识别 EC 的来源^[1,3,14,15]。由于大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中含碳物质的

收稿日期: 2013-09-04; 修订日期: 2013-10-17

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41073019)

作者简介: 刘刚 (1965 ~), 男, 教授, 主要研究方向为大气污染化学, E-mail: liugang650104@sina.com

来源复杂多样, OC/EC 比值的大小与燃料种类和燃烧条件等因素有关, 有机物又要经历大气光化学反应, 这就使得此方法的应有具有一定的局限性^[16,17]. EC 化学性质稳定, 并且在自然环境中不易发生同位素分馏, 故经常用其同位素组成来识别古环境的植被类型. 虽然稳定碳同位素比值法在探讨大气中 EC 的来源方面已经得到了一定的应用^[18~23], 但是对于生物质烟尘和灰烬中 EC 的同位素组成所开展的研究却比较少见. 早期仅研究了烟尘中有机碳和灰烬中总碳的同位素组成^[24~26], 近年来又对烟尘中总碳的同位素组成进行了探讨^[27]. Bird 等^[28] 仅对植物材料在热解条件下生成的 EC 开展过同位素组研究. 这无疑限制了稳定碳同位素技术在识别 EC 来源方面的应用. 秸秆烟尘中的 EC 可随烟尘直接排放到大气中, 其灰烬中的 EC 也可以扬尘的形式进入空气. 对水稻、玉米、小麦等作物秸秆烟尘和灰烬中的 EC 开展同位素组成研究, 对以碳同位素技术识别大气中此三类秸秆燃烧来源的 EC 具有参考意义.

1 材料与方法

1.1 秸秆采集与制备

2010~2012 年, 共采集稻草、玉米秸秆和麦草各 6 个品种. 稻草分别采自浙江(内 2 优 6、扬两优 6)、安徽(Ⅱ优 279、宁粳 1)和江苏(红粮 166、Ⅱ优 728). 玉米秸秆分别采自江苏(东单 60、中甜 9、中科 11)、河南(掖单 4、豫丰 3358)和陕西(中单 2). 麦草采自江苏(扬麦 10、扬麦 16、烟农 10)和河南(矮抗 58、温六、西农 979).

在制备测定总碳同位素用的样品时, 取适量完整的秸秆, 用剪刀剪至小段, 用清水洗去表面的泥土. 将洁净的碎样在 50℃ 烘烤 12h, 用植物粉碎机粉碎至 60 目, 装入具塞三角烧瓶保存. 对于焚烧用的秸秆, 在室内自然风干, 临烧前拣去杂物, 抖去灰尘.

1.2 焚烧试验

模拟秸秆的两种田间焚烧方式, 即明火燃烧和闷烧, 进行室内燃烧试验. 在模拟明火燃烧时, 取已制备的秸秆 0.5~1.5 kg, 自然堆放在一铁盘中点燃. 闷烧时取秸秆 0.2~0.3 kg, 点燃使之发烟但不产生明火. 用一台小流量大气颗粒物采样器(Andersen, AH-200 型)采集排放到室内的烟尘. 采样期间保持门窗关闭. 所用玻璃纤维滤膜在使用前于 500℃ 灼烧 2 h. 烟尘样品用铝箔(在 500℃ 灼烧 2 h)包裹, 冷冻保存. 待秸秆燃烧完毕后, 随机采集灰

烬 20 g, 常温下保存.

1.3 样品净化

为了去除有机碳(OC), 对采集的灰烬和烟尘进行净化处理. 用两阶段加热法除去样品中的 OC. 称取 100 mg 灰烬或取 1 张已采样的滤膜, 以灼烧过的铝箔包裹灰烬, 用石英舟将其载入玻璃净化系统. 在高纯氮(纯度 $\geq 99.99\%$) 环境下于 550℃ 恒温加热 10 min 使 OC 气化. 然后把加热炉温度升至 840℃, 在氦气中恒温 10 min, 以除去焦化的 OC. 净化完毕的样品用铝箔包裹保存.

1.4 碳同位素测定

将制备系统的氧化炉温度升至 400℃, 对氧化系统抽真空 2 min, 通入高纯氧(含量 $\geq 99.99\%$). 取 2 mg 已粉碎的秸秆、已净化处理的灰烬或烟尘样品, 用石英舟载入填充了氧化铜的石英燃烧管中. 待氧化炉温度升至 800℃ 后, 将样品移入氧化炉恒温氧化 10 min. 用液态氮和酒精-液态氮冷阱收集、净化二氧化碳, 及时将其导入质谱计(Finnigan MAT-252 型)测定稳定碳同位素比值. 每个 CO_2 样品连续自动测定 4 次, 仪器的分析标准偏差小于 0.3‰.

2 结果与分析

2.1 烟尘中元素碳的同位素组成

2.1.1 稻草烟尘中元素碳的同位素

在 6 种稻草明火燃烧排放的烟尘中, EC 的同位素组成($\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$) 不尽相同(表 1). 其分布范围为 $-27.5\text{‰} \sim -29.5\text{‰}$, 平均值为 -28.3‰ . 红粮 166 的 EC 最富集 ^{13}C , 扬两优 6 的 EC 最亏损 ^{13}C . 二者的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值之差达 2 ‰. 稻草明火烟尘中 EC 的同位素组成普遍比对应的秸秆轻, 而且不同品种间的差别较大. 从内 2 优 6 到Ⅱ优 728, 两者之差(Δ)有明显缩小的趋势(图 1). 该 Δ 值的变化区间是 $-0.5\text{‰} \sim -5.2\text{‰}$, 平均值为 -2.7‰ .

各品种稻草闷烧烟尘的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值比较接近, 其变化区间是 $-27.6\text{‰} \sim -29.4\text{‰}$, 平均值为 -28.6‰ . 闷烧烟尘中 EC 的同位素组成也轻于对应的稻草总碳. 从内 2 优 6 到Ⅱ优 728, 不同品种之间的差异逐渐缩小(图 1). Δ 值在 $-1.1\text{‰} \sim -5.4\text{‰}$ 之间变化, 其平均值为 -3.0‰ . 在同种稻草的明火烟尘和闷烧烟尘之间, EC 的同位素组成存在一定差异. 扬两优 6 的闷烧烟尘中的 EC 比明火烟尘重 0.4‰. 其他 5 种稻草的闷烧烟尘内的 EC 均比明火烟尘轻 0.1‰~1.2‰, 平均亏损 0.4‰.

表 1 秸秆总碳、烟尘和灰烬元素碳的同位素组成¹⁾(PDB)/‰

Table 1 Isotopic composition of TC in straws and EC in straw smoke and ash (PDB)/‰											
作物	品种	产地	秸秆	明火烟尘	闷烧烟尘	明火灰烬	闷烧灰烬	Δ_1	Δ_2	Δ_3	Δ_4
水稻	红粮 166	江苏	-25.8	-27.5	-27.6	-27.4	-27.2	-1.7	-1.8	-1.6	-1.4
水稻	Ⅱ优 728	江苏	-27.5	-28.0	-28.6	-26.6	-27.6	-0.5	-1.1	0.9	-0.1
水稻	Ⅱ优 279	安徽	-24.3	-28.2	-29.4	-26.8	-27.2	-3.9	-5.1	-2.5	-2.9
水稻	宁粳 1	安徽	-26.3	-27.7	-27.9	-27.0	-25.9	-1.4	-1.6	-0.7	0.4
水稻	内 2 优 6	浙江	-23.9	-29.1	-29.3	-29.6	-28.6	-5.2	-5.4	-5.7	-4.7
水稻	扬两优 6	浙江	-26.3	-29.5	-29.1	-27.3	-27.1	-3.2	-2.8	-1.0	-0.8
小麦	扬麦 10	江苏	-30.2	-29.9	-29.4	-29.7	-29.2	0.3	0.8	0.5	1.0
小麦	扬麦 16	江苏	-29.3	-28.8	-28.5	-27.3	-27.5	0.5	0.8	2.0	1.8
小麦	烟农 10	江苏	-26.2		-25.4	-26.0	-22.5		0.8	0.2	3.7
小麦	矮抗 58	河南	-28.1	-28.3	-28.1	-27.6	-26.8	-0.2	0.0	0.5	1.3
小麦	温六	河南	-27.8	-26.9	-28.2	-26.5	-24.1	0.9	-0.4	1.3	3.7
小麦	西农 979	河南	-28.6	-28.8	-28.4	-27.5	-25.9	-0.2	0.2	1.1	2.7
玉米	中科 11	江苏	-13.1	-22.2	-13.5	-14.4	-13.6	-9.1	-0.4	-1.3	-0.5
玉米	东单 60	江苏	-14.0	-17.5	-13.0	-14.6	-14.3	-3.5	1.0	-0.6	-0.3
玉米	中甜 9	江苏	-16.8	-15.6		-15.4	-15.3	1.2		1.4	1.5
玉米	豫丰 3358	河南	-12.8	-15.8	-13.9	-14.8	-14.3	-3.0	-1.1	-2.0	-1.5
玉米	掖单 4	河南	-13.6	-15.0	-13.9	-15.4	-12.3	-1.4	-0.3	-1.8	1.3
玉米	中单 2	陕西	-12.2			-15.6	-18.9			-3.4	-6.7

1) Δ_1 、 Δ_2 、 Δ_3 、 Δ_4 分别是明火烟尘、闷烧烟尘、明火灰烬和闷烧灰烬中元素碳与对应秸秆中总碳的同位素比值之差

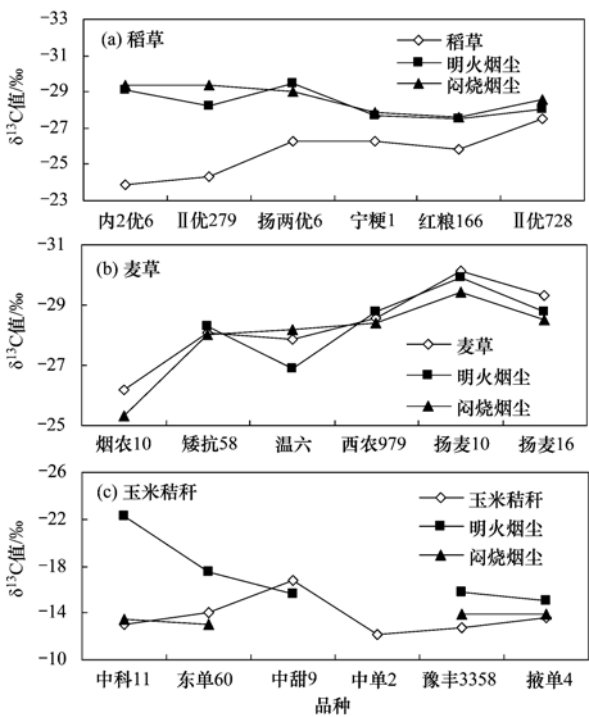


图 1 秸秆烟尘中 EC 的同位素比值变化趋势

Fig. 1 Variability of isotope ratios for EC in straw smoke

2.1.2 麦草烟尘中元素碳的同位素

5 种麦草明火烟尘中 EC 的同位素组成存在一定差异. 其 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值分布于 -26.9‰ ~ -29.9‰ 之间, 平均为 -28.5‰ . EC 与对应麦草总碳的 Δ 值为 -0.2‰ ~ 0.9‰ . 扬麦 10、扬麦 16、温六等 3 个品种的 EC 比麦草碳同位素组成重, 但矮抗 58 和西农

979 的 EC 比麦草略微偏轻(图 1).

麦草闷烧烟尘的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值分布于 -25.4‰ ~ -29.4‰ 之间, 其平均值为 -28.0‰ . 与麦草相比, 只有温六的 EC 同位素组成比之轻 0.4‰ , 其他 5 种麦草闷烧烟尘的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值均大于或等于麦秸的值. 其 Δ 值为 0.0‰ ~ 0.8‰ , 平均为 0.5‰ . 在同种麦草的明火烟尘和闷烧烟尘之间, 除了温六闷烧烟尘的 EC 同位素组成比明火轻 1.3‰ 之外, 矮抗 58、西农 979、扬麦 10、扬麦 16 等品种的闷烧 EC 同位素组成均比明火重(图 1). 其 Δ 值为 0.3‰ ~ 0.5‰ .

2.1.3 玉米秸秆烟尘中元素碳的同位素

在 5 种玉米秸秆的明火烟尘中 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值变化幅度较大. 其分布区间为 -15.0‰ ~ -22.2‰ , 平均值为 -17.2‰ . 与秸秆总碳同位素组成相比, 中甜 9 的明火 EC 相对重 1.2‰ , 而中科 11、东单 60、豫丰 3358 和掖单 4 等品种的明火 EC 则偏轻. 后 4 种秸秆烟尘 EC 与相应秸秆总碳同位素比值之间的差异有依次缩小的趋势(图 1). 其 Δ 值变化区间是 -1.4‰ ~ -9.1‰ , 平均值为 -4.2‰ . 值得注意的是, 中科 11 明火 EC 的 Δ 值明显比其他 3 个差值大, 其原因有待进一步研究.

玉米秸秆闷烧烟尘的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值分布于 -13.0‰ ~ -13.9‰ 之间, 平均为 -13.6‰ . 与秸秆总碳的同位素组成相比, 东单 60 的闷烧 EC 重 1.0‰ , 其余 3 种秸秆的闷烧 EC 轻 -0.3‰ ~ -1.1‰ . 后三者的 Δ 平均值为 -0.6‰ . 对同一种玉米秸秆而言, 闷

烧烟尘中的 EC 均比明火烟尘的 EC 显著富集 ^{13}C 。依中科 11、东单 60、豫丰 3358、掖单 4 等品种的次序,这种差异逐渐缩小(图 1)。该 Δ 值的变化区间是 $1.1\text{‰} \sim 8.8\text{‰}$,平均值为 4.0‰ 。

2.2 灰烬中元素碳的同位素组成

2.2.1 稻草灰烬中元素碳的同位素

在稻草明火燃烧产生的灰烬中, $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值分布于 $-26.6\text{‰} \sim -29.6\text{‰}$ 之间,其平均值为 -27.5‰ 。6 个品种中仅有 II 优 728 的 EC 同位素组成比相应稻草的总碳重 0.9‰ ,其他 5 种的灰烬 EC 均比秸秆亏损 ^{13}C 。其 Δ 值的变化范围为 $-0.7\text{‰} \sim -5.7\text{‰}$,平均值为 -2.3‰ 。

在稻草的闷烧灰烬中,EC 的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值为 $-25.9\text{‰} \sim -28.6\text{‰}$,平均值为 -27.3‰ 。在 6 个品种的灰烬中,只有宁梗 1 的 EC 同位素组成比稻草重 0.4‰ ,其他 5 种的 EC 均比稻草轻。其 Δ 值分布于 $-0.1\text{‰} \sim -4.7\text{‰}$ 之间,平均值为 -2.0‰ 。在明火灰烬和闷烧灰烬中,EC 的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值变化趋势基本一致(图 2)。II 优 279 和 II 优 728 的闷烧灰烬 EC 比明火灰烬分别轻 0.4‰ 和 1.0‰ ,其他 4 种的闷烧灰烬 EC 比明火灰烬重 $0.2\text{‰} \sim 1.1\text{‰}$ 。后四者的 Δ 平均值为 0.6‰ 。

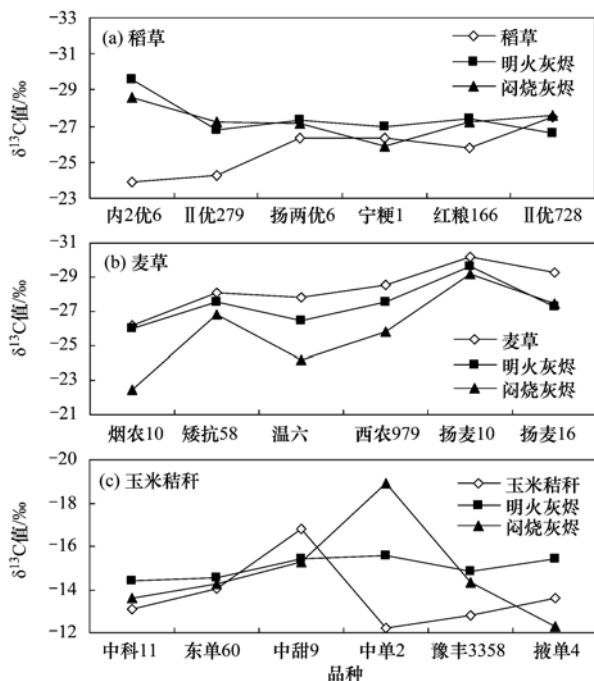


图2 秸秆灰烬中 EC 同位素比值的变化趋势

Fig. 2 Variability of isotope ratios for EC in straw ash

2.2.2 麦草灰烬中元素碳的同位素

麦草明火灰烬中 EC 的碳同位素比值为 $-26.0\text{‰} \sim -29.7\text{‰}$,平均值是 -27.4‰ 。不同品

种间 EC 同位素的变化趋势与麦草总碳的完全一致(图 2)。该图显示,每种麦草的明火灰烬 EC 均比对应的秸秆总碳富集 ^{13}C 。二者的 Δ 值处于 $0.2\text{‰} \sim 2.0\text{‰}$ 之间,其平均值为 0.9‰ 。

在麦秸的闷烧灰烬中, $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值的变化趋势与麦草总碳和明火灰烬 EC 的类似,但变化幅度比明火灰烬的大(图 2)。其分布范围是 $-22.5\text{‰} \sim -29.2\text{‰}$,平均值为 -26.0‰ 。每种麦草的闷烧灰烬 EC 均比麦草富集 ^{13}C 。其 Δ 值在 $0.9\text{‰} \sim 3.7\text{‰}$ 间变化, Δ 平均为 2.4‰ 。此外,除了扬麦 16 的两种灰烬的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值基本相同之外,其他 5 种麦草的闷烧灰烬 EC 的同位素组成均比对应明火灰烬的重。其 Δ 的分布范围是 $0.5\text{‰} \sim 3.6\text{‰}$,平均值为 1.8‰ 。

2.2.3 玉米秸秆灰烬中元素碳的同位素

在玉米秸秆明火燃烧生成的灰烬中, $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值的变化幅度较小(图 2)。其分布范围是 $-14.4\text{‰} \sim -15.6\text{‰}$,平均值为 -15.0‰ 。明火灰烬的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值变化趋势与秸秆总碳有一定的差异。与玉米秸秆相比,中甜 9 的明火灰烬 EC 的碳同位素组成偏重,两者的 Δ 值为 1.4‰ ,而其他 5 个品种的偏轻。后 5 个品种明火灰烬的 Δ 值变化范围是 $-0.5\text{‰} \sim -3.4\text{‰}$,平均值为 -1.8‰ 。

在玉米秸秆的闷烧灰烬中, $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 值的变化幅度比明火灰烬大。其变化区间为 $-12.3\text{‰} \sim -18.9\text{‰}$,平均值为 -14.8‰ 。闷烧灰烬中 EC 同位素比值的变化趋势与秸秆不完全一致。中甜 9 和掖单 4 的闷烧灰烬 EC 分别比相应秸秆重 1.5‰ 和 1.3‰ 。其余 4 种比秸秆轻 $0.2\text{‰} \sim 6.7\text{‰}$,其 Δ 平均值为 -2.2‰ 。与明火灰烬中的 EC 相比,中单 2 的闷烧灰烬 EC 相对轻 3.3‰ ,其余 5 种相对重 $0.1\text{‰} \sim 3.1\text{‰}$ 。后五者的 Δ 平均值为 1.0‰ 。

概括而言,稻草烟尘和灰烬的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 平均值分别为 $-28.3\text{‰} \sim -28.7\text{‰}$ 、 $-27.3\text{‰} \sim -27.5\text{‰}$,分别比稻草总碳同位素平均组成轻 $2.7\text{‰} \sim 3.0\text{‰}$ 、 $1.6\text{‰} \sim 1.8\text{‰}$ 。麦草烟尘和灰烬的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 平均值分别为 $-28.0\text{‰} \sim -28.5\text{‰}$ 、 $-26.0\text{‰} \sim -27.4\text{‰}$,与麦草总碳同位素平均比值之差分别达到 $-0.2\text{‰} \sim 0.4\text{‰}$ 、 $0.9\text{‰} \sim 2.4\text{‰}$ 。玉米秸秆烟尘和灰烬的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{EC}}$ 平均值分别为 $-13.6\text{‰} \sim -17.2\text{‰}$ 、 $-14.8\text{‰} \sim -15.0\text{‰}$,与秸秆总碳同位素平均比值分别相差 $-3.5\text{‰} \sim 0.2\text{‰}$ 、 $-1.0\text{‰} \sim -1.3\text{‰}$ 。总之,稻草烟尘中 EC 的 ^{13}C 亏损最严重,而麦草烟尘中的 EC 仅发生了轻微的亏损或富集。玉米秸秆烟尘中 EC 的同位素分馏程度与稻草烟尘类似。对于灰

烬中的 EC 而言,稻草和玉米秸秆的亏损程度比烟尘有所下降,而麦草的富集程度却有所提高。

3 讨论

3.1 EC 同位素分馏原因初探

作物秸秆主要由纤维素、半纤维素和木质素组成。稻草中这 3 种组分的含量分别为 30%、25%、12%^[29]。麦秸中此 3 种组分的含量分别高达 36%、31% 和 20%^[30]。玉米秆及其叶片中纤维素/半纤维素和木质素形式的碳分别占总碳的 60.9% ~ 69.1%、14.2% ~ 17%^[31]。生物质的燃烧过程一般可分为干燥气化、有焰燃烧和无焰燃烧等 3 个阶段。在第一阶段,生物质中的游离态水分发生汽化,纤维素、半纤维素和木质素等发生热解,并转变为气态物质。在第二阶段,由热解产生的气态物质被燃烧氧化。在第三阶段,炭化物发生无焰燃烧。实际上,灰烬炭和烟尘炭的形成过程并不相同。灰烬炭是纤维素等物质发生脱水、脱羰基、脱羧基等化学变化之后形成的。烟尘炭是凝结的挥发分及其裂解产物焦化的结果^[29]。生物质燃烧过程中发生的热解反应是上述 3 种主要组分共同参与的结果^[32]。前述秸秆的明火燃烧过程包括了全部 3 个燃烧阶段,但闷烧过程则没有发生有焰燃烧。

从前述测定结果可知,3 种秸秆明火烟尘中元素碳的同位素组成总体上比闷烧烟尘的轻;明火灰烬和闷烧灰烬中元素碳的同位素组成也是如此。对于同一品种的秸秆,无论是明火燃烧还是闷烧,其所产生烟尘中 EC 的同位素组成总体上都比灰烬的轻。两类烟尘中 EC 的同位素组成均轻于两类灰烬。这种趋势对于麦草和稻草尤为明显(图 3)。在生物质燃烧排放的烟尘中,左旋葡聚糖的碳同位素组成比燃料中的综纤维素母体轻 1.9‰^[33]。说明在纤维素发生热解生成挥发份的过程中发生了显著的同位素分馏。其中¹²C 倾向于在挥发份中富集,而¹³C 倾向于保留在母体中。据此认为,上述 3 类秸秆的烟尘和灰烬中 EC 在同位素组成上的趋势性差别,也是秸秆在燃烧过程中主要组分在热解、炭化的同时,也发生了碳同位素分馏的结果。由于在生成烟尘炭和灰烬炭的前驱物之间已经发生了碳同位素分馏,这导致了同种秸秆在同样燃烧条件下生成的烟尘 EC 比灰烬 EC 在同位素组成上偏轻。燃烧温度上的差别是造成同种秸秆在不同燃烧条件下所形成的烟尘 EC 之间、灰烬 EC 之间,存在上述同位素组成差异的主要原因。明火燃烧的温度较高,更有利于生物质发生热解和碳同位素分

馏。闷烧的温度较低,更有利于生物质炭化,但不利于碳同位素分馏作用的发生。生物质燃烧过程中发生了一系列复杂的化学反应,其中有些燃烧化学问题有待进一步研究。因此,有关 EC 的同位素分馏机制也需要更深入地探讨。

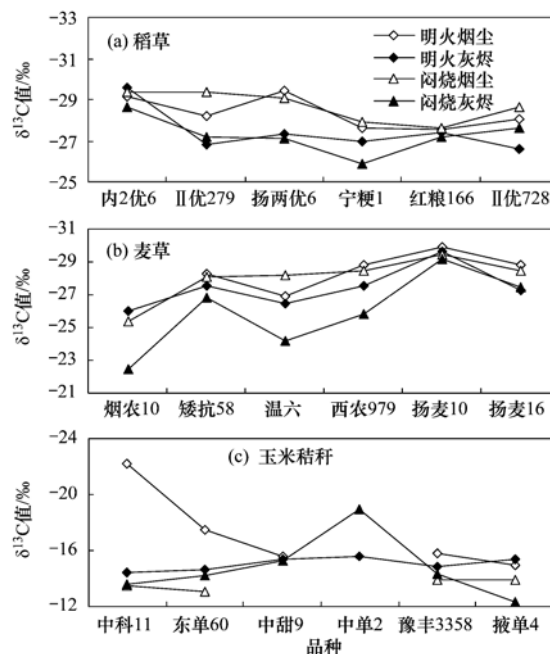


图 3 秸秆烟尘和灰烬中 EC 同位素组成对比

Fig. 3 Comparison of isotope ratios for EC in straw smoke and ash

3.2 碳同位素组成差异分析与对比

秸秆烟尘和灰烬中 EC 同位素比值的变化趋势(图 1、图 2)说明,EC 虽然在很大程度上继承了秸秆中总碳的同位素组成特点,但也发生了明显的同位素分馏。麦草和稻草同属于 C₃ 植物,但与各自的总碳同位素组成相比,其烟尘和灰烬中 EC 的同位素分馏趋势却截然相反。稻草烟尘和灰烬中的 EC 总体上均趋向于严重亏损¹³C,而麦草相应的 EC 却趋向于轻微富集¹³C(表 1)。玉米秸秆属于 C₄ 植物,其 δ¹³C_{EC} 值的变化趋势与稻草类似。这说明秸秆成分对 EC 的同位素组成能够产生显著的影响。

竹子(C₃)和甘蔗(C₄)等植物经热解产生的 EC,其同位素组成比植物总碳轻 0 ~ 1.6‰^[28]。与之相比,上述稻草和玉米秆燃烧生成的 EC 比原植物更加亏损¹³C,而麦草源 EC 的同位素分馏方向却恰恰相反。对桉树等 C₃、C₄ 植物叶片的研究结果表明,C₃ 植物灰烬中总碳(近似当作 EC)的同位素比值比叶片总碳的大,而 C₄ 植物灰烬中的总碳比叶片总体上要轻^[25]。C₄ 草本植物灰烬总碳有的比原植物总碳轻(0.1‰ ~ 3.5‰),有的却比之重

($<1‰$),而 C_3 草本植物的灰烬总碳却没有发生明显的同位素分馏^[26]. 这均与上述研究结果不完全一致. 表明不同种类生物质燃烧产生的 EC,其同位素组成很可能存在一定的差异. 这与光合作用途径是否相同没有直接的关系.

杭州市区汽油机动车(小轿车)和柴油机动车(大巴)烟灰的 $\delta^{13}C_{EC}$ 平均值分别为 $-25.8‰$ 和 $-26.5‰$. 日本秋田市的对应值均是 $-24.4‰$ (表 2). 玉米秸秆烟尘的 $\delta^{13}C_{EC}$ 平均值与之相差 $8.8‰ \sim$

$10.9‰$,稻草和麦草烟尘的 $\delta^{13}C_{EC}$ 平均值与之相差约 $-2.0‰ \sim -4.1‰$. 显然,两类来源的 EC 的同位素组成相差较大. 煤中 EC、煤及煤烟灰中总碳的 $\delta^{13}C$ 值均分布于 $-22‰ \sim -27‰$ 之间^[35~37]. 如果忽略煤烟中 EC 的同位素分馏,那么玉米、稻草/麦草等秸秆烟尘的 $\delta^{13}C_{EC}$ 平均值与之分别至少相差 $6.4‰$ 、 $-1.2‰$. 土壤与 3 类秸秆烟尘的 $\delta^{13}C_{EC}$ 值也相差悬殊. 总之,3 类秸秆烟尘中 EC 的同位素组成与其他几种来源存在明显的差别.

表 2 大气 $PM_{2.5}$ 及其污染源的碳同位素比值 (PDB)/‰

Table 2 $\delta^{13}C$ values for ambient $PM_{2.5}$ and relative pollutants (PDB)/‰

测定物	采样位置	采样时段	$\delta^{13}C$			文献
			平均值	最小值	最大值	
EC/稻草烟尘			-28.5	-29.5	-27.5	本研究
EC/麦草烟尘			-28.2	-29.9	-25.4	本研究
EC/玉米秸秆烟尘			-15.6	-22.2	-13.0	本研究
EC/汽油机动车烟灰	杭州市	2007 年	-25.8	-27.6	-23.5	[34]
EC/柴油机动车烟灰	杭州市	2007 年	-26.5	-27.2	-25.9	[34]
EC/汽油机动车烟灰	秋田市	2008~2010 年	-24.4			[21]
EC/柴油机动车烟灰	秋田市	2008~2010 年	-24.4			[21]
EC/煤	秋田市	2008~2010 年	-23.3			[21]
TC/煤烟灰	乌兰巴托	2008 年	-22.4			[22]
EC/土壤	秋田市	2008~2010 年	-18.8			[21]
EC/大气 $PM_{2.5}$	杭州市	2004~2005 年	-26.5	-30.5	-23.0	[19]
EC/大气 $PM_{2.5}$	秋田市	2008~2010 年	-24.3	-25.0	-23.4	[21]

在不同城市大气的 $PM_{2.5}$ 中,EC 的同位素组成存在一定的差异. 在我国的 14 座城市中, $\delta^{13}C_{EC}$ 的平均值为 $-26.6‰ \sim -23.3‰$ ^[20]. 杭州市和日本秋田市的 $\delta^{13}C_{EC}$ 平均值分别为 $-26.5‰$ 和 $-24.3‰$. 表明不同城市的 EC 在来源上存在差别. 对于同一座城市, $\delta^{13}C_{EC}$ 还随季节而变化^[19~21]. 说明不同污染源对大气 EC 的贡献也存在季节性差异. 显然,在秸秆烟尘和城市大气 $PM_{2.5}$ 之间,EC 的同位素组成也有一定的差别.

秸秆大规模露天焚烧通常发生在夏季和秋季. 麦秸在夏季焚烧,而玉米秆和稻草在秋季焚烧. 在此季节,只要测得被烧秸秆烟尘、煤烟灰、燃油机动车烟灰等污染物的 $\delta^{13}C_{EC}$ 值,以及受污染地区大气 $PM_{2.5}$ 的 $\delta^{13}C_{EC}$ 比值,就可利用稳定碳同位素组成来识别大气中 EC 的主要来源. 此外,还可利用同位素质量平衡方法估算秸秆燃烧对特定区域内大气 $PM_{2.5}$ 中 EC 的贡献^[38].

4 结论

(1)稻草、麦草和玉米秸秆燃烧生成的 EC 均发生了不同程度的同位素分馏. 稻草烟尘中 EC

的 ^{13}C 亏损最严重,而麦草烟尘 EC 仅发生了轻微的亏损或富集. 玉米秸秆烟尘中 EC 的分馏程度与稻草烟尘类似. 稻草闷烧烟尘中 EC 的同位素组成总体上略轻于明火烟尘,而麦草和玉米秸秆闷烧烟尘中 EC 的同位素组成却明显趋于比明火烟尘的重.

(2)稻草和玉米秸秆灰烬中 EC 的同位素组成总体上轻于相应秸秆的总碳,而麦草灰烬中 EC 的同位素组成比总碳重. 3 类秸秆闷烧灰烬中 EC 的同位素组成具有比明火灰烬偏重的趋势. 稻草和玉米秸秆灰烬中 EC 的 ^{13}C 亏损程度比烟尘有所下降,而麦草灰烬中 EC 的 ^{13}C 富集程度却有所提高.

(3)3 类秸秆烟尘中 EC 的同位素比值,对识别和估算秸秆焚烧季节大气中此类生物质燃烧来源的 EC 具有潜在的应用价值.

参考文献:

[1] Dan M, Zhuang G S, Li X X, *et al.* The characteristics of carbonaceous species and their sources in $PM_{2.5}$ in Beijing [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**(21): 3443-3452.

[2] Lonati G, Giugliano M, Butelli P, *et al.* Major chemical components of $PM_{2.5}$ in Milan (Italy) [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(10): 1925-1934.

[3] Giugliano M, Lonati G, Butelli P, *et al.* Fine particulate ($PM_{2.5}$ - PM_1) at urban sites with different traffic exposure [J].

- Atmospheric Environment, 2005, **39**(13): 2421-2431.
- [4] Vecchi R, Marcazzan G, Valli G, *et al.* The role of atmospheric dispersion in the seasonal variation of PM₁ and PM_{2.5} concentration and composition in the urban area of Milan (Italy) [J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(27): 4437-4446.
- [5] Bond T C, Doherty S J, Fahey D W, *et al.* Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2013, **118**(11): 5380-5552.
- [6] Ramanathan V, Carmichael G. Global and regional climate changes due to black carbon [J]. Nature Geoscience, 2008, **1**: 221-227.
- [7] Shindell D, Faluvegi G. Climate response to regional radiative forcing during the twentieth century [J]. Nature Geoscience, 2009, **2**: 294-300.
- [8] Sahai S, Sharma C, Singh D P, *et al.* A study for development of emission factors for trace gases and carbonaceous particulate species from in situ burning of wheat straw in agricultural fields in India [J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(39): 9173-9186.
- [9] Hammappala R D, Claiborn C, Jimenez J, *et al.* Emission factors of PAHs, methoxyphenols, levoglucosan, elemental carbon and organic carbon from simulated wheat and Kentucky bluegrass stubble burns [J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(12): 2660-2669.
- [10] Keshtkar H, Ashbaugh L L. Size distribution of polycyclic aromatic hydrocarbon particulate emission factors from agricultural burning [J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(13): 2729-2739.
- [11] Cheng M, Horng C, Su Y, *et al.* Particulate matter characteristics during agricultural waste burning in Taichung City, Taiwan [J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, **165**(1-3): 187-192.
- [12] Viana M, López J M, Querol X, *et al.* Tracers and impact of open burning of rice straw residues on PM in Eastern Spain [J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(8): 1941-1957.
- [13] 曹国良, 张小曳, 王亚强, 等. 中国区域农田秸秆露天焚烧排放量的估算[J]. 科学通报, 2007, **52**(15): 1826-1831.
- [14] 黄虹, 李顺诚, 曹军骥, 等. 广州市夏季室内外PM_{2.5}中有机碳、元素碳的分布特征[J]. 环境科学学报, 2005, **25**(9): 1242-1249.
- [15] Querol X, Alastuey A, Ruiz C R, *et al.* Speciation and origin of PM₁₀ and PM_{2.5} in selected European cities [J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(38): 6547-6555.
- [16] Schmidl C, Bauer H, Dattler A, *et al.* Chemical characterization of particle emissions from burning leaves [J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(40): 9070-9079.
- [17] Mazzoleni L R, Zielinska B, Moosmüller II. Emissions of levoglucosan, methoxy phenols, and organic acids from prescribed burns, laboratory combustion of wildland fuels, and residential wood combustion [J]. Environmental Science and Technology, 2007, **41**(7): 2115-2122.
- [18] Huang L, Brook J R, Zhang W, *et al.* Stable isotope measurements of carbon fractions (OC/EC) in airborne particulate; A new dimension for source characterization and apportionment [J]. Atmospheric Environment, 2006, **40**(15): 2690-2705.
- [19] Liu G, Zhang X, Teng W, *et al.* Isotopic composition of organic carbon and elemental carbon in PM_{2.5} in Hangzhou [J]. Chinese Science Bulletin, 2007, **52**(17): 2435-2437.
- [20] Cao J, Chow J C, Tao J, *et al.* Stable carbon isotopes in aerosols from Chinese cities; Influence of fossil fuels [J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**(6): 1359-1363.
- [21] Kawashima H, Haneishi Y. Effects of combustion emissions from the Eurasian continent in winter on seasonal $\delta^{13}\text{C}$ of elemental carbon in aerosols in Japan [J]. Atmospheric Environment, 2012, **46**: 568-579.
- [22] Nishikawa M, Matsui I, Batdorj D, *et al.* Chemical composition of urban airborne particulate matter in Ulaanbaatar [J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**(32): 5710-5715.
- [23] Ho K F, Lee S C, Cao J J, *et al.* Variability of organic and elemental carbon, water soluble organic carbon, and isotopes in Hong Kong [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2006, **6**(3): 4579-4600.
- [24] Cachier H, Buat-Ménard P, Fontugne M, *et al.* Source terms and source strengths of carbonaceous aerosol in the tropics [J]. Journal of Atmospheric Chemistry, 1985, **3**(4): 469-489.
- [25] Turekian V C, Macko S, Ballentine D, *et al.* Causes of bulk carbon and nitrogen isotopic fractionations in the products of vegetation burns: laboratory studies [J]. Chemical Geology, 1998, **152**(1-2): 181-192.
- [26] Das O, Wang Y, Hsieh Y. Chemical and carbon isotopic characteristics of ash and smoke derived from burning of C₃ and C₄ grasses [J]. Organic Geochemistry, 2010, **41**(3): 263-269.
- [27] Kundu S, Kawamura K, Andreae T W, *et al.* Diurnal variation in the water-soluble inorganic ions, organic carbon and isotopic compositions of total carbon and nitrogen in biomass burning aerosols from the LBA-SMOCC campaign in Rondônia, Brazil [J]. Journal of Aerosol Science, 2010, **41**(1): 118-133.
- [28] Bird M I, Darren R G. Determination of the abundance and carbon isotope composition of elemental carbon in sediments [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1997, **61**(16): 3413-3423.
- [29] Sullivan A L, Ball R. Thermal decomposition and combustion chemistry of cellulosic biomass [J]. Atmospheric Environment, 2012, **47**: 133-141.
- [30] 陈春梅, 谢祖彬, 朱建国, 等. CO₂ 浓度升高对小麦秸秆性质、数量及其分解的影响[J]. 中国生态农业学报, 2007, **15**(6): 1-5.
- [31] Dignac M F, Bahri H, Rumpel C, *et al.* Carbon-13 natural abundance as a tool to study the dynamics of lignin monomers in soil: an appraisal at the Closeaux experimental field (France) [J]. Geoderma, 2005, **128**(1-2): 3-17.
- [32] Güllü D, Demirbas A. Biomass to methanol via pyrolysis process

- [J]. *Energy Conversion and Management*, 2001, **42** (11): 1349-1356.
- [33] Sang X F, Gensch I, Laumer W, *et al.* Stable carbon isotope ratio analysis of anhydrosugars in biomass burning aerosol particles from source samples [J]. *Environmental Science and Technology*, 2012, **46**(6): 3312-3318.
- [34] 刘刚, 姚祁芳, 杨辉. 汽车尾气烟尘中有机碳和元素碳的稳定同位素组成 [J]. *环境与健康杂志*, 2008, **25** (9): 822-823.
- [35] Whiticar M J. Stable isotope geochemistry of coals, humic kerogens and related natural gases [J]. *International Journal of Coal Geology*, 1996, **32**(1-4): 191-215.
- [36] Bechtel A, Markic M, Sachsenhofer R F, *et al.* Paleoenvironment of the upper Oligocene Trbovlje coal seam (Slovenia) [J]. *International Journal of Coal Geology*, 2004, **57**(1): 23-48.
- [37] Rimmer S M, Rowe H D, Taulbee D N, *et al.* Influence of maceral content on $\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{15}\text{N}$ in a Middle Pennsylvanian coal [J]. *Chemical Geology*, 2006, **225**(1-2): 77-90.
- [38] López-Veneroni D. The stable carbon isotope composition of $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} in Mexico City Metropolitan Area air [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(29): 4491-4502.

《环境科学》再获“百种中国杰出学术期刊”称号

2013年9月27日,中国科技论文统计结果发布会在北京举行,会议公布了“百种中国杰出学术期刊”获奖名单。《环境科学》连续12次荣获“百种中国杰出学术期刊”称号。“百种中国杰出学术期刊”是根据中国科技学术期刊综合评价指标体系进行评定。该体系利用总被引频次、影响因子、基金论文比、他引总引比等多个文献计量学指标进行统计分析,对期刊分学科进行评比,其评价结果客观公正,为我国科技界公认,并具有广泛影响。

CONTENTS

Emission Factors and PM Chemical Composition Study of Biomass Burning in the Yangtze River Delta Region	TANG Xi-bin, HUANG Cheng, LOU Sheng-rong, <i>et al.</i> (1623)
Size Distributions and Source Apportionment of Soluble Ions in Aerosol in Nanjing	XUE Guo-qiang, ZHU Bin, WANG Hong-lei (1633)
Characteristics of Particulate Matters and Its Chemical Compositions During the Dust Episodes in Shanghai in Spring, 2011	LI Gui-ling, ZHOU Min, CHEN Chang-hong, <i>et al.</i> (1644)
Numerical Modeling Analysis of Secondary Organic Aerosol (SOA) Combined with the Ground-based Measurements in the Pearl River Delta Region	GUO Xiao-shuang, SITU Shu-ping, WANG Xue-mei, <i>et al.</i> (1654)
Observation of a Photochemical Event in Jiaying During Summer 2013	SHEN Li-juan, LI Li, LÜ Sheng, <i>et al.</i> (1662)
Spatial and Temporal Variations of Near Surface Atmospheric CO ₂ with Mobile Measurements in Fall and Spring in Xiamen, China	LI Yan-li, XING Zhen-yu, MU Chao, <i>et al.</i> (1671)
Isotope Compositions of Elemental Carbon in the Smoke and Ash from Crop Straw Combustion	LIU Gang, LI Jiu-hai, XU Hui, <i>et al.</i> (1680)
Development of a Chemical Ionization Time-of-Flight Mass Spectrometer for Continuous Measurements of Atmospheric Hydroxyl Radical	DOU Jian, HUA Lei, HOU Ke-yong, <i>et al.</i> (1688)
Residual Levels of Acetochlor in Source Water and Drinking Water of China's Major Cities	YU Zhi-yong, JIN Fen, LI Hong-yan, <i>et al.</i> (1694)
Vertical Distribution of Water Quality and Its Influence on Underwater Light Field in Lake Chaohu	MA Meng-xiao, ZHANG Yu-chao, QIAN Xin, <i>et al.</i> (1698)
Correlation Between Aquatic Plant Diversity and Water Environment in the Typical Sites of Hangzhou Section of the Beijing-Hangzhou Grand Canal	LU Yin, XU Xiao-lu, ZHANG De-yong, <i>et al.</i> (1708)
Nitrogen and Phosphate Pollution Characteristics and Eutrophication Evaluation for Typical Urban Landscape Waters in Hefei City	LI Ru-zhong, LIU Ke-feng, QIAN Jing, <i>et al.</i> (1718)
Distribution of Nitrogen and Phosphorus in the Sediments and Estimation of the Nutrients Fluxes in Longjing Lake, Chongqing City, During the Initial Impoundment Period	PAN Yan-an, LEI Pei, ZHANG Hong, <i>et al.</i> (1727)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Organochlorine Pesticides (OCPs) in the Water of Lake Qiandao and Its Major Input Rivers	TANG Fang-liang, ZHANG Ming, XU Jian-fen, <i>et al.</i> (1735)
Distribution of Potential Pathogenic Bacteria in the Jiulong River Watershed	HOU Li-yuan, HU An-yi, MA Ying, <i>et al.</i> (1742)
Influence of the River-lake Relation Change on the Distribution of Heavy Metal and Ecological Risk Assessment in the Surface Sediment of Poyang Lake	LIU Wan-qing, NI Zhao-kui, WU Zhi-qiang, <i>et al.</i> (1750)
Spatiotemporal Variation Characteristics of Heavy Metals Pollution in the Water, Soil and Sediments Environment of the Lean River-Poyang Lake Wetland	JIAN Min-fei, LI Ling-yu, XU Peng-fei, <i>et al.</i> (1759)
Dissolved Organic Matter (DOM) Dynamics in Karst Aquifer Systems	YAO Xin, ZOU Sheng-zhang, XIA Ri-yuan, <i>et al.</i> (1766)
Sensitivity Analysis of AnnAGNPS Model's Hydrology and Water Quality Parameters Based on the Perturbation Analysis Method	XI Qing, LI Zhao-fu, LUO Chuan (1773)
Movement Characteristics of <i>Cyanobacteria</i> Under Stress of Water-Lifting Aeration	SUN Xiu-xiu, CONG Hai-bing, GAO Zheng-juan, <i>et al.</i> (1781)
Influence of Light Wavelength and Intensity on the Reduction of Divalent Mercury in Aquatic System	LI Xi-jia, ZHONG Zi-xuan, SUN Rong-guo, <i>et al.</i> (1788)
Dynamic Effects of Commonly Co-Existing Anions on the Removal of Selenite from Groundwater by Nanoscale Zero-Valent Iron	YANG Wen-jun, GUO Ying-qing, DU Er-deng (1793)
BiOBr Promoted the Photocatalytic Degradation of Beta-cypermethrin Under Visible Light	PENG Yi-zhu, ZHAO Xiao-rong, JIA Man-ke, <i>et al.</i> (1798)
Adsorption of Methylene Blue from Aqueous Solution onto Magnetic Fe ₃ O ₄ /Graphene Oxide Nanoparticles	CHANG Qing, JIANG Guo-dong, HU Meng-xuan, <i>et al.</i> (1804)
Selection of Electrochemical Anodic Materials for PFOA Degradation and Its Mechanism	ZHUO Qiong-fang, DENG Shu-bo, XU Zhen-cheng, <i>et al.</i> (1810)
Occurrence and Fate of Typical Antibiotics in a Wastewater Treatment Plant in Southwest China	GAN Xiu-mei, YAN Qing, GAO Xu, <i>et al.</i> (1817)
Effects and Mechanism on Removing Organics and Reduction of Membrane Fouling Using Granular Macro-Porous Anion Exchange Resin in Drinking Water Treatment	HE Huan, DONG Bing-zhi, XU Guang-hong, <i>et al.</i> (1824)
Research on Treatment of High Salt Wastewater by the Graphite and Activated Carbon Fiber Composite Electrodes	ZHOU Gui-zhong, WANG Zhao-feng, WANG Xuan, <i>et al.</i> (1832)
Preparation and Application of the Quinonyl Chloromethylation Polystyrene in Biological Treatment of Wastewater	ZHANG Hua-yu, XU Qing, NIU Chun-mei, <i>et al.</i> (1838)
Enhanced Electro-Catalytic Oxidation of Dye Wastewater with FeMo ₁₂ Adopted Catalyst	WANG Li, YUE Lin, GUO Jian-bo, <i>et al.</i> (1843)
Formation and Characterization of Aerobic Granules in a Pilot-scale Reactor for Real Wastewater Treatment	YANG Shu-fang, ZHANG Jian-jun, ZOU Gao-long, <i>et al.</i> (1850)
Research on Cultivation of Aerobic Granular Sludge and Its Characteristics in Sequencing Fed Batch Reactor	LONG Bei, YANG Chang-zhu, PU Wen-hong, <i>et al.</i> (1857)
Effect of Different Volume Loading of Aerobic/Anaerobic Zone on Nitrogen and Phosphorus Removal by Biofilm and Granular Sludge Coupling Process	YIN Hang, LIU Chang, GAO Hui, <i>et al.</i> (1866)
Adsorption of Cu ²⁺ by Xanthate-Functionalized Waste Sludge	CEN Yan, QUAN Xiang-chun, JIANG Xiao-man (1871)
Mechanisms of Copper Uptake by Submerged Plant <i>Hydrilla verticillata</i> (L. f.) Royle and <i>Myriophyllum spicatum</i> L.	XUE Pei-ying, LI Guo-xin, ZHAO Quan-li (1878)
Properties of Maize Stalk Biochar Produced Under Different Pyrolysis Temperatures and Its Sorption Capability to Naphthalene	HUANG Hua, WANG Ya-xiong, TANG Jing-chun, <i>et al.</i> (1884)
Beijing Common Green Tree Leaves' Accumulation Capacity for Heavy Metals	LI Shao-ming, KONG Ling-wei, LU Shao-wei, <i>et al.</i> (1891)
Assessment of Heavy Metal Contamination by Moss-bag Method and Road-dust Method for Taizhou Urban Area	CHEN Qin, FANG Yan-ming, YAN Yun, <i>et al.</i> (1901)
Effect of Grazing on the Temperature Sensitivity of Soil Respiration in Hulunber Meadow Steppe	WANG Xu, YAN Rui-rui, DENG Yu, <i>et al.</i> (1909)
Variation Characteristic in Soil Respiration of Apple Orchard and Its Biotic and Abiotic Influencing Factors	WANG Rui, GUO Sheng-li, LIU Qing-fang, <i>et al.</i> (1915)
Influencing Factors of Mercury Emission Flux from Forest Soil at Tieshanping, Chongqing	WANG Qiong, LUO Yao, DU Bao-yu, <i>et al.</i> (1922)
Characteristics of Arsenic Content in the Livestock Farms' Surrounding Environment in Shanghai Suburbs	XI Gong-fang, ZHOU Shou-biao, DING Hai-cheng, <i>et al.</i> (1928)
Input and Distribution of Rice Photosynthesized Carbon in the Tillering Stage Under Different Nitrogen Application Following Continuous ¹³ C Labeling	TAN Li-min, WU Hao, LI Hui, <i>et al.</i> (1933)
Simulation Study on the Effect of Salinity on the Adsorption Behavior of Mercury in Wastewater-Irrigated Area	ZHENG Shun-an, LI Xiao-hua, XU Zhi-yu (1939)
Leaching Behavior of Pb, Cd and Zn from Soil Stabilized by Lime Stabilized Sludge	LI Xiang, SONG Yun, LIU Yong-bing (1946)
Levels and Distribution of Short Chain Chlorinated Paraffins in Seaford from Dalian, China	YU Jun-chao, WANG Thanh, WANG Ya-wei, <i>et al.</i> (1955)
Application of Biotic Ligand Model for the Acute Toxicity of Copper to <i>Daphnia magna</i> in Water of Liaohe River and Taihu Lake	ZHOU Teng-yao, CAO ying, QIN Lu-mei, <i>et al.</i> (1962)
Phytotoxicity of Copper Oxide Nanoparticles to Metabolic Activity in the Roots of Rice	WANG Shu-ling, ZHANG Yu-xi, LIU Han-zhu, <i>et al.</i> (1968)
Enhancing Effect of Tween 80 on Degradation of Triphenyltin by <i>Bacillus thuringiensis</i>	HUANG Jie, YE Jin-shao, YIN Hua, <i>et al.</i> (1974)
Long-term Performance of Microbial Fuel Cell Using Manure as Substrate	JIAO Yan, ZHANG Guo-dong, ZHAO Qing-liang (1981)
Influence of Goethite on Anaerobic Fermentation of Organic Fraction of Municipal Solid Waste (OFMSW)	YANG Lu-lu, YUE Zheng-bo, CHEN Tian-hu, <i>et al.</i> (1988)
Pollutants Produced in Municipal Refuse Container During Transfer Process	WANG Xiao-yuan, LIU Yin-hua, WANG Fei, <i>et al.</i> (1994)
Selective Catalytic Oxidation of H ₂ S over Supported Fe Catalysts on CeO ₂ -Intercalated Laponite Clay	SUN Chao, ZHANG Xin, HAO Zheng-ping, <i>et al.</i> (2002)
Preparation by Different Methods and Characterization of Desulfurization Mixed Oxides Derived from Hydrotalcites	ZHU Chun-lei, WANG Hai-lin, SUN Chun-bao (2010)
Sampling Methods for PM _{2.5} from Stationary Sources: a Review	JIANG Jing-kun, DENG Jian-guo, LI Zhen, <i>et al.</i> (2018)
A Research Overview of Methanogens	LI Yu-shan, LI Yao-ming, OUYANG Zhi-yun (2025)

《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5月15日 35卷 第5期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 5 May 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