

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第11期

Vol.35 No.11

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

南京北郊夏季近地层臭氧及其前体物体积分数变化特征	邵平, 安俊琳, 杨辉, 林旭, 吉东生 (4031)
亚青会期间南京污染气体与气溶胶中水溶性离子的分布特征	邹嘉南, 安俊琳, 王红磊, 邵平, 段卿, 薛国强, 庞博 (4044)
亚青会期间南京地区气溶胶浓度变化及其与能见度的关系	袁亮, 银燕, 李琦, 肖辉, 李力 (4052)
2013年10月长株潭城市群一次持续性空气污染过程特征分析	廖志恒, 范绍佳, 黄娟, 孙家仁 (4061)
在线单颗粒气溶胶质谱 SPAMS 对细颗粒物中主要组分提取方法的研究	付怀于, 闫才青, 郑玫, 蔡靖, 李小滢, 张延君, 周振, 傅忠, 李梅, 李磊, 张远航 (4070)
PM ₁₀ 可替代源成分谱的建立方法及其应用	陈强, 景毅, 吴焕波, 王芳 (4078)
夏季东海和南黄海一氧化氮的浓度分布、海-气通量和微生物消耗研究	王敬, 陆小兰, 杨桂朋, 徐冠球 (4085)
三峡库区典型农田小流域水体汞的时空分布特征	王娅, 赵铮, 木志坚, 王定勇 (4095)
浑太水系水体中不同粒径有机胶体荧光光谱特性	刘娜娜, 李斌, 刘瑞霞, 宋永会, 吴畏 (4103)
深圳湾流域 TN 和 TP 入海年通量变化规律研究	赵晨辰, 张世彦, 毛献忠 (4111)
滇池沉积物有机磷垂直分布特征及其生物有效性	熊强, 焦立新, 王圣瑞, 彭希琰 (4118)
金山湖闸坝型水体表层沉积物重金属分布特征及生态风险评价	周晓红, 刘龙梅, 陈曦, 陈志刚, 张金萍, 李义敏, 刘彪 (4127)
西藏普莫雍错湖芯沉积物中重金属的垂向分布特征及生态风险评估	谢婷, 罗东霞, 杨瑞强 (4135)
西安市雨水径流中重金属季节性污染特征及分析	袁宏林, 李星宇, 王晓昌 (4143)
城市不同下垫面降雨径流多环芳烃 (PAHs) 分布及源解析	武子澜, 杨毅, 刘敏, 陆敏, 于英鹏, 汪青, 郑鑫 (4148)
粗放型绿色屋面填料的介质组成对出水水质的影响	陈昱霖, 李田, 顾俊青 (4157)
饮用水处理中不同来源生物活性炭微生物群落多样性和结构研究	杜尔登, 郑璐, 冯欣欣, 高乃云 (4163)
压力强化混凝除藻工艺中藻毒素安全性研究	蒋新跃, 栾清, 丛海兵, 徐思涛, 刘玉娇, 朱学源 (4171)
基于膜特征参数变化的蛋白质超滤过程膜污染研究	王旭东, 张银辉, 王磊, 张慧慧, 夏四清 (4176)
臭氧氧化水溶液中对乙酰氨基酚的机制研究	曹飞, 袁守军, 张梦涛, 王伟, 胡真虎 (4185)
电辅助微生物反应器降解苯并噻唑效能的研究	刘春苗, 丁杰, 刘先树, 程旺斌 (4192)
铁铜复合氧化物纳米吸附剂的制备、表征及 As(Ⅲ) 吸附性能研究	张伟, 陈静, 张高生 (4198)
重金属铬胁迫下水蚯蚓的生理响应研究	楼菊青, 杨东叶, 曹永青, 孙培德, 郑平 (4205)
光质对蛋白核小球藻 (<i>Chlorella pyrenoidosa</i>) 生长特征及生化组成的影响研究	唐青青, 方治国, 嵇雯雯, 夏会龙 (4212)
常温低基质下碱度和溶解氧对厌氧氨氧化的影响	任玉辉, 王科, 李相昆, 马凯丽, 张杰 (4218)
Fe ²⁺ 和 Fe ³⁺ 对厌氧氨氧化污泥活性的影响	李祥, 黄勇, 巫川, 王孟可, 袁怡 (4224)
CSTR 中亚硝化颗粒污泥的变化过程研究	阴方芳, 刘文如, 王建芳, 吴鹏, 沈耀良 (4230)
盐度对好氧颗粒污泥硝化过程中 N ₂ O 产生量的影响	王珊珊, 梁红, 高大文 (4237)
硫酸盐还原反应器污泥驯化过程中微生物群落变化分析	曾国驱, 贾晓珊, 郑小红, 杨丽平, 孙国萍 (4244)
利用铅同位素方法量化不同端元源对南京土壤和长江下游悬浮物铅富集的影响	王成, 夏学齐, 张义, 廖启林, 杨忠芳, 季峻峰 (4251)
北京东南郊土壤剖面氟喹诺酮类抗生素分布特征	苏思慧, 何江涛, 杨蕾, 乔肖翠, 崔亚丰 (4257)
环境因素对土壤中几种典型四环素抗性基因形成的影响	张俊, 罗方园, 熊浩微, 焦少俊, 叶波平 (4267)
稻田土壤不同水分条件下硝化/反硝化作用及其功能微生物的变化特征	刘若萱, 贺纪正, 张丽梅 (4275)
典型岩溶土壤微生物丰度与多样性及其对碳循环的指示意义	靳振江, 汤华峰, 李敏, 黄炳富, 李强, 张家喻, 黎桂文 (4284)
变温环境对典型石灰土有机碳矿化的影响	王莲阁, 高岩红, 丁长欢, 慈恩, 谢德体 (4291)
铁氧化物与电子供体基质交互作用对红壤性水稻土中 DDT 还原脱氯影响	刘翠英, 徐向华, 王壮, 姚童言 (4298)
植物套种及化学强化对重金属污染土壤的持续修复效果研究	卫泽斌, 郭晓方, 吴启堂, 龙新宪 (4305)
不同取样尺度下亚高山草甸土壤呼吸的空间变异特征	李洪建, 高玉凤, 严俊霞, 李君剑 (4313)
不同开垦年限黑土温室气体排放规律研究	李平, 郎漫, 徐向华, 李煜珊, 朱淑娟 (4321)
转 Cry1Ac 基因抗虫棉与其亲本棉花根际真菌多样性的比较	潘建刚, 焦海华, 白志辉, 齐鸿雁, 马安周, 庄国强, 张洪勋 (4329)
天津污灌区内气态汞的污染特征及在叶菜类蔬菜中的富集	郑顺安, 韩允垒, 郑向群 (4338)
1-硝基芘和 1,2-萘醌的联合细胞毒性和致 DNA 损伤	尚羽, 蒋玉婷, 张玲, 李怡 (4345)
鸡粪堆肥有机物演化对重金属生物有效性影响研究	卜贵军, 于静, 邱慧慧, 罗世家, 周大寨, 肖强 (4352)
污泥预植重金属 Cu 炭化及炭中重金属的稳定性研究	窦晓敏, 陈德珍, 戴晓虎 (4359)
上层曝气式生物反应器填埋工艺特性的研究	田颖, 王坤, 徐期勇 (4365)
硝酸盐连续回灌对生物反应器填埋场 N ₂ O 产生的影响	卞荣星, 孙英杰, 李晶晶, 张欢欢 (4371)
中国碳强度下降和碳排放增长的行业贡献分解研究	蒋晶晶, 叶斌, 计军平, 马晓明 (4378)
泛长三角地区工业污染重心演变路径及其驱动机制研究	赵海霞, 蒋晓威, 崔建鑫 (4387)
基于污染防治技术模拟的造纸行业环境管理方法研究	张雪莹, 温宗国 (4395)
大气棕色碳的研究进展与方向	闫才青, 郑玫, 张远航 (4404)
《环境科学》征稿简则 (4094)	
《环境科学》征订启事 (4126)	
信息 (4243, 4266, 4274, 4328)	

城市不同下垫面降雨径流多环芳烃 (PAHs) 分布及源解析

武子澜¹, 杨毅¹, 刘敏^{1*}, 陆敏¹, 于英鹏¹, 汪青^{1,2}, 郑鑫¹

(1. 华东师范大学资源与环境科学学院地理系, 地理信息科学教育部重点实验室, 上海 200241; 2. 安徽师范大学地理系, 芜湖 241003)

摘要: 以上海市不透水下垫面降雨径流为研究对象, 分析了交通道路、校园、小区路面和小区屋面径流样品中 16 种溶解相、颗粒相 PAHs 质量浓度和场次降雨事件平均浓度 (EMC). 研究了不同下垫面降雨径流 PAHs 冲刷过程. 通过对不同样点降雨径流初始冲刷散点进行幂函数拟合, 定量表征了降雨径流 PAHs 和悬浮颗粒物 (TSS) 的初始冲刷强度. 对径流样品中 PAHs 来源进行了分析. 结果表明, 径流样品 $\sum 16\text{PAHs}$ (包括溶解相和颗粒相) 质量浓度变化范围为 $317.21 \sim 10\,364.32 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 其中龙吴路 $\sum 16\text{PAHs}$ 质量浓度 (均值) 最大, 而校园最小. 污染物的 EMC 值在不同样点具有很大的差异. 不同样点 PAHs 含量在径流过程中皆呈现出明显的衰减特征, 并显示出不同程度的初始冲刷效应. 运用因子分析方法解析 PAHs 来源发现, 降雨径流 PAHs 来自化石燃料的不完全燃烧、石油泄漏、炼焦等, 且各源的贡献率在不同下垫面降雨径流中有差异.

关键词: PAHs; 降雨径流; EMC; 初始冲刷; 源解析

中图分类号: X131.2; X52 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)11-4148-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.2014.11.015

Distribution and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Urban Rainfall Runoff

WU Zi-lan¹, YANG Yi¹, LIU Min¹, LU Min¹, YU Ying-peng¹, WANG Qing^{1,2}, ZHENG Xin¹

(1. Key Laboratory of Geographic Information Science of the Ministry of Education, School of Resources and Environment Science, East China Normal University, Shanghai 200241, China; 2. Department of Geography, Anhui Normal University, Wuhu 241003, China)

Abstract: Runoff samples were collected from traffic roads, campus, residential road and roof in a typical rain event. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in both dissolved and particle phases were investigated at impervious surfaces. The PAHs wash-off process at different monitoring sites was analyzed. The scatters of first flush were conducted in a method of fitting power function to quantitatively assess the magnitude of first flush effect (FFE). The sources of PAHs were identified using factor analysis. The results showed that PAHs concentrations in runoff samples varied from $317.21 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ to $10\,364.3 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ with the maximal and minimal contents of PAHs found on Longwu Road and campus, respectively. The values of event mean concentration (EMC) varied considerably at different sampling sites. The concentration of washed-off pollutant generally decreased with runoff duration, which showed an obvious attenuation trend. The runoff process indicated the occurrence of FFE at different levels. PAHs mainly came from the incomplete combustion of fossil fuels, oil leakage and coking, and the contribution of each source was different in accordance with various surfaces.

Key words: PAHs; rainfall runoff; EMC; first flush effect; source identification

城市化的高度发展使不透水面的面积迅速增加, 形成了不同于自然地表的“城市第二自然格局”, 从而对地表水文过程产生了深刻的影响^[1]. 在城市环境中, 不透水的下垫面阻隔了降水的下渗, 累积于表面的污染物在降雨时被径流冲刷进入排水管道, 并最终进入受纳水体, 之后或被流域输出, 或被沉积物吸附. 破坏了流域的生态环境, 加速了流域水体富营养化的过程, 使其水质下降. 研究表明, 地表径流已成为有毒有机污染物进入河流的重要途径^[2]. 其中多环芳烃 (PAHs) 由于环境中分布广泛, 对人体有强烈的“三致作用”及潜在的内分泌干扰

作用逐步受到关注. 国内外学者对不同环境介质中 PAHs 开展了相关研究^[3~6]. 在降雨径流 PAHs 的研究中, 学者对径流水体 PAHs 污染特征及其迁移、毒性和管控等进行了探讨^[7~10], 并在降雨径流过程中 PAHs 的输出、时间变化规律、定量模拟及其防治措施等方面取得较大成果^[11~15]. 本文以上海城市不同下垫面降雨径流 PAHs 作为研究对象, 分析地

收稿日期: 2014-04-23; 修订日期: 2014-05-31

基金项目: 国家自然科学基金重点项目 (41130525); 国家自然科学基金项目 (41371451, 41101502)

作者简介: 武子澜 (1988 ~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为城市多界面环境过程, E-mail: wu. zi. lan@163.com

* 通讯联系人, E-mail: mliu@geo.ecnu.edu.cn

表径流样品中 PAHs 的径流冲刷过程,定量表征径流水体 PAHs 初始冲刷效应,解析径流样品 PAHs 来源,以期为城市降雨径流 PAHs 管控提供依据。

1 材料与方法

1.1 样品采集

降雨径流污染监测选取 2013 年 9 月 21 日降雨事件,此次降水受热带气旋外围和北方冷空气的影响为典型阵雨。采样点选取沪闵路高架 HM、校园

XY、沧源小区 CY、龙吴路 LW、虹梅新苑 HX,其中样点沧源小区采集屋面径流,其余 4 个样点均收集地表径流(表 1)。地表径流和屋面径流样品分别在路面雨水井的入口处和雨落管管口采集,产流后前 30 min,每 5 min 采集 1 个样;产流 30 ~ 60 min,每 10 min 采集 1 个样;产流 60 ~ 120 min,每 20 min 采集 1 个样。然后以 30 min 为间隔收集剩余的径流样品,同步记录降雨参数和径流量。每个样品收集在预先处理过的棕色玻璃瓶中。

表 1 径流采样点概况

Table 1 Overview of the sampling sites

采样点	样点描述	下垫面材料	汇流面积/m ²
LW	沿路布设发电厂、化工厂等大型工厂,大型货车来往频繁	沥青	340
HM ^[7]	东川路沪闵路交叉口,车流量大,高架路面	沥青	310
XY	华东师大闵行校区大夏路,路两边有植被覆盖	沥青	72
CY	沧源小区屋面,共有 12 根雨落管,屋面倾斜	塑料	256
HX	虹梅新苑内小区路面,小区车辆过往频繁	水泥	108

1.2 样品前处理

径流样品在收集后立即送实验室,用事先称重、450℃灼烧 4 h 的玻璃纤维 GF/F(Whatman USA)过滤。滤出样品用干净、干燥的棕色玻璃瓶保存后进行固相萃取富集。固相萃取柱(CNW, HC-C₁₈, SPE)依次用二氯甲烷、甲醇、超纯水各 5 mL 活化平衡,加载水样调节流速为 5 mL·min⁻¹,萃取后用 15 mL 体积比为 3:7 的二氯甲烷和正己烷溶液洗脱 SPE 小柱。接收的洗脱液经过无水硫酸钠脱水后旋转浓缩至 1 mL,转移至 GC 样品瓶中待测。

过滤的滤膜用铝箔包好放入冻干机冻干后称重。将滤膜与无水硫酸钠及少量铜粉置于滤纸筒进行索式提取(120 mL 二氯甲烷和丙酮混合液,体积比 1:1, 18 h),回流次数控制在 4 ~ 5 次·h⁻¹。将萃取液旋转浓缩后过硅胶/氧化铝复合层析柱(硅胶在烘箱 130℃下活化 12 h,氧化铝和无水硫酸钠经马弗炉 450℃灼烧 4 h)净化。再用 70 mL 二氯甲烷和正己烷(体积比 3:7)洗脱收集芳烃组分。将洗脱液定量浓缩至 1 mL,转移至 GC 样品瓶中待测。

1.3 仪器分析

测定美国 EPA 公布的 16 种优控的多环芳烃,包括萘(NAP)、芘(ACY)、二氢芘(ACE)、芴(FLO)、菲(PHE)、蒽(ANT)、荧蒽(FLA)、芘(PYR)、苯并[a]蒽(BaA)、䓛(CHR)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[a]芘(BaP)、二苯并[a,h]蒽(DahA)、茚并[1,2,3-c,d](IcdP)、苯并[g,h,i]芘(BghiP)。运用气相色谱-质谱联用仪

(GC-MS, Agilent7890A/5975C),选择离子检测法(SIM)对样品中的 16 种 PAHs 进行测定,GC-MS 的色谱柱为 DB5-MS(30 m × 0.25 mm × 0.25 μm)。柱温程序如下:柱初温 80℃,保持 1 min,以 10℃·min⁻¹程序升温至 235℃,再以 4℃·min⁻¹升温至 300℃保持 4 min;载气为高纯 He(流速 1 mL·min⁻¹);质谱电离方式:EI 源,离子源温度为 270℃,电压为 70 eV,电流为 350 μA,扫描频率为 1.5 scan·s⁻¹。

1.4 质量控制和质量保证(QA&QC)

整个实验分析过程按方法空白、空白加标、样品平行样进行质量保证和质量控制。16 种 PAHs 空白加标回收率为 78.9% ~ 114.3%。样品平行样相对标准偏差在 20% 以下。方法空白未检出目标污染物。16 种多环芳烃的方法检出限为 0.01 ~ 0.15 ng·L⁻¹,用内标法计算 PAHs 含量。

2 结果与分析

2.1 降雨径流 PAHs 赋存水平

城市土地利用方式及其空间格局是影响城市降雨径流污染的关键因素^[16]。表 2 列出了 5 个样点径流样品中单体 PAHs、∑16PAHs 和 6 种具有明确致癌性的 PAHs 的质量浓度及其几何均值。不同样点 ∑16PAHs 的质量浓度变化范围分别为:沪闵路高架(1 245.60 ~ 4 986.48 ng·L⁻¹)、校园(317.21 ~ 906.27 ng·L⁻¹)、沧源小区(671.99 ~ 1 388.43 ng·L⁻¹)、龙吴路(2 236.46 ~ 10 364.32

表 2 降雨径流样品 PAHs 质量浓度 (溶解相 + 颗粒相) / ng·L⁻¹
Table 2 PAHs concentrations in runoff samples (dissolved + particle-bound PAHs) / ng·L⁻¹

PAHs	沪闵路 HM		校园 XY		沧源小区 CY		龙吴路 LW		虹梅新苑 HX	
	含量	均值	含量	均值	含量	均值	含量	均值	含量	均值
NAP	38.49 ~ 104.14	58.18	42.28 ~ 87.52	60.01	20.47 ~ 166.95	51.92	48.93 ~ 212.08	76.97	39.40 ~ 161.05	69.13
ACY	9.65 ~ 75.15	21.53	10.38 ~ 43.91	19.66	9.44 ~ 48.37	22.84	15.76 ~ 293.56	49.34	17.29 ~ 81.29	36.55
ACE	12.01 ~ 75.56	32.19	30.01 ~ 69.55	51.05	10.23 ~ 49.94	19.52	12.04 ~ 55.21	29.97	24.82 ~ 131.89	54.39
FLO	24.91 ~ 88.48	44.71	35.78 ~ 113.53	59.49	9.71 ~ 76.26	23.75	48.09 ~ 159.83	88.47	22.76 ~ 148.58	62.15
PHE	89.52 ~ 444.90	190.15	30.58 ~ 86.95	55.33	72.52 ~ 217.16	145.53	193.90 ~ 2 004.47	499.46	74.28 ~ 326.28	173.32
ANT	8.72 ~ 39.33	20.65	24.47 ~ 81.63	39.67	58.60 ~ 84.34	68.18	26.47 ~ 75.79	46.05	16.94 ~ 62.65	32.44
FLA	47.00 ~ 1 034.74	305.75	24.81 ~ 103.63	52.42	86.59 ~ 176.91	140.14	170.20 ~ 2 445.92	586.72	137.76 ~ 490.32	293.81
PYR	70.17 ~ 767.25	286.33	22.88 ~ 80.25	49.90	109.99 ~ 204.80	151.69	157.78 ~ 1 320.97	494.53	122.02 ~ 409.45	293.81
BaA	62.18 ~ 657.69	207.62	9.56 ~ 76.27	29.49	60.32 ~ 183.38	101.32	390.52 ~ 1 145.20	565.75	60.47 ~ 194.54	136.48
CHR	286.39 ~ 957.08	510.71	10.05 ~ 69.29	34.05	11.45 ~ 248.39	68.55	380.53 ~ 1 183.24	380.53	32.16 ~ 344.64	148.09
B[_b /k]F	53.73 ~ 1 015.45	278.92	10.37 ~ 87.91	36.27	37.99 ~ 91.74	64.65	200.49 ~ 451.23	372.73	81.16 ~ 225.70	153.24
BaP	28.82 ~ 407.99	160.92	23.99 ~ 43.99	35.42	35.38 ~ 81.66	52.46	255.29 ~ 992.50	411.00	60.45 ~ 197.70	110.78
IcdP	20.31 ~ 390.49	97.92	3.55 ~ 14.17	6.95	10.44 ~ 43.05	23.29	65.21 ~ 824.51	215.07	22.24 ~ 82.82	51.33
DahA	11.59 ~ 88.50	27.95	1.71 ~ 16.26	7.95	4.88 ~ 42.45	11.14	29.20 ~ 123.62	66.40	10.29 ~ 24.51	15.96
BghiP	76.51 ~ 425.79	181.41	4.97 ~ 37.44	10.59	16.17 ~ 90.92	39.34	107.15 ~ 840.15	323.68	32.03 ~ 107.60	72.52
∑ 6PAHs ¹⁾	247.64 ~ 2 471.35	827.20	49.22 ~ 209.60	125.05	191.90 ~ 379.81	262.44	983.80 ~ 2 671.00	1 729.27	269.23 ~ 692.98	475.96
∑ 16PAHs ²⁾	1 245.60 ~ 4 986.48	2 712.58	317.21 ~ 906.27	572.75	671.99 ~ 1 388.43	1 059.60	2 236.46 ~ 10 364.32	4 896.42	946.94 ~ 2 383.35	1 718.44

1) 6 种具有明确致癌的 PAHs (BaA、BbF、BkF、BaP、IcdP、DahA) 的总质量浓度; 2) 16 种 PAHs 的总质量浓度

$\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)、虹梅新苑(946.94 ~ 2 383.35 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)。就几何均值来看, $\sum 16\text{PAHs}$ 质量浓度大小依次为: 龙吴路(4 896.42 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$) > 沪闵路(2 712.58 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$) > 虹梅新苑(1 718.44 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$) > 沧源小区(1 059.60 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$) > 校园(572.75 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$), 且具有明确致癌性的 $\sum 6\text{PAHs}$ 含量变化与 $\sum 16\text{PAHs}$ 相同。不同下垫面 PAHs 的赋存状况具有明显差别, 样点龙吴路 PAHs 质量浓度最高, 是其他样点污染水平的数倍。这主要与其周边的环境状况密切相关, 沿龙吴路布设有吴泾第二发电厂、化工厂、水泥厂等大型工厂, 每天大量的工业废气、粉尘等由此排放, 气态、颗粒态 PAHs 或通过大气沉降, 或重力作用最终累积于不透水地表。加之每天龙吴路大型机动车辆过往频繁, 汽车尾气排放、轮胎磨损和道路老化对 PAHs 也产生了较大的贡献。

径流中 $\sum \text{PAHs}$ 包括了溶解相和颗粒相两部分。由于 PAHs 是疏水性有机污染物, 径流中 PAHs 的分配更趋于附着在颗粒物表面。不同下垫面颗粒相 PAHs 占 $\sum 16\text{PAHs}$ (溶解相 + 颗粒相) 的质量分数均值分别为: 龙吴路(94.18%)、沪闵路(91.29%)、虹梅新苑(89.43%)、沧源小区(84.29%)、校园(65.75%)。径流中 PAHs 的含量受到了水体地形、水文条件和气候的影响, 此外水体中颗粒物的含量、粒径分布及 PAHs 分子量的大小对径流中 PAHs 的赋存和迁移具有重要的影响^[17]。各个样点中颗粒相 4 ~ 6 环 PAHs 组分对 $\sum 16\text{PAHs}$ (溶解相 + 颗粒相) 贡献最大, 分别为: 沪闵路(84.40%)、龙吴路(82.43%)、虹梅新苑(72.92%)、沧源小区(66.87%)、校园(48.69%)。PAHs 在溶解相和颗粒相之间的分配是其在径流水体中迁移、转化的重要因素。污染物质在颗粒相-水相间的分配系数 K_p ($K_p = C_s/C_w$, 式中: C_s 为固相浓度, $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$; C_w 为液相浓度, $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$) 是描述污染物在水环境中行为的重要理化特征参数。本研究中径流水体 PAHs 在颗粒相-水相间的 K_p 值在 $8.70 \times 10^3 \sim 3.62 \times 10^5 \text{L}\cdot\text{kg}^{-1}$ 之间。

2.2 EMC 分异

径流中污染物的浓度由于下垫面的性质和降雨特点差异很大, 致使污染物的浓度随径流历时有所不同。故用“场次降雨事件平均浓度”(EMC)表示在一场降雨径流全过程排放某种污染物的平均浓度。EMC 实质上是一场降雨径流全过程瞬时污染浓度的流量加权平均值, 即一场降雨引起的路面径流中

污染物的总负荷除以总的径流量^[18]。

图1表示了径流过程不同样点 PAHs 与 TSS 的浓度变化范围及其 EMC 值空间分异。从中可以看出

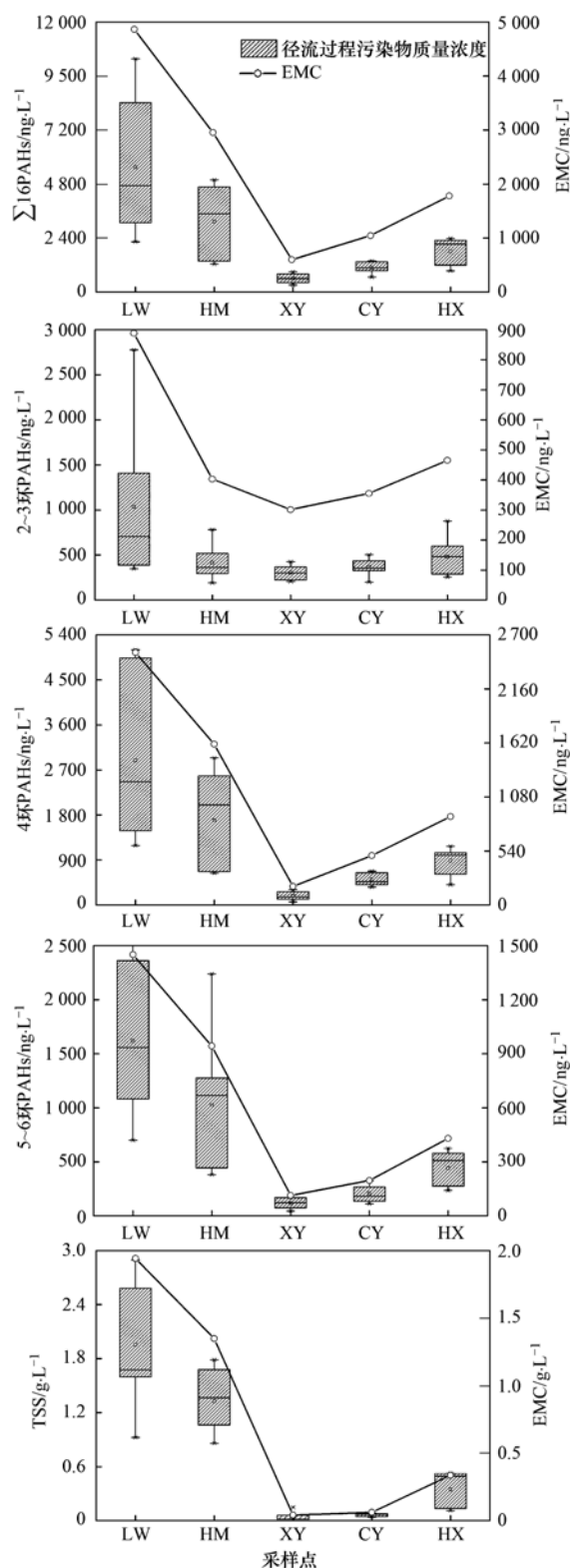


图1 不同土地利用类型 PAHs、TSS 箱式图与 EMC 空间分布

Fig. 1 Box plots for PAHs, TSS and value of EMCs at different sampling sites

龙吴路和沪闵路较其他 3 个样点呈现出显著地浓度变化,其中龙吴路污染物浓度变化最大,而校园变化最小,这也说明校园和沧源小区径流过程污染物浓度变化比较缓和.从 EMC 变化过程线可以看出,不同组分 PAHs 和 $\sum 16\text{PAHs}$ 及 TSS 浓度水平都显示出相同的空间分布趋势,即龙吴路 > 沪闵路 > 虹梅新苑 > 沧源小区 > 校园.龙吴路 $\sum 16\text{PAHs}$ 的 EMC 值为 $4\,862.57\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,而校园为 $601.36\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$; TSS 的 EMC 值龙吴路和校园分别为 $1.94\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $0.04\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$,两个指标前者分别是后者的 8 倍和 48 倍.同一降雨场次,由于降雨特征是一致的,因而 EMC 值的空间分异主要与雨前下垫面污染物累积状况和汇水域特征有关.校园每天都有保洁员不定时的打扫,而且车辆过往稀少,并远离校区外交通污染源,使其 PAHs 和 TSS 污染水平较低.而龙吴路不仅靠近工业污染源,且每天大型机动车辆过往频繁,因此通过大气沉降和轮胎磨损、道路老化等富集了大量的污染物.此外,在二者汇水域的对比上,样点龙吴路不仅汇水面积较学校的大夏路大,且路面具有坡度,这样在降雨过程中径流携带汇水域的颗粒物比学校的大夏路多.径流冲刷过程中路面的坡度也增加了冲刷的强度.

3 讨论

3.1 降雨径流 PAHs 径流过程

图 2 表示了 2013-09-21 次降雨事件不同样点溶解相和颗粒相不同组分 PAHs 和径流量的降雨历时过程.各环组分和 $\sum 16\text{PAHs}$ 在径流初期都有较高的质量浓度,特别是颗粒相表现得更为明显,这主要与雨前干期污染物的累积有关.随后污染物质量浓度在径流过程中波动下降,最后 PAHs 含量趋于稳定,呈现出渐趋衰减的特征.城市地表径流污染受很多因素影响,诸如:降雨特征、城市土地利用类型、大气污染等.降雨强度决定冲刷污染物能量的大小,降雨量决定稀释污染物的水量,土地利用方式决定污染物的性质和累积^[16].

龙吴路和沪闵路降雨径流在产流初期 10 min 后,溶解相和颗粒相 $\sum 16\text{PAHs}$ 质量浓度达到最高值,在最大径流后浓度值下降并趋于稳定.这主要因为二者汇水域面积较大,加之路面地形坡度的影响,致使径流量较大,从而使地表 PAHs 冲刷并受到稀释的缘故;虹梅新苑小区路面由于汇流面积小并没有明显的较大径流,致使降雨径流以冲刷作用为主

导,在较大径流出现后颗粒相 $\sum 16\text{PAHs}$ 达到浓度最高值,并之后下降.在产流 40 min 时,浓度值又有所上升,这可能和降雨强度有关,由于雨强间歇增大,使径流量增大,有利于污染物冲刷;沧源小区屋面呈倾斜状,污染物在屋面更易受到降水冲刷,但由于本次取样距上次降水间隔不是太久,所以样品中污染物更多来自雨落管.雨落管积存的污染物由于受到的不同强度屋面径流的冲刷,致使污染物浓度有所波动.加之管壁赋存的污染物随着屋面径流的冲刷在降雨后期可能又有所析出,使得污染物浓度在后期出现了高值;校园径流溶解相和颗粒相 $\sum 16\text{PAHs}$ 质量浓度随着降雨历时下降并渐趋稳定,也更多体现了降雨径流的冲刷作用.

3.2 初始冲刷定量表征

初期雨水径流的污染物质量浓度在整个径流过程中是最高的,这种现象被称为降雨径流初始冲刷效应(first flush effect).国内外学者通过研究,将无量纲污染物累积 $M(t)$ 、无量纲流量累积 $V(t)$ 形成的初始冲刷散点拟合成如下的幂函数方程^[19].

$$M(t) = V(t)^b$$

实际应用中用 b 值即初始冲刷系数对初始冲刷现象定量表征, b 值越小初始冲刷强度越大.表 3 为 $\sum 16\text{PAHs}$ (溶解相 + 颗粒相)和 TSS 的初始冲刷强度指数 b 值.从 b 值可以看出不同样点 $\sum 16\text{PAHs}$ 和 TSS 基本属于中等强度冲刷范围,初始冲刷散点拟合度 R^2 除虹梅新苑 TSS 为 0.80,其余皆在 0.93 以上.其中龙吴路(LW) $\sum 16\text{PAHs}$ 对应的 b 值最小 0.43,即此次降雨事件 $\sum 16\text{PAHs}$ 初始冲刷强度最大,而沪闵路高架(HM) TSS 对应的 b 值最大 0.98,即该次降雨事件 TSS 初始冲刷强度最小.初始冲刷现象十分复杂,不同的汇水域可能主导初始冲刷的因素就不同.流域土地利用类型、地表污染物累积、降雨特征、污染物种类和排水体制等都在影响着初始冲刷的强度.一般认为,流域面积越小、降雨强度越大,初始冲刷就越显著.但是由于污染物的输出是一个非常复杂的过程,无论实验还是理论,都尚未确定初始冲刷与上述因素的关系^[20,21].

3.3 因子分析

为进一步解析径流样品中 PAHs 的来源,应用因子分析对 PAHs 来源进行定量解析.源解析时考虑了下垫面的差别,将龙吴路、沪闵路高架归为交

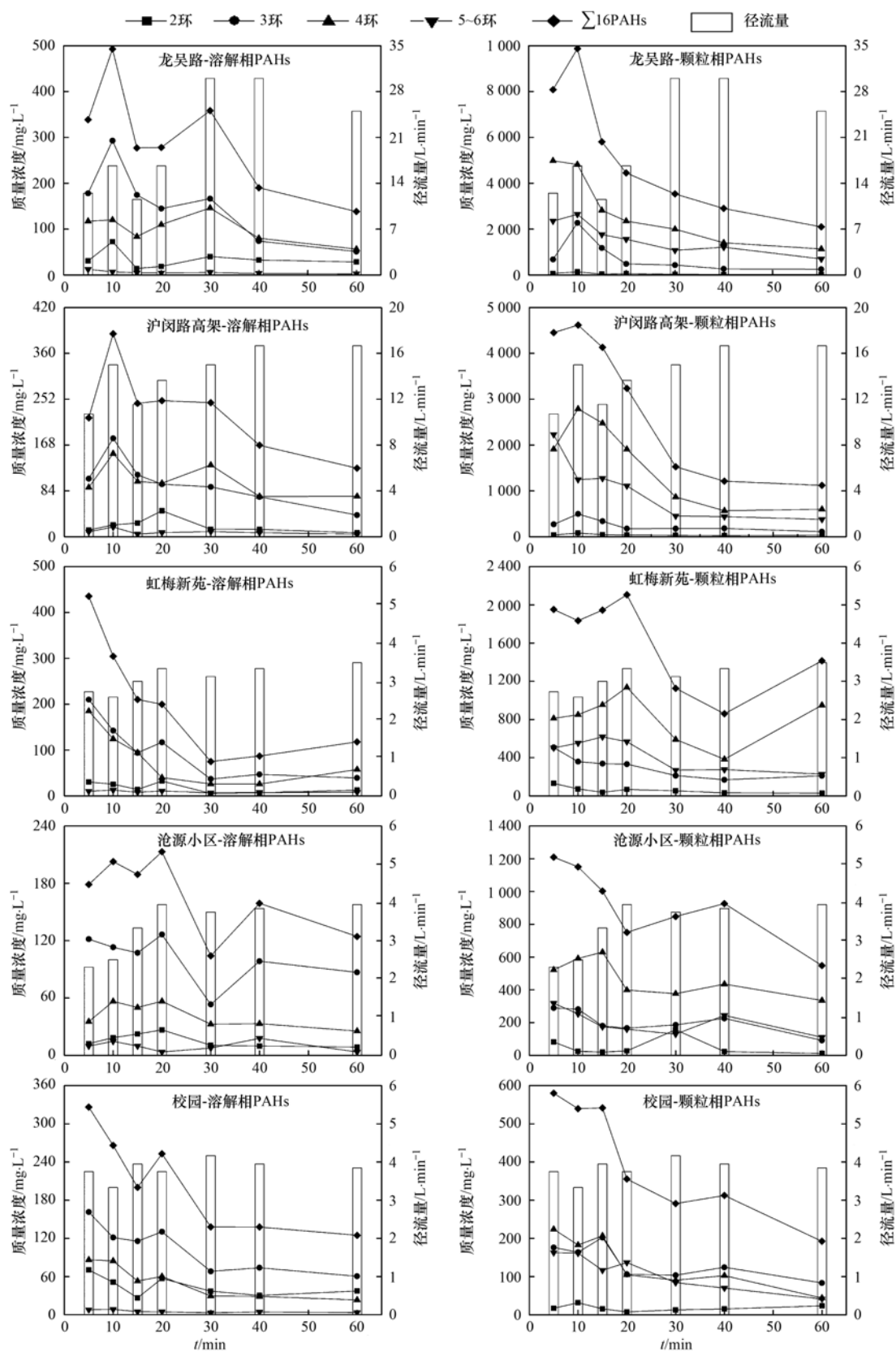


图2 PAHs浓度曲线和径流量曲线

Fig. 2 PAHs concentration curves and runoff hydrographs

表 3 $\sum 16\text{PAHs}$ 和 TSS 初始冲刷强度指标¹⁾

Table 3 First flush parameter *b* for total PAHs and SS

CY		HX		XY		LW		HM	
$\sum 16\text{PAHs}$	TSS	$\sum 16\text{PAHs}$	TSS	$\sum 16\text{PAHs}$	TSS	$\sum 16\text{PAHs}$	TSS	$\sum 16\text{PAHs}$	TSS
0.55	0.70	0.80	0.78	0.66	0.34	0.43	0.76	0.53	0.98

1) 日期 2013-09-21

通路面;虹梅新苑为小区路面;沧源小区为小区屋面;学校为校园路面。

由于 NAP 挥发性较强,且波动性大,在因子分析中,其高浓度可能掩盖其他组分特征,因此利用其它 15 种 PAHs(溶解相+颗粒相)浓度进行解析^[22],采用主成分分析法结合方差最大正交旋转法.样品数据经 KMO 和 Bartlett 检验后表明,KMO 的值皆大于 0.5, Bartlett 的测试值 *P* 值 (sig. = 0.000) < 0.05,拒绝 Bartlett 球度检验的零假设,适合做主成分分析.正交旋转后的主因子载荷值见表 4.从中可以看出 4 个功能区径流样品 PAHs 主成分分析结果相似,都可以提取出 3 个主因子.累积方差贡献率分别达到 91.9%、89.0%、86.4%、91.0%.

低环组分 PAHs 诸如 ACY、ACE、FLO 代表石油泄漏或是挥发^[23];PHE、FLA、PYR、CHR 来源于煤燃烧^[24~26].高环组分 PAHs 指示石油燃烧,BbF、BkF、BaP 主要来源于汽油的燃烧,BghiP 主要为汽油引擎或柴油内燃机的排放物,被认为是汽车尾气的示踪剂^[27~29].

交通路面径流水体 PAHs 主成分 1 主要富集 PHE、FLA、CHR、B[b/k]F、BaP、IcdP、DahA、BghiP,代表了燃煤和燃油源,解释了方差变量的 43.6%;主成分 2 中 ACY、ACE、FLO 有较高的载

荷,代表了石油泄漏或挥发,解释了方差变量的 33.7%;主成分 3 中 ANT 载荷较高,有研究表明 ANT 显示焦炉排放^[24],代表了炼焦源,解释了方差变量的 14.6%.小区路面径流水体 PAHs 主成分 1 主要富集 ACY、FLO、B[b/k]F、BaP、IcdP、DahA,反映了燃油和石油类挥发,对 PAHs 的贡献率 39.8%;主成分 2 在 PHE、ANT、FLA、PYR、CHR 有较高载荷,代表了燃煤源,解释方差变量的 35.2%;主成分 3 只在 ANT 有高的载荷,指示了炼焦源,贡献率为 14.0%;屋面径流样品 PAHs 主成分 1 富集了 PHE、FLA、PYR、B[b/k]F、IcdP,代表燃煤/燃油源,解释了方差变量的 40.7%;主成分 2 在 ACE、FLO、ANT 等载荷较高,代表了石油类挥发,贡献率为 32.1%;主成分 3 只在 DahA 有较高载荷,由于 DahA 分子量大,挥发性较弱,除来自不完全燃烧,还有其他类型的来源^[30],因而代表其他源,贡献率为 13.6%.校园路面径流样品 PAHs 主成分 1 在 ACE、FLO、PHE、FLA、PYR、BaA、CHR、B[b/k]F、IcdP、BghiP 载荷较高,代表了燃煤/燃油/石油泄漏混合源,贡献率为 60.7%;主成分 2 在 ANT 载荷较高,代表炼焦,主成分 3 在 DahA 载荷较高,代表其他源,解释 13.8% 的贡献率.

表 4 不同下垫面径流样品 PAHs(溶解相+颗粒相)旋转后主因子载荷

Table 4 Rotated component matrix of PAHs in runoff samples for different surfaces

PAHs	交通路面			小区路面			小区屋面			校园		
	<i>F</i> ₁	<i>F</i> ₂	<i>F</i> ₃	<i>F</i> ₁	<i>F</i> ₂	<i>F</i> ₃	<i>F</i> ₁	<i>F</i> ₂	<i>F</i> ₃	<i>F</i> ₁	<i>F</i> ₂	<i>F</i> ₃
ACY	0.141	0.949	-0.069	0.947	0.103	0.140	-0.094	0.179	0.570	0.303	0.863	0.197
ACE	-0.022	0.895	0.668	0.633	0.574	-0.088	0.447	0.818	0.337	0.868	0.219	0.290
FLO	0.615	0.830	0.179	0.954	0.250	-0.136	0.245	0.922	0.036	0.993	0.030	-0.048
PHE	0.902	0.360	-0.060	0.299	0.802	0.324	0.960	0.049	-0.082	0.956	0.155	0.144
ANT	0.781	0.357	0.905	0.232	0.899	0.903	-0.098	0.958	0.216	0.052	0.870	0.146
FLA	0.887	0.563	0.100	0.003	0.740	0.730	0.863	0.070	0.184	0.803	0.380	0.187
PYR	0.407	0.226	0.085	0.514	0.824	0.567	0.952	0.222	-0.106	0.846	0.486	0.192
BaA	0.196	0.528	0.329	0.261	0.601	0.605	-0.262	0.690	-0.622	0.869	0.211	-0.194
CHR	0.746	0.692	0.535	-0.115	0.811	0.211	0.109	0.055	0.052	0.936	0.293	0.153
B[b/k]F	0.727	0.092	0.179	0.746	0.472	0.197	0.859	0.381	0.213	0.908	0.179	0.257
BaP	0.938	0.160	0.144	0.905	0.075	0.188	0.531	0.830	-0.153	0.309	-0.307	0.709
IcdP	0.881	0.408	0.227	0.767	0.095	0.039	0.974	0.057	0.080	0.921	-0.079	0.043
DahA	0.800	0.212	0.464	0.805	0.478	-0.175	0.598	0.396	0.907	-0.128	0.250	0.912
BghiP	0.886	0.190	0.101	0.512	0.167	-0.110	0.662	0.899	0.270	0.930	-0.166	-0.271
方差贡献率/%	43.6	33.7	14.6	39.8	35.2	14.0	40.7	32.1	13.6	60.7	16.5	13.8
累积方差贡献率/%	43.6	77.3	91.9	39.8	75.0	89.0	40.7	72.8	86.4	60.7	77.2	91.0

将因子分析后的标准化主因子得分变量为解释变量,标准化的 $\sum 15\text{PAHs}$ 为被解释变量,进行多元线性回归,由此得到的方程标准化回归系数计算各主要污染源的相对贡献^[22]. 不同下垫面径流水体 PAHs 来源及其贡献率见表 5. 径流样品中 PAHs 主要来自化石燃料的不完全燃烧、石油类泄漏和炼焦等. 低分子量的 PAHs 主要源于石油类污染,在大气中主要以气态形式存在,因而 PAHs 石油类挥发

源可能是气态 PAHs 被吸附在大气中的颗粒物后随降雨进入地表径流中. 不同下垫面各污染源对 PAHs 贡献率有差别. 交通路面车辆来往频繁,燃煤和燃油贡献最大,其次为石油挥发. 由于龙吴路靠近吴泾化工区,炼焦源也有体现; 小区路面人类活动频繁,燃油和石油挥发贡献最大,其次为燃煤,还有部分炼焦源; 屋面径流 PAHs 主要是污染物通过大气传输沉降; 校园路面混合源贡献最大,高达 73%.

表 5 径流水体 PAHs 来源贡献率

Table 5 Contribution of PAHs sources for runoff samples

功能区	主因子 1		主因子 2		主因子 3	
	来源	贡献率/%	来源	贡献率/%	来源	贡献率/%
交通路面	燃煤/燃油源	53	石油挥发	33	炼焦	14
小区路面	燃油/石油类挥发	47	燃煤	41	炼焦	12
小区屋面	燃煤/燃油	55	石油类挥发	35	无特定源	10
校园路面	燃煤/燃油/石油挥发	73	炼焦	17	无特定源	10

4 结论

(1)2013-09-21 降雨事件降雨径流 PAHs 质量浓度在 5 个不同样点差别很大,最大值(均值)在样点龙吴路,达到 $4\,896.42\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,最小值(均值)为校园 $572.75\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,下垫面性质对 PAHs 含量有重要影响. 径流水体 PAHs 更倾向于与颗粒物结合.

(2)整个降雨过程,龙吴路 PAHs 质量浓度变化最大,而校园变化最小. 不同功能区降雨径流污染物质量浓度时间变化比较明显,即随径流历时呈现出明显的衰减规律. 各个样点也皆出现不同程度初始冲刷现象.

(3)径流水体 PAHs 主要来自化石燃料的不完全燃烧、石油泄漏和炼焦等,不同下垫面各源贡献率差别较大.

参考文献:

[1] 许世远, 黄余明. 上海城市自然地理图集[M]. 北京: 中国地图出版社, 2004.

[2] Hoffman E J, Mills G L, Latimer J S, *et al.* Urban runoff as a source of polycyclic aromatic hydrocarbons to coastal waters[J]. *Environmental Science & Technology*, 1984, **18**(8): 580-587.

[3] Jiao W T, Wang T Y, Khim J S, *et al.* PAHs in surface sediments from coastal and estuarine areas of the northern Bohai and Yellow Seas, China[J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2012, **34**(4): 445-456.

[4] Majumdar D, Rajaram B, Meshram S, *et al.* PAHs in road dust: ubiquity, fate, and summary of available data [J]. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 2012, **42**(12): 1191-1232.

[5] Pérez R A, Alberio B, Tadeo J L, *et al.* Determination of PAHs in soil leachates by magnetic solid-phase extraction using

nanoparticles and gas chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Analytical Methods*, 2014, **6**(6): 1941-1950.

[6] Moja S J, Mtunzi F, Madlanga X. Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in river water samples from the Vaal Triangle area in South Africa[J]. *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 2013, **48**(8): 847-854.

[7] 武子澜, 杨毅, 刘敏, 等. 城市高架桥降雨径流多环芳烃(PAHs)污染特征及其生态风险评价[J]. *生态环境学报*, 2013, **22**(12): 1922-1929.

[8] Zhang W, Keller A A, Wang X J. Analytical modeling of polycyclic aromatic hydrocarbon loading and transport via road runoff in an urban region of Beijing, China[J]. *Water Resources Research*, 2009, **45**(1): W01423.

[9] Zhang W, Keller A A, Yue D, *et al.* Management of Urban Road Runoff Containing PAHs: Probabilistic Modeling and Its Application in Beijing, China [J]. *JAWRA Journal of the American Water Resources Association*, 2009, **45**(4): 1009-1018.

[10] Zhang W, Ye Y B, Tong Y D, *et al.* Modeling time-dependent toxicity to aquatic organisms from pulsed exposure of PAHs in urban road runoff[J]. *Environmental Pollution*, 2011, **159**(2): 503-508.

[11] Zheng Y, Luo X B, Zhang W, *et al.* Enrichment behavior and transport mechanism of soil-bound PAHs during rainfall-runoff events[J]. *Environmental Pollution*, 2012, **171**: 85-92.

[12] Murakami M, Nakajima F, Furumai H. Modelling of runoff behaviour of particle-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) from roads and roofs[J]. *Water Research*, 2004, **38**(20): 4475-4483.

[13] Boving T B, Zhang W. Removal of aqueous-phase polynuclear aromatic hydrocarbons using aspen wood fibers [J]. *Chemosphere*, 2004, **54**(7): 831-839.

[14] 张巍, 张树才, 岳大攀, 等. 北京城市道路地表径流中 PAHs 的污染特征研究[J]. *环境科学学报*, 2008, **28**(1): 160-167.

- [15] 边璐, 李田, 侯娟. PMF 和 PCA/MLR 法解析上海市高架道路地表径流中多环芳烃的来源[J]. 环境科学, 2013, **34**(10): 3840-3846.
- [16] 李立青, 尹澄清, 何庆慈, 等. 城市降水径流的污染来源与排放特征研究进展[J]. 水科学进展, 2006, **17**(2): 288-294.
- [17] 张蕾, 周启星. 城市地表径流污染来源的分类与特征[J]. 生态学杂志, 2010, **29**(11): 2272-2279.
- [18] Charbeneau R J, Barrett M E. Evaluation of methods for estimating stormwater pollutant loads[J]. Water Environment Research, 1998, **70**(7): 1295-1302.
- [19] Bertrand-Krajewski J L, Chebbo G, Saget A. Distribution of pollutant mass vs volume in stormwater discharges and the first flush phenomenon[J]. Water Research, 1998, **32**(8): 2341-2356.
- [20] Lee J H, Bang K W. Characterization of urban stormwater runoff[J]. Water Research, 2000, **34**(6): 1773-1780.
- [21] Lee J H, Bang K W, Ketchum Jr. L H, *et al.* First flush analysis of urban storm runoff[J]. Science of the Total Environment, 2002, **293**(1-3): 163-175.
- [22] 张巍, 张树才, 万超, 等. 北京城市道路地表径流及相关介质中多环芳烃的源解析[J]. 环境科学, 2008, **29**(6): 1478-1483.
- [23] Larsen R K, Baker J E. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere: a comparison of three methods[J]. Environmental Science & Technology, 2003, **37**(9): 1873-1881.
- [24] Harrison R M, Smith D J T, Luhana L. Source apportionment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons collected from an urban location in Birmingham, U. K. [J]. Environmental Science & Technology, 1996, **30**(3): 825-832.
- [25] 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.
- [26] Masclet P, Mouvier G, Nikolaou K. Relative decay index and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons[J]. Atmospheric Environment, 1986, **20**(3): 439-446.
- [27] Kavouras I G, Koutrakis P, Tsapakis M, *et al.* Source apportionment of urban particulate aliphatic and polynuclear aromatic hydrocarbons (PAHs) using multivariate methods[J]. Environmental Science & Technology, 2001, **35**(11): 2288-2294.
- [28] Fraser M P, Cass G R, Simoneit B R T. Gas-phase and particle-phase organic compounds emitted from motor vehicle traffic in a Los Angeles roadway tunnel[J]. Environmental Science & Technology, 1998, **32**(14): 2051-2060.
- [29] Rogge W F, Hildemann L M, Mazurek M A, *et al.* Sources of fine organic aerosol. 2. Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavy-duty diesel trucks[J]. Environmental Science & Technology, 1993, **27**(4): 636-651.
- [30] 师荣光, 周启星, 蔡彦明, 等. 天津郊区土-水界面污染流多环芳烃的污染特征及来源解析[J]. 环境科学学报, 2010, **30**(4): 874-881.

CONTENTS

Variation Characteristics of Surface Ozone and Its Precursors During Summertime in Nanjing Northern Suburb	SHAO Ping, AN Jun-lin, YANG Hui, <i>et al.</i> (4031)
Distribution Characteristics of Pollution Gases and Water Soluble Ion in Aerosol During the Asian Youth Games of Nanjing, China	ZOU Jia-nan, AN Jun-lin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (4044)
Aerosol Concentration Variation in Nanjing During Asian Youth Games and the Relationship Between Aerosol Concentration and Visibility	YUAN Liang, YIN Yan, LI Qi, <i>et al.</i> (4052)
Characteristic Analysis of a Multi-day Pollution Event in Chang-Zhu-Tan Metropolitan Area During October 2013	LIAO Zhi-heng, FAN Shao-jia, HUANG Juan, <i>et al.</i> (4061)
Application of On-line Single Particle Aerosol Mass Spectrometry (SPAMS) for Studying Major Components in Fine Particulate Matter	FU Huai-yu, YAN Cai-qing, ZHENG Mei, <i>et al.</i> (4070)
Establishment and Application of Replaceable Source Profiles of PM ₁₀	CHEN Qiang, JING Yi, WU Huan-bo, <i>et al.</i> (4078)
Distribution, Flux and Biological Consumption of Carbon Monoxide in the East China Sea and the South Yellow Sea in Summer	WANG Jing, LU Xiao-lan, YANG Gui-peng, <i>et al.</i> (4085)
Spatial and Temporal Distribution of Mercury in Water of a Small Typical Agricultural Watershed in the Three Gorges Reservoir Region	WANG Ya, ZHAO Zheng, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (4095)
Fluorescence Characteristics of Fractionated Colloidal Organic Matter in Freshwater from Hunhe and Taizihe Watersheds	LIU Na-na, LI Bin, LIU Rui-xia, <i>et al.</i> (4103)
Variations of Annual Load of TN and TP in the Deep Bay Watershed, Shenzhen	ZHAO Chen-chen, ZHANG Shi-yan, MAO Xian-zhong (4111)
Characteristics and Bioavailability of Organic Phosphorus from Different Sources of Sediments in Dianchi Lake	XIONG Qiang, JIAO Li-xing, WANG Sheng-rui, <i>et al.</i> (4118)
Heavy Metals Distribution Characteristics and Ecological Risk Evaluation in Surface Sediments of Dammed Jinshan Lake	ZHOU Xiao-hong, LIU Long-mei, CHEN Xi, <i>et al.</i> (4127)
Vertical Distribution Pattern and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in a Sediment Core from Pumoyum Co, Tibet	XIE Ting, LUO Dong-xia, YANG Rui-qiang (4135)
Heavy Metals Pollution and Analysis of Seasonal Variation Runoff in Xi'an	YUAN Hong-lin, LI Xing-yu, WANG Xiao-chang (4143)
Distribution and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Urban Rainfall Runoff	WU Zi-lan, YANG Yi, LIU Min, <i>et al.</i> (4148)
Influence of the Substrate Composition in Extensive Green Roof on the Effluent Quality	CHEN Yu-lin, LI Tian, GU Jun-qing (4157)
Investigation of the Microbial Diversity and Structure of Biological Activated Carbon from Different Sources in Drinking Water Treatment Process	DU Er-deng, ZHENG Lu, FENG Xin-xin, <i>et al.</i> (4163)
Microcystin Safety Study During <i>Cyanobacteria</i> Removal by Pressure Enhanced Coagulation Process	JIANG Xin-yue, LUAN Qing, CONG Hai-bing, <i>et al.</i> (4171)
Membrane Fouling Based on Change of Membrane Characteristic Parameters During Ultrafiltration of Protein	WANG Xu-dong, ZHANG Yin-hui, WANG Lei, <i>et al.</i> (4176)
Impact Factors and Degradation Mechanism for the Ozonation of Acetaminophen in Aqueous Solution	CAO Fei, YUAN Shou-jun, ZHANG Meng-tao, <i>et al.</i> (4185)
Degradation of Benzothiazole in Electro-Assisted Microbial Reactor	LIU Chun-miao, DING Jie, LIU Xian-shu, <i>et al.</i> (4192)
Preparation and Evaluation of Fe-La Composite Oxide Nanoabsorbent for As(III) Removal from Aqueous Solutions	ZHANG Wei, CHEN Jing, ZHANG Gao-sheng (4198)
Physiological Responses of Tubificidae to Heavy Metal Chromium Stress	LOU Ju-qing, YANG Dong-ye, CAO Yong-qing, <i>et al.</i> (4205)
Effects of Light Quality on the Growth Characteristics and Biochemical Component of <i>Chlorella pyrenoidosa</i>	TANG Qing-qing, FANG Zhi-guo, JI Wen-wen, <i>et al.</i> (4212)
Influence of Alkalinity and DO on ANAMMOX Bioreactor at Normal Temperature and Low Substrate Concentration	REN Yu-hui, WANG Ke, LI Xiang-kun, <i>et al.</i> (4218)
Effect of Fe ²⁺ and Fe ³⁺ on the Activity of ANAMMOX	LI Xiang, HUANG Yong, WU Chuan, <i>et al.</i> (4224)
Research on Change Process of Nitrosation Granular Sludge in Continuous Stirred-Tank Reactor	YIN Fang-fang, LIU Wen-ru, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (4230)
Effects of Salinity on N ₂ O Production During Nitrification Using Aerobic Granular Sludge	WANG Shan-shan, LIANG Hong, GAO Da-wen (4237)
Analysis of Microbial Community Variation in the Domestication Process of Sludge in a Sulfate-reducing Reactor	ZENG Guo-qu, JIA Xiao-shan, ZHENG Xiao-hong, <i>et al.</i> (4244)
Quantifying the Influence of Different Matrices on Pb Accumulation in the Soil from Nanjing and Suspended Matter from the Lower of the Yangtze River with Pb Isotopic Technique	WANG Cheng, XIA Xue-qi, ZHANG Yi, <i>et al.</i> (4251)
Contamination Characteristics of Fluoroquinolones in Different Kinds of Soil Profiles in Southeast Suburb of Beijing	SU Si-hui, HE Jiang-tao, YANG Lei, <i>et al.</i> (4257)
Effect of Environmental Factors on the Formation of Several Typical Tetracycline Resistance Genes in Soil	ZHANG Jun, LUO Fang-yuan, XIONG Hao-hui, <i>et al.</i> (4267)
Response of Nitrification/Denitrification and Their Associated Microbes to Soil Moisture Change in Paddy Soil	LIU Ruo-xuan, HE Ji-zheng, ZHANG Li-mei (4275)
Microbial Community Abundance and Diversity in Typical Karst Ecosystem to Indicate Soil Carbon Cycle	JIN Zhen-jiang, TANG Hua-feng, LI Min, <i>et al.</i> (4284)
Effects of Variable Temperature on Organic Carbon Mineralization in Typical Limestone Soils	WANG Lian-ge, GAO Yan-hong, DING Chang-huan, <i>et al.</i> (4291)
Influence of the Interaction Between Iron Oxide and Electron Donor Substances on 1,1,1-Trichloro-2,2-bis(<i>p</i> -chlorophenyl)ethane (DDT) Reductive Dechlorination in Hydragic Acrisols	LIU Cui-ying, XU Xiang-hua, WANG Zhuang, <i>et al.</i> (4298)
Continuous Remediation of Heavy Metal Contaminated Soil by Co-Cropping System Enhanced with Chelator	WEI Ze-bin, GUO Xiao-fang, WU Qi-tang, <i>et al.</i> (4305)
Spatial Heterogeneity of Soil Respiration in a Subalpine Meadow at Different Sampling Scales	LI Hong-jian, GAO Yu-feng, YAN Jun-xia, <i>et al.</i> (4313)
Study on Regularity of Greenhouse Gas Emissions from Black Soil with Different Reclamation Years	LI Ping, LANG Man, XU Xiang-hua, <i>et al.</i> (4321)
Comparison Between Transgenic Insect-Resistant Cotton Expressing CryIAc Protein and Its Parental Variety in Rhizospheric Fungal Diversity	PAN Jian-gang, JIAO Hai-hua, BAI Zhi-hui, <i>et al.</i> (4329)
Concentrations of Mercury in Ambient Air in Wastewater Irrigated Area of Tianjin City and Its Accumulation in Leafy Vegetables	ZHENG Shun-an, HAN Yun-lei, ZHENG Xiang-qun (4338)
Combined Effects of 1-Nitropyrene and 1,2-Naphthoquinone on Cytotoxicity and DNA Damage in A549 Cells	SHANG Yu, JIANG Yu-ting, ZHANG Ling, <i>et al.</i> (4345)
Influence of Organic Matter Evolution During Composting on the Bioavailability of Heavy Metals	BU Gui-jun, YU Jing, DI Hui-hui, <i>et al.</i> (4352)
Carbonization of Heavy Metal Cu Implanted Sewage Sludge and Stability of Heavy Metal in the Resulting Char	DOU Xiao-min, CHEN De-zhen, DAI Xiao-hu (4359)
Technological Characteristics of Bioreactor Landfill with Aeration in the Upper Layer	TIAN Ying, WANG Shen, XU Qi-yong (4365)
Impact of Nitrate Continuous Injection on N ₂ O Releases from Bioreactor Landfill	BIAN Rong-xing, SUN Ying-jie, LI Jing-jing, <i>et al.</i> (4371)
Research on Contribution Decomposition by Industry to China's Carbon Intensity Reduction and Carbon Emission Growth	JIANG Jing-jing, YE Bin, JI Jun-ping, <i>et al.</i> (4378)
Shifting Path of Industrial Pollution Gravity Centers and Its Driving Mechanism in Pan-Yangtze River Delta	ZHAO Hai-xia, JIANG Xiao-wei, CUI Jian-xin (4387)
Method for Environmental Management in Paper Industry Based on Pollution Control Technology Simulation	ZHANG Xue-ying, WEN Zong-guo (4395)
Research Progress and Direction of Atmospheric Brown Carbon	YAN Cai-qing, ZHENG Mei, ZHANG Yuan-hang (4404)

《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11月15日 第35卷 第11期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 11 Nov. 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