

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第4期

Vol.37 No.4

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

2013年12月上海市重度污染期间细颗粒物化学特征与输送轨迹影响 周敏, 乔利平, 朱书慧, 李莉, 楼晟荣, 王红丽, 陶士康, 黄成, 陈长虹 (1179)

利用 SPAMS 研究华北乡村站点(曲周)夏季大气单颗粒物老化与混合状态 黄子龙, 曾立民, 董华斌, 李梅, 朱彤 (1188)

南京大气气溶胶混合态与云凝结核活化特征研究 朱麟, 马嫣, 郑军, 李时政, 王利朋 (1199)

北京地区不同天气条件下气溶胶数浓度粒径分布特征研究 苏捷, 赵普生, 陈一娜 (1208)

重庆市主城区 PM_{2.5} 时空分布特征 刘永林, 孙启民, 钟明洋, 钟部卿, 雒昆利 (1219)

大气细颗粒物中有机碳和元素碳监测方法对比 庞博, 吉东生, 刘子锐, 朱彬, 王跃思 (1230)

深圳市大气中全氟化合物的残留特征 何鹏飞, 张鸿, 李静, 何龙, 罗骥, 刘国卿, 沈金灿, 杨波, 崔晓宇 (1240)

北京上甸子站大气 CO₂ 及 δ¹³C(CO₂) 本底变化 夏玲君, 周凌晔, 刘立新, 张根 (1248)

梅雨期大学宿舍室内生物气溶胶浓度及粒径分布 刘婷, 李露, 张家泉, 占长林, 刘红霞, 郑敬茹, 姚瑞珍, 曹军骥 (1256)

城市黑臭水体空气微生物污染及健康风险 刘建福, 陈敬雄, 辜时有 (1264)

北京市典型室内外灰尘中重金属的粒径和季节变异特征及人体暴露评估 曹治国, 余刚, 吕香英, 王梦蕾, 李琦路, 冯精兰, 闫广轩, 余浩, 孙剑辉 (1272)

西安市地表灰尘中多环芳烃分布特征与来源解析 王丽, 王利军, 史兴民, 卢新卫 (1279)

PDMS 基涂层活性炭对甲苯、苯和丙酮吸附研究 刘寒冰, 姜鑫, 王新, 杨兵, 薛南冬, 张石磊 (1287)

海南东北部滨海湿地沉积物微量元素分布特征、来源及污染评价 张卫坤, 甘华阳, 闭向阳, 王家生 (1295)

曹妃甸围填海土壤重金属积累的磁化率指示研究 薛勇, 周倩, 李远, 章海波, 胡雪峰, 骆永明 (1306)

滇南蒙自地区降水稳定同位素特征及其水汽来源 李广, 章新平, 许有鹏, 宋松, 王跃峰, 季晓敏, 项捷, 杨洁 (1313)

江苏省浅水湖泊表层沉积物重金属 GIS 空间分布及生态风险评价 李莹杰, 张列宇, 吴易雯, 李曹乐, 杨天学, 唐军 (1321)

城市景观水体甲基汞的形成机制及微宇宙模拟研究 刘小红, 司友斌, 郭子薇, 杜成竹, 朱聪聪 (1330)

我国北方温带水库——周村水库季节性热分层现象及其水质响应特性 曾明正, 黄廷林, 邱晓鹏, 王亚平, 史建超, 周石磊, 刘飞 (1337)

额尔齐斯河源区融雪期积雪与河流的水化学特征 韦虹, 吴锦奎, 沈永平, 张伟, 刘世伟, 周嘉欣 (1345)

太原汾河景区浮游植物群落结构及其与环境因子关系分析 冯佳, 郭宇宁, 王飞, 吕俊平, 刘琪, 谢树莲, 程革, 张建民 (1353)

铜陵市河流沉积物中硝化和反硝化微生物分布特征 程建华, 窦智勇, 孙庆业 (1362)

基流对亚热带农业流域氮素输出的贡献研究 马秋梅, 李玮, 王毅, 刘新亮, 李勇, 吴金水 (1371)

重庆南山表层岩溶泉与地下河三氮运移及氮通量估算 张远瞩, 贺秋芳, 蒋勇军, 李勇 (1379)

山美水库沉积物氮磷和有机质污染特征及评价 邱祖凯, 胡小贞, 姚程, 张文慧, 许秋瑾, 黄天寅 (1389)

伊乐藻-固定化脱氮微生物技术对入贡湖河道脱氮机制的影响 韩华杨, 李正魁, 王浩, 朱倩 (1397)

环太湖不同性质河流水体磷的时空分布特征 高永霞, 宋玉芝, 于江华, 朱广伟 (1404)

藻类与扰动共存下水体中不同形态磷的数量分布规律 陈俊, 李勇, 李大鹏, 黄勇, 朱培颖 (1413)

扰动对悬浮颗粒物粒径及上覆水中磷形态分布的影响 郭俊锐, 李大鹏, 刘焱见 (1422)

锆改性高岭土覆盖对底泥与上覆水之间磷迁移转化的影响 章喆, 林建伟, 詹艳慧, 王虹 (1427)

电化学还原-氧化工艺降解 4-氯酚的毒性研究 王岩, 施钦, 王辉, 卞兆勇 (1437)

水合氧化铝负载的磁性核/壳结构 Fe₃O₄@SiO₂ 纳米颗粒对水中磷的去除及再利用 赖立, 谢强, 方文侃, 邢明超, 吴德意 (1444)

多环芳烃及其衍生物在北京典型污水处理厂中的存在及去除 乔梦, 齐维晓, 赵旭, 刘会娟, 曲久辉 (1451)

污水处理厂污泥水溶性有机物的光谱特性分析 牛天浩, 周振, 胡大龙, 魏海娟, 李晶, 窦微笑, 葛红花 (1460)

高含氟的光伏废水反硝化可行性及经济性分析 李祥, 朱亮, 黄勇, 杨朋兵, 崔剑虹, 马航 (1467)

连续流反应器短程硝化的快速启动与维持机制 吴鹏, 张诗颖, 宋吟吟, 徐乐中, 沈耀良 (1472)

反硝化颗粒污泥在纳米零价铁胁迫下的性能恢复 王翻翻, 钱飞跃, 沈耀良, 王建芳, 张月茹, 刘郭洵 (1478)

低浓度环丙沙星对曝气生物滤池生物膜硝化过程及硝化微生物的作用影响 何势, 顾超超, 魏欣, 黄圣琳, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (1485)

低碳源条件下改良双污泥系统脱氮除磷优化研究 杨伟强, 王冬波, 李小明, 杨麒, 徐秋翔, 张志贝, 李志军, 向海弘, 王亚利, 孙剑 (1492)

短期保护性耕作措施对大豆-冬小麦轮作系统温室气体排放的影响 谢燕, 陈曦, 胡正华, 陈书涛, 张寒, 凌慧, 申双和 (1499)

不同封育年限荒漠草原土壤呼吸日、季动态变化及其影响因子 崔海, 张亚红 (1507)

塔里木盆地南缘典型绿洲土壤有机碳、无机碳与环境因子的相关性 贡璐, 朱美玲, 刘曾媛, 张雪妮, 解丽娜 (1516)

小分子有机酸对紫色土及其溶液中 Pb 的赋存影响 刘江, 江韬, 黄容, 张进忠, 陈宏 (1523)

鸢尾对石油烃污染土壤的修复以及根系代谢分析 王亚男, 程立娟, 周启星 (1531)

水锰矿氧化水溶性硫化物过程及其影响因素 罗瑶, 李珊, 谭文峰, 刘凡, 蔡崇法, 邱国红 (1539)

高温纤维素降解菌群筛选及产酶特性 冯红梅, 秦永胜, 李筱帆, 周金星, 彭霞薇 (1546)

基于固相萃取及高效液相色谱-荧光检测分析的污泥中氟喹诺酮类抗生素研究方法的开发 戴晓虎, 薛勇刚, 刘华杰, 戴翎翎, 严寒, 李宁 (1553)

养殖场周边土壤-蔬菜系统磺胺类药物残留及风险评价 金彩霞, 司晓薇, 王子英, 张琴文 (1562)

4 种典型 PPCPs 对蚕豆和大蒜根尖细胞微核率的影响 王兰君, 王金凤, 朱鲁生, 王军, 赵祥 (1568)

新型污染物卤代吡啉的环境行为及生态毒理效应 林坤德, 陈艳秋, 袁东星 (1576)

水源地土壤环境保护优先区划分方法与实例研究 李蕾, 王铁宇, 王晓军, 肖荣波, 李奇锋, 彭驰, 韩存亮 (1584)

《环境科学》征订启事(1218) 《环境科学》征稿简则(1370) 信息(1352, 1412, 1498)

西安市地表灰尘中多环芳烃分布特征与来源解析

王丽, 王利军*, 史兴民, 卢新卫

(陕西师范大学旅游与环境学院, 西安 710119)

摘要: 采集了西安市地表灰尘样品 58 个, 利用 GC-FID 对其中 16 种优控多环芳烃 (PAHs) 进行含量分析, 在此基础上研究了其分布特征与环境来源。结果表明, 西安市地表灰尘中单体 PAH 的含量范围为 14.69 ~ 6370.48 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; 16 种 PAHs 总量 ($\sum_{16} \text{PAHs}$) 范围为 5039.67 ~ 47738.50 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 平均值为 13845.82 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。与国内外其他城市比较发现, 西安市地表灰尘中 PAHs 的含量相对较高。地表灰尘中 PAHs 主要由 4 环以上的高分子量 PAHs 构成, 7 种致癌芳烃 ($\sum_7 \text{CPAHs}$) 平均占 $\sum_{16} \text{PAHs}$ 的 46.08%。地表灰尘中 $\sum_{16} \text{PAHs}$ 的平均含量在工业区最高, 文教区、交通区和商业交通混合区含量次之, 住宅区和公园较低。地表灰尘中 $\sum_{16} \text{PAHs}$ 平均含量沿主城区-二环-三环由内向外呈增加趋势。地表灰尘中 $\sum_{16} \text{PAHs}$ 在东郊和西郊工业区、南郊和北二环重交通区相对较高, 主城区、北郊和城市东南部较低。比值法、聚类分析和主成分分析结果表明, 西安市地表灰尘中 PAHs 主要来源于化石燃料和煤的燃烧, 其中柴油燃烧和汽油燃烧的方差贡献率分别为 36.07% 和 32.31%, 煤燃烧方差贡献率为 23.40%。

关键词: 多环芳烃; 分布; 来源; 地表灰尘; 西安市

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)04-1279-08 DOI: 10.13227/j.hjkk.2016.04.012

Distribution Characteristics and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Surface Dust of Xi'an City, China

WANG Li, WANG Li-jun*, SHI Xing-min, LU Xin-wei

(College of Tourism and Environment, Shaanxi Normal University, Xi'an 710119, China)

Abstract: A total of 58 surface dust samples were collected from Xi'an city. The concentrations of 16 priority polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) were analyzed by gas chromatography with a flame ionization detector (GC-FID). At the same time, the distribution and sources of PAHs in surface dust were studied. The results showed that the concentrations of individual PAH ranged from 14.69 to 6370.48 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, and the total concentrations of 16 PAHs ($\sum_{16} \text{PAHs}$) ranged from 5039.67 to 47738.50 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, with a mean of 13845.82 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$. Compared to the $\sum \text{PAHs}$ levels of other cities, the $\sum_{16} \text{PAHs}$ in surface dust of Xi'an belonged to a relatively higher level. PAHs in surface dust were mainly dominated by high molecular weight PAHs with 4-6 rings and the concentration of 7 carcinogenic PAHs ($\sum_7 \text{CPAHs}$) accounted for 46.08% of $\sum_{16} \text{PAHs}$. The mean of $\sum_{16} \text{PAHs}$ in surface dust had the highest concentration at industrial area; followed by the educational area, traffic area, business and traffic area; residential area and parks showed relatively lower concentration. The average content of $\sum_{16} \text{PAHs}$ in surface dust presented an increasing trend along the main urban area-the second ring road-the third ring road. $\sum_{16} \text{PAHs}$ in surface dust had higher concentrations at the industrial areas of the east and west suburbs of Xi'an, the south suburb and the north section of the second ring road; $\sum_{16} \text{PAHs}$ concentrations in the main urban area, north suburb and southeast part of Xi'an were relatively lower. The results of ratio, cluster analysis and principal component analysis showed that PAHs in surface dust were mainly originated from the combustion of fossil fuels and coal combustion. Among them, diesel combustion reached 36.07%, gasoline combustion accounted for 32.31%, and coal combustion was responsible for 23.40%.

Key words: polycyclic aromatic hydrocarbons; distribution; source; surface dust; Xi'an City

多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 由两个或两个以上苯环构成, 是一类重要的环境有机污染物^[1]。PAHs 为亲脂性化合物, 拥有较低的水溶性以及较高的辛醇/水分配系数, 在空气中主要吸附于颗粒物表面^[2]。环境中多环芳烃的自然来源包括火山喷发、森林火灾及微生物的内源性合成^[3], 人为来源主要来源于化石燃料、煤、

木材等有机物的不完全燃烧, 工业排放, 交通释放, 废弃物焚烧及原油泄漏等^[4]。PAHs 对人体不仅产

收稿日期: 2015-09-15; 修订日期: 2015-11-24

基金项目: 国家自然科学基金项目(41271510); 陕西省自然科学基金项目(2014JM5208); 中央高校基本科研业务费专项(14SZYB15)

作者简介: 王丽(1992~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为地表环境过程, E-mail: 1174053468@qq.com

* 通讯联系人, E-mail: wanglijun@snnu.edu.cn

生致癌、致畸、致突变的“三致”效应,还可损害中枢神经,威胁人类的生存和繁衍^[5]. 因此,16种PAHs被美国环境保护署(US EPA)列为优先控制污染物,我国也将其中的7种PAHs纳入了水中优先控制污染物黑名单.

城市作为人类活动的中心,由于大量的工业生产、繁忙的交通运输以及较为迟缓的空气扩散,使得城市地表灰尘中PAHs大量累积^[6]. 城市地表灰尘在外力(如风力、车流等)作用下可再次悬浮于空气中,附着于灰尘上的PAHs可经过人体呼吸作用、皮肤吸收以及颗粒物直接摄入等途径进入人体,危害健康^[7]. 此外,地表灰尘中PAHs还可以通过城市地表径流进入水体,沉积物和水生生物食物链,对水环境产生危害^[8]. 目前,国外学者针对地表灰尘中PAHs,从污染特征、环境来源、健康风险等方面进行了大量的研究,例如关于埃及开罗^[9]、巴西尼泰罗伊^[10]、韩国蔚山^[11]、伊朗伊斯法罕^[12]等城市的地表灰尘中PAHs的研究. 国内学者也进行了相关研究,但大多集中于发达或工业城市,如广州^[13]、北京^[14]、天津^[15]、鞍山^[16]等. 目前西安城市地表灰尘的研究主要围绕重金属^[17],有关地表灰尘中PAHs的研究还鲜见报道.

西安是陕西省的省会,也是中国中西北地区重要的科研、教育、国防科技工业和高新技术产业基地,电子信息产业基地,航空和航天工业核心基地,是中国西部和北方内陆地区的金融中心^[18]. 目前,西安市的机动车辆数量已由2003年52万辆增加到2013年的186万辆^[19]. 同时,西安市冬季取暖以燃煤为主. 这些说明西安地区存在潜在的PAHs污染源. 因此,本文在西安市地表灰尘中PAHs含量分析的基础上主要研究其分布特征和环境来源,以期对西安市的环境保护和管理提供科学理论依据.

1 材料与方 法

1.1 样品采集及预处理

在实际调研的基础上,在西安市三环以内布设了58个地表灰尘采样点(如图1),其中交通区19个、商业交通混合区10个、住宅区8个、文教区8个、公园9个、工业区4个. 在天气晴好的条件下,至少连续一周,于2014年12月15~31日,在每个采样点,利用刷子及簸箕清扫3~5处地表灰尘样品,组成一个综合样品,每个样品约500g,放入棕色瓶中. 同时使用手持GPS定位每一个采样点的经度和纬度,并记录周围环境状况. 将所采集的地表灰

尘样品带回实验室,自然风干24h,过1mm的不锈钢筛,剔除砂粒及其他杂草、毛发等外来物,贮存于棕色广口瓶中,在-4℃下冷藏待分析.

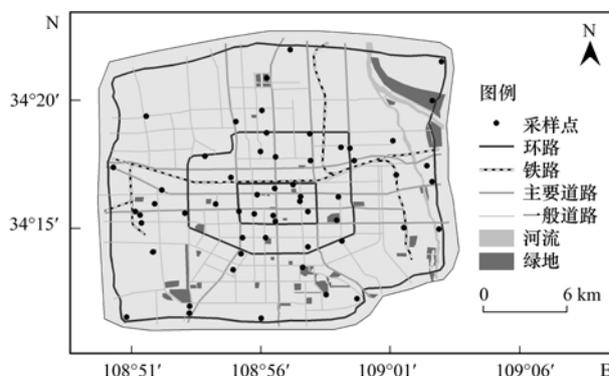


图1 西安市地表灰尘采样点示意

Fig. 1 Sampling sites of surface dust in Xi'an City

1.2 仪器与试剂

安捷伦 Agilent 7890A 型气相色谱仪,带 FID 检测器;美国奥泰 30 m × 0.25 mm × 0.25 μm 石英毛细管柱;昆山市超声仪器有限公司 KQ-300DE 型数控超声波清洗器;湖南凯达公司 TGL18M 型离心机;上海亚荣生化仪器厂 RE-52A 型旋转蒸发仪;ABSON 公司 NAS-12 型氮吹仪;玻璃层析柱(1 cm × 30 cm);索氏提取器.

正己烷、丙酮、二氯甲烷、甲醇均为色谱纯,购自美国 J. T. Baker 公司. 层析硅胶(80~100目,青岛海洋化工厂)和层析氧化铝(100~200目,国药集团化学试剂有限公司)使用前分别在 180℃ 和 250℃ 下灼烧 6 h 和 12 h,并加入 3% 超纯水活化;无水硫酸钠(分析纯,天津市化学试剂厂)使用前在 450℃ 下用马弗炉中灼烧 6 h. PAHs 混合标准溶液,包括萘(NaP)、苊烯(Acy)、苊(Ace)、芴(Flu)、菲(Phe)、蒽(Ant)、荧蒽(Fla)、芘(Pyr)、苯并[a]蒽(BaA)、䓛(Chy)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[a]芘(BaP)、二苯并[a,h]蒽(DBA)、茚并[1,2,3-c,d]芘(InP)和苯并[ghi]芘(BghiP),十氟联苯(替代标样,99.9%),均购自美国 Supelco 公司. 用甲醇配置成贮备溶液并稀释成标准梯度.

1.3 PAHs 提取与净化

称 5 g(精确至 0.001 g)灰尘样品于 50 mL 玻璃离心管中,加入 30 mL 正己烷和丙酮混合溶液(1:1,体积比),超声提取 30 min,以 3 000 r·min⁻¹ 的转速离心 10 min 进行固液分离,将上清液转移到 250 mL 旋转蒸发烧瓶中,再重复 2 次提取分离过程,合

并提取液. 将提取液旋转蒸发浓缩至 1~2 mL, 加入 20 mL 正己烷, 继续旋转蒸发浓缩至 1~2 mL, 完成溶剂转换. 然后过硅胶/氧化铝层析柱, 柱子自下而上依次为 6 cm 氧化铝、12 cm 硅胶和 1 cm 无水硫酸钠. 正己烷平衡后装样, 用 20 mL 正己烷和 70 mL 二氯甲烷与正己烷的混合溶液(3:7, 体积比) 分别淋洗脂肪烃和芳烃. 收集含芳烃淋洗液, 旋转蒸发浓缩至 1~2 mL, 转移至氮吹管, 在 N₂ 氛围下吹干, 用甲醇定容到 1 mL.

1.4 仪器分析

标准梯度和样品中的 PAHs 在 Agilent 7890A 型气相色谱仪(带 FID 检测器)上利用美国奥泰石英毛细管柱(30 m × 0.25 mm × 0.25 μm) 进行分离测定. 载气为高纯 N₂, 流速为 1 mL·min⁻¹. 色谱升温程序: 初始温度 65℃, 保持 0 min; 以 20℃·min⁻¹ 的升温速率升到 245℃, 保持 0 min; 再以 1℃·min⁻¹ 的升温速率升到 265℃, 保持 0 min; 最后以 4℃·min⁻¹ 的升温速率升到 295℃, 保持 0 min. 其他色谱条件为: 进样口温度 280℃; 进样模式无分流进样; 进样量 1 μL; 检测器温度为 300℃. 样品中 PAHs 采用保留时间进行定性, 利用外标法进行定量.

1.5 质量保证与质量控制

实验过程中严格禁止使用塑料器皿. 所有玻璃

器皿均在重铬酸钾洗液中浸泡过夜, 分别用自来水、蒸馏水和超纯水清洗 3 次并烘干, 使用前用相应有机溶剂润洗. 以 3 倍信噪比计算方法的检出限, 结果为 Nap、Acy、Ace、Flu、Phe、Ant、Fla、Pyr、BaA、Chy、BbF、BkF、BaP、DBA、BghiP 和 InP 检出限分别为 1.20、0.60、0.60、0.60、0.60、0.60、1.00、1.20、2.40、2.40、2.40、2.40、3.00、4.00、4.60 和 3.40 μg·kg⁻¹. 替代标样回收率范围为 76%~110%, 平均值 98%. 基质加标回收率在 66%~122%. 对 10% 的样品进行重复实验, 重复结果的相对标准偏差(RSD)在 10% 以内.

2 结果与讨论

2.1 地表灰尘中 PAHs 的含量水平

表 1 是西安市地表灰尘中 PAHs 的描述性统计结果. 从中可知, 西安市地表灰尘中 US EPA 优控的 16 种 PAHs 全部检出. 单体多环芳烃的含量范围为 14.69~6370.48 μg·kg⁻¹. 16 种 PAHs 的总量 ($\sum_{16} \text{PAHs}$) 范围在 5039.67~47738.50 μg·kg⁻¹, 平均值为 13845.82 μg·kg⁻¹. 强致癌物 BaP 的含量范围为 60.08~4115.65 μg·kg⁻¹, 平均值是 809.25 μg·kg⁻¹, 平均占 $\sum_{16} \text{PAHs}$ 的质量分数为 4.89%.

表 1 西安市地表灰尘中 PAHs 的描述性统计结果/μg·kg⁻¹

Table 1 Descriptive statistic result of PAHs in urban surface dust of Xi'an/μg·kg⁻¹

PAHs	环数	最小值	最大值	平均值	中位数	标准偏差	变异系数
Nap	2	57.44	1583.26	240.54	156.01	247.17	1.03
Acy	3	80.37	631.14	179.27	141.77	110.57	0.62
Ace	3	31.38	838.29	119.61	81.10	133.12	1.11
Flu	3	59.59	829.56	301.29	224.54	200.52	0.67
Phe	3	559.02	4395.05	1559.32	1436.53	708.55	0.45
Ant	3	106.55	1403.70	582.97	548.43	286.23	0.49
Fla	4	868.54	6370.48	1920.26	1688.75	993.12	0.52
Pyr	4	363.85	5607.86	1378.89	1150.24	907.86	0.66
BaA	4	141.96	1999.91	713.92	574.48	485.73	0.68
Chy	4	452.97	4159.34	1447.57	1084.46	843.11	0.58
BbF	5	207.11	4766.44	1011.75	741.66	828.41	0.82
BkF	5	14.69	3381.71	877.10	591.30	748.96	0.85
BaP	5	60.08	4115.65	809.25	430.07	841.79	1.04
InP	5	53.70	5264.11	902.47	614.29	929.36	1.03
DBA	6	29.87	2862.40	617.56	357.63	689.19	1.12
BghiP	6	74.82	5289.63	1184.05	995.99	1048.46	0.89
$\sum_{16} \text{PAHs}$		5039.67	47738.50	13845.82	11264.68	7866.79	0.57
$\sum_7 \text{CPAHs}$		1877.97	26002.88	6379.62	4335.18	4790.20	0.75
$\sum \text{COMB}$		3491.37	40733.18	10245.26	7855.51	7866.79	0.57
$\sum \text{LMWPAHs}$		1035.84	7360.64	2983.01	2687.35	1284.76	0.43
$\sum \text{HMWPAHs}$		3695.37	43270.84	10862.82	8262.55	6725.06	0.66

表2是西安市与国内外其他城市地表灰尘中PAHs总量的比较结果。从中可知,与国内外其他城市相比,西安市地表灰尘中 \sum_{16} PAHs含量低于韩国蔚山、约旦安曼以及国内的上海等城市,但高于新西兰达尼丁、巴西尼泰罗伊和国内的新乡、贵阳、广州、兰州和天津等地。由比较可知,西安市地表灰尘中 \sum_{16} PAHs含量相对来说处于较高水平。

表2 不同城市地表灰尘中 \sum PAHs的含量比较

Table 2 Concentration comparison of \sum PAHs in urban surface dust from different cities

城市	\sum PAHs 含量/ $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	文献
安曼,约旦	13 200 ~ 50 000	[20]
达尼丁,新西兰	1 200 ~ 11 600	[21]
尼泰罗伊,巴西	2 120 ~ 5 060	[10]
蔚山,韩国	45 750 ~ 112 130	[11]
上海,中国(冬季)	9 176 ~ 32 573	[22]
新乡,中国	42 ~ 8 721	[23]
贵阳,中国	88 ~ 13 193	[24]
广州,中国	840 ~ 12 300	[13]
兰州,中国	1 240 ~ 10 700	[25]
天津,中国	538 ~ 34 300	[15]
西安,中国	5 040 ~ 47 739	本研究

2.2 地表灰尘中PAHs的构成特征

地表灰尘中PAHs的构成特征在一定程度上能够反映环境中PAHs的环境来源及其潜在风险。西安市地表灰尘比较丰富的PAHs是Fla(13.87%)、Phe(11.26%)、Chy(10.45%)和Pyr(9.96%),BghiP(8.55%)、BbF(7.31%)、InP(6.52%)、BkF(6.33%)、BaP(5.84%)、BaA(5.16%)、DBA(4.46%)和Ant(4.21%)次之,Flu(2.18%)、NaP(1.74%)、Acy(1.29%)和Ace(0.86%)相对较低。西安市地表灰尘中2~3环PAHs的质量分数为21.54%,4环PAHs的质量分数为39.44%,5~6环PAHs占39.02%。结果表明,西安市地表灰尘中PAHs主要以高环PAHs为主。这可能是由于低环PAHs分子量较低,主要以气态形式存在,较易挥发和降解;高环PAHs分子量较大,大多以颗粒态形式存在,较稳定且不易挥发,可在环境中长期滞留^[26]。

另外,西安市地表灰尘中高分子量PAHs(\sum HMWPAHs,包括Pyr、BaA、Chy、BbF、BkF、BaP、DBA、BghiP和InP)的平均含量为10 862.82 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,是低分子量PAHs(\sum LMWPAHs,包括NaP、Acy、Ace、Flu、Phe、Ant和Fla)平均含量的3

倍(表1)。西安市地表灰尘中特定燃烧化合物(\sum COMB,包括Fla、Pyr、BaA、Chy、BbF、BkF、BaP、InP和BghiP)的含量范围是3 491.37 ~ 40 733.18 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,平均值为10 245.26 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,平均占 \sum_{16} PAHs的74.00%(表1)。由此可以推断,西安市地表灰尘中PAHs可能来自于各种高温热解和燃烧过程。

此外,西安市地表灰尘中7种致癌多环芳烃(\sum_7 CPAHs,包括BaA、Chy、BbF、BkF、BaP、DBA和InP)的含量范围为1 877.97 ~ 26 002.88 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,平均值为6 379.62 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$,平均占 \sum_{16} PAHs的46.08%(表1)。这表明西安市地表灰尘中PAHs可能存在较大的潜在致癌风险。

2.3 地表灰尘中PAHs的分布特征

西安市不同区域地表灰尘中单体PAH分布如图2所示。由图2(a)可知,西安市不同功能区地表灰尘中除Ace含量在交通区最高以外,其余单体PAH含量均在工业区最大。图2(b)为PAH沿主城

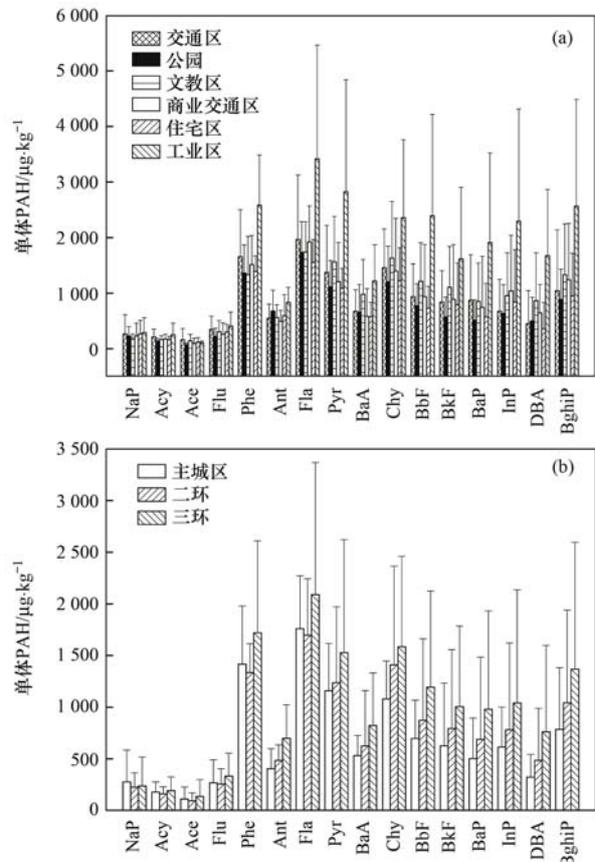


图2 不同区域地表灰尘中单体PAHs含量

Fig. 2 Concentrations of individual PAH in urban surface dust from different districts of Xi'an

区-二环-三环的分布情况. 除 NaP 含量在主城区最高外,其余各组分均在三环内最大. 高环 PAHs 中除 Fla 外,其余各组分的分布规律均为主城区 < 二环 < 三环.

图 3 为不同区域地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 和 \sum_7 CPAHs 平均含量的比较. 从中可知,各区域地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 的平均含量在工业区最高,文教区、交通区和商业交通混合区次之(且明显低于工业区),住宅区和公园地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 较低,这表明除工业生产排放外,商业活动和交通释放等对城市地表灰尘中 PAHs 也有一定贡献. 7 种致癌芳烃在各功能区中的分布情况为工业区 > 文教区 > 商业交通混合区 > 交通区 > 住宅区 > 公园,表明在工业区和文教区地表灰尘中 PAHs 存在较大的致癌风险. 从城内到城外,地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 和 \sum_7 CPAHs 的分布情况为主城区 < 二环 < 三环,说明西安市地表灰尘中 PAHs 含量随距城市中心距离的增加呈递增趋势,且城外有较大的致癌风险.

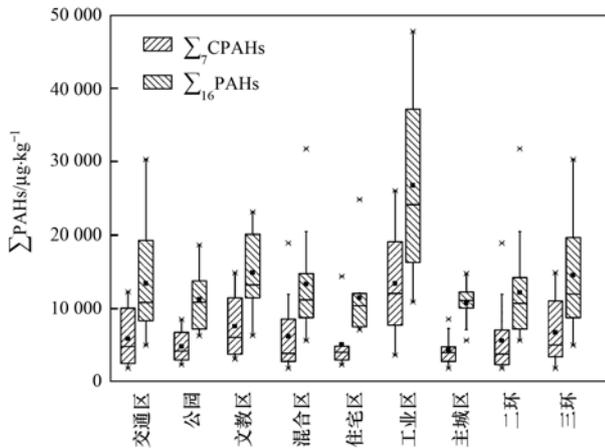


图 3 不同区域地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 和 \sum_7 CPAHs 的含量

Fig. 3 Concentrations of \sum_{16} PAHs and \sum_7 CPAHs in urban surface dust from different functional districts of Xi'an

此外,利用 ArcGIS 对西安市地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 进行空间分析(见图 4). 由图 4 可知,在三环和二环之间,东郊和西郊大部分样点地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 含量明显较高. 这可能是由于西安市工业区多集中于这两地,如西郊有热电厂、钢铁厂等,东郊有纺织城、灞桥热电厂等,纺织城客运站也位于东郊,工业生产和交通排放可能是主要贡献者. 南郊地区经济快速发展,交通网线日益发达. 北二

环商业发达,如龙首商业区等,此地亦为西安市主要交通区. 因此,商业和交通影响着南郊和北二环地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 含量. 与之相反,主城区、北郊和城市东南部地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 含量相对较低. 虽然主城区人口密集,人为活动频繁,但大多为商业活动,除了汽车尾气排放较多外其他污染源较少. 北郊为经济技术开发区,基本无大型污染源. 城市东南部是旅游景点相对集中的一个区域,如大雁塔、曲江遗址公园等,绿化面积广. 所以这些区域地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 含量较低. 此外,城市道路清扫使粗颗粒灰尘减少,细颗粒灰尘增加,也会影响到地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 的分布.

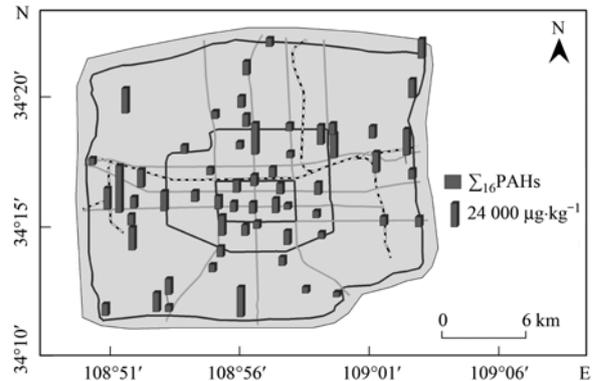


图 4 西安市地表灰尘中 \sum_{16} PAHs 空间分布特征

Fig. 4 Spatial distribution characteristics of \sum_{16} PAHs in urban surface dust of Xi'an

2.4 地表灰尘中 PAHs 的来源解析

2.4.1 比值法

环境中多环芳烃有较为复杂的来源. 不同成因的 PAHs 在构成上有一定的差异性,不同环数的 PAHs,其相对丰度可以反映来自热解源或石油源^[27]. 2~3 环的低分子量 PAHs 通常来源于石油类产品的泄漏,4 环以上的高分子量 PAHs 主要来源于有机物的不完全燃烧,因此通过低分子量和高分子量多环芳烃的比值可以判断其来源^[28]. Soclo 等^[29]指出,低分子量与高分子量 PAHs 比值 (LMWPAHs/HMWPAHs) 小于 1,表明多环芳烃主要来源于燃烧源;反之则表明多环芳烃主要来源于石油类污染. 在本研究中,LMWPAHs/HMWPAHs 比值均小于 1,这表明西安市地表灰尘中 PAHs 主要来源于热解源. 此外,特征燃烧化合物与 PAHs 总量的比值 (\sum COMB / \sum_{16} PAHs) 也可以表征环境中 PAHs 的来源,若 \sum COMB / \sum_{16} PAHs 大于 0.50,

则表明 PAHs 来源于燃烧过程^[30, 31]. 在本研究中, $\sum \text{COMB} / \sum_{16} \text{PAHs}$ 介于 0.50 ~ 0.90 之间, 进一步表明燃烧源为西安市地表灰尘中 PAHs 的主要来源.

有研究结果表明^[32, 33], $0 < \text{Fla} / (\text{Fla} + \text{Pyr}) < 0.40$ 和 $0 < \text{InP} / (\text{InP} + \text{BghiP}) < 0.20$ 时, 表示 PAHs 主要来源于石油类污染; $0.40 < \text{Fla} / (\text{Fla} + \text{Pyr}) < 0.50$ 和 $0.20 < \text{InP} / (\text{InP} + \text{BghiP}) < 0.50$ 时, 表示 PAHs 主要来源于石油及精炼产品的不完全燃烧; 当 $\text{Fla} / (\text{Fla} + \text{Pyr}) > 0.50$ 和 $\text{InP} / (\text{InP} + \text{BghiP}) > 0.50$ 时, 表示 PAHs 主要来源于木材、煤炭和草类的不完全燃烧. 这两组同分异构体的分子量相同且具有一定热力学稳定性, 能用于环境中 PAHs 的来源解析^[26]. 此外, $\text{BaP} / \text{BghiP}$ 也可用来表征环境中 PAHs 来源^[34 ~ 36]. $0.30 < \text{BaP} / \text{BghiP} < 0.40$ 和 $0.46 < \text{BaP} / \text{BghiP} < 0.81$ 分别表示 PAHs 主要来源于汽油燃烧和柴油燃烧, $0.90 < \text{BaP} / \text{BghiP} < 6.60$ 则表示煤燃烧为主要来源.

图 5 为西安市地表灰尘中 $\text{Fla} / (\text{Fla} + \text{Pyr})$ 和 $\text{InP} / (\text{InP} + \text{BghiP})$ 的比值. 从中可知, 西安市 58 个地表灰尘样中除 4 个样点 $\text{Fla} / (\text{Fla} + \text{Pyr})$ 处于 0.40 ~ 0.50 范围内, 其余样点均大于 0.50, 表明西安市地表灰尘中 PAHs 主要来源于煤和草木燃烧. $\text{InP} / (\text{InP} + \text{BghiP})$ 有 43 个样点均落在 0.20 ~ 0.50 之间, 表明油类燃烧为主要来源, 与 $\text{Fla} / (\text{Fla} + \text{Pyr})$ 分析结果不一致, 这种情况同样也出现在其他的研究中^[14, 37]. $\text{BaP} / \text{BghiP}$ 分别有 8 和 18 个值处于 0.30 ~ 0.40 和 0.46 ~ 0.81 之间, 落在 0.90 ~ 6.6 范围内有 20 个值, 这表明 PAHs 来源中油类燃烧略多于煤

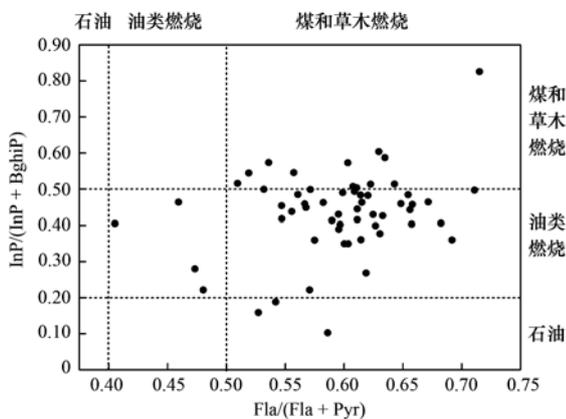


图 5 西安市地表灰尘中 $\text{Fla} / (\text{Fla} + \text{Pyr})$ 和 $\text{InP} / (\text{InP} + \text{BghiP})$ 比值

Fig. 5 Ratios of $\text{Fla} / (\text{Fla} + \text{Pyr})$ and $\text{InP} / (\text{InP} + \text{BghiP})$ in urban surface dust of Xi'an

燃烧, 但总体差异不大. 特征比值分析表明, 西安市地表灰尘 PAHs 主要来源于油类燃烧和煤燃烧.

2.4.2 多元统计分析

特征比值法属于 PAHs 来源辨析中的一种定性及半定量方法, 为进一步定量分析西安市地表灰尘中 PAHs 的来源, 聚类分析 (CA) 和主成分分析 (PCA) 被应用于此. 由于 PAHs 为半挥发性有机物, 低环 PAHs 主要为气态, 在环境中不稳定、易挥发; 4 环芳烃为过渡带, 在气态和颗粒态中都不容忽视, 因此主要采用高环数的 PAHs 进行分析^[38]. 图 6 是西安市地表灰尘中 PAHs 的聚类分析结果. 从中可知, 聚类分析将西安市地表灰尘中 10 种 PAHs 分为 3 类: Chy、BbF、BaA、BkF 和 BaP 组成第一类 (C1); 第二类 (C2) 包括 Fla 和 Pyr; InP、BghiP 和 DBA 构成了第三类 (C3).

在聚类分析的基础上进一步进行主成分分析, 可通过每一个因子所指示出的具有代表性的化学标识物, 从而鉴定其特定的来源^[39]. Kaiser-Meyer-Olkin 和 Bartlett 的检验结果分别为 0.88 和 798.46, 表明西安市地表灰尘中 PAHs 满足主成分分析要求. 主成分分析提取了 3 个特征值大于 1 的因子, 解释了 91.78% 的总方差 (表 3). 因子 1 (PC1) 中载荷较高的组分包括 BaA、Chy、BbF、BkF 和 BaP, 方差贡献率达 30.07%; 因子 2 (PC2) 解释了总方差的 32.31%, 主要组分为 DBA、BghiP、InP 和 BaP; Fla 和 Pyr 是因子 3 (PC3) 中载荷较高的芳烃, 方差贡献率为 23.40%. 这与聚类分析结果基本一致.

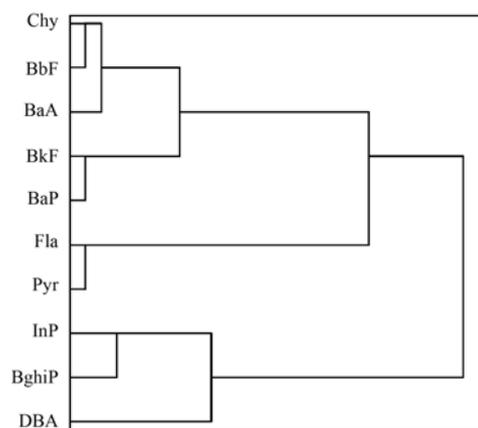


图 6 西安地表灰尘中 PAHs 聚类分析

Fig. 6 Cluster analysis of PAHs in urban surface dust of Xi'an

在 PC1 或 C1 中, BbF、BkF、BaA 和 Chy 主要是柴油发动机尾气排放的特征指示物^[13, 40], 因此 PC1 或 C1 代表柴油的燃烧. InP 和 BghiP 为汽油发动机尾气排放的特征标识物^[10, 41, 42], 因此 PC2 或 C3 表

征的是汽油燃烧排放源. Fla 和 Pyr 通常是煤燃烧的指示物^[14, 40], 因此 PC3 和 C2 代表燃煤源.

表 3 西安市地表灰尘中 PAHs 主成分分析¹⁾

Table 3 Principal component analysis of PAHs in urban surface dust of Xi'an

PAHs	因子 1	因子 2	因子 3	共同度
Fla	0.28	0.18	0.92	0.97
Pyr	0.53	0.26	0.78	0.96
BaA	0.86	0.21	0.34	0.90
Chy	0.84	0.33	0.36	0.95
BbF	0.71	0.44	0.50	0.95
BkF	0.77	0.51	0.24	0.91
BaP	0.62	0.65	0.32	0.90
InP	0.36	0.78	0.41	0.90
DBA	0.17	0.91	0.06	0.85
BghiP	0.40	0.82	0.24	0.89
初始特征值	3.61	3.23	2.34	
方差贡献率%	36.07	32.31	23.40	
累积方差贡献率%	36.07	68.38	91.78	

1) 黑体字表示因子载荷大于 0.6

3 结论

(1) 西安市地表灰尘中 16 种 PAHs 均全部检出, 其总量 ($\sum_{16} \text{PAHs}$) 范围为 5 039.67 ~ 47 738.50 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 平均值 13 845.82 $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$. 与国内外其他城市地表灰尘中 PAHs 比较发现, 西安市地表灰尘中 PAHs 含量相对较高. 西安市地表灰尘中 PAHs 主要由 4 环以上的高分子量 PAHs 构成, 且 7 种致癌芳烃 ($\sum_7 \text{CPAHs}$) 比重较大.

(2) 西安市地表灰尘中 $\sum_{16} \text{PAHs}$ 平均含量在工业区含量最高, 其次是文教区、交通区和商业交通混合区, 住宅区和公园含量较低. 地表灰尘中 $\sum_{16} \text{PAHs}$ 沿着主城区-二环-三环呈增加趋势. 地表灰尘中 $\sum_{16} \text{PAHs}$ 在东郊和西郊、北二环和南郊等地含量较高, 主城区、北郊和城市东南部相对较低.

(3) 西安市地表灰尘中 PAHs 主要来源于化石燃料和煤的燃烧, 其中柴油燃烧和汽油燃烧的方差贡献率分别为 36.07% 和 32.31%, 煤燃烧方差贡献率为 23.40%.

参考文献:

- [1] Ravindra K, Wauters E, Van Grieken R. Variation in particulate PAHs levels and their relation with the transboundary movement of the air masses[J]. *Science of the Total Environment*, 2008, **396**(2-3): 100-110.
- [2] Maertens R M, Bailey J, White P A. The mutagenic hazards of settled house dust: a review[J]. *Mutation Research/Reviews in Mutation Research*, 2004, **567**(2-3): 401-425.
- [3] Hwang H M, Wade T L, Sericano J L. Concentrations and source characterization of Polycyclic aromatic hydrocarbons in Pine needles from Korea, Mexico, and United States [J]. *Atmospheric Environment*, 2003, **37**(16): 2259-2267.
- [4] 李红, 曾凡刚, 邵龙义, 等. 可吸入颗粒物对人体健康危害的研究进展[J]. *环境与健康杂志*, 2002, **19**(1): 85-87.
- [5] 段小丽, 陶澍, 徐东群, 等. 多环芳烃污染的人体暴露和健康风险评估方法[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2011. 10-21.
- [6] Caricchia A M, Chiavarini S, Pezza M. Polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmospheric particulate matter in the city of Naples (Italy)[J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(23): 3731-3738.
- [7] 韩菲. 多环芳烃来源与分布及迁移规律研究概述[J]. *气象与环境学报*, 2007, **23**(4): 57-61.
- [8] Jones K C. Contaminant trends in soils and crops [J]. *Environmental Pollution*, 1991, **69**(4): 311-325.
- [9] Hassanien M A, Abdel-Latif N M. Polycyclic aromatic hydrocarbons in road dust over Greater Cairo, Egypt[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2008, **151**(1): 247-254.
- [10] Netto A D P, Krauss T M, Cunha I F, et al. PAHs in SD: polycyclic aromatic hydrocarbons levels in street dust in the central area of Niterói City, RJ, Brazil[J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2006, **176**(1-4): 57-67.
- [11] Kwon H O, Choi S D. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in soils from a multi-industrial city, South Korea[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **470-471**: 1494-1501.
- [12] Soltani N, Keshavarzi B, Moore F, et al. Ecological and human health hazards of heavy metals and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in road dust of Isfahan metropolis, Iran [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **505**: 712-723.
- [13] Wang W, Huang M J, Kang Y, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in urban surface dust of Guangzhou, China: Status, Sources and human health risk assessment[J]. *Science of the Total Environment*, 2011, **409**(21): 4519-4527.
- [14] 向丽, 李迎霞, 史江红, 等. 北京城区道路灰尘重金属和多环芳烃污染状况探析[J]. *环境科学*, 2010, **31**(1): 159-167.
- [15] Yu B B, Xie X J, Ma L Q, et al. Source, distribution, and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in urban street dust from Tianjin, China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, **21**(4): 2817-2825.
- [16] Han B, Bai Z P, Guo G H, et al. Characterization of PM₁₀ fraction of road dust for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) from Anshan, China [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **170**(2-3): 934-940.
- [17] Han Y M, Du P X, Cao J J, et al. Multivariate analysis of heavy Metal contamination in urban dusts of Xi'an, Central China[J]. *Science of the Total Environment*, 2006, **355**(1-3): 176-186.
- [18] 陈秀端, 卢新卫, 赵彩凤, 等. 西安市二环内表层土壤重金

- 属空间分布特征[J]. 地理学报, 2011, **66**(9): 1281-1288.
- [19] 西安市统计局, 国家统计局西安调查队. 西安统计年鉴[M]. 北京: 中国统计出版社, 2014.
- [20] Jiries A. Vehicular contamination of dust in Amman, Jordan[J]. The Environmentalist, 2003, **23**(3): 205-210.
- [21] Brown J N, Peake B M. Sources of heavy metals and polycyclic aromatic hydrocarbons in urban stormwater runoff[J]. Science of the Total Environment, 2006, **359**(1-3): 145-155.
- [22] 程书波, 刘敏, 欧冬妮, 等. 上海市地表灰尘中PAHs的来源辨析[J]. 中国环境科学, 2007, **27**(5): 589-593.
- [23] 郭佳佳. 新乡市道路灰尘中典型 POPs 的污染特征研究[D]. 新乡: 河南师范大学, 2012. 11-15.
- [24] 王娅, 贺华中, 林野, 等. 贵阳市道路地表灰尘中多环芳烃的分布特征及生态风险评估[J]. 华中师范大学学报(自然科学版), 2012, **46**(4): 483-487.
- [25] Jiang Y F, Hu X F, Yves U J, *et al.* Status, source and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in street dust of an industrial city, NW China [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2014, **106**: 11-18.
- [26] 师阳, 孙玉川, 梁作兵, 等. 重庆金佛山土壤中PAHs含量的海拔梯度分布及来源解析[J]. 环境科学, 2015, **36**(4): 1417-1424.
- [27] 张淑红, 杨广礼, 洪权春, 等. 商丘市包河表层沉积物中多环芳烃污染初步研究[J]. 中国环境监测, 2011, **27**(1): 69-71.
- [28] 孙小静, 石纯, 许世远, 等. 上海北部郊区土壤多环芳烃含量及来源分析[J]. 环境科学研究, 2008, **21**(4): 140-144.
- [29] Soclo H H, Garrigues P, Ewald M. Origin of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in coastal marine sediments: case studies in Cotonou (Benin) and Aquitaine (France) areas[J]. Marine Pollution Bulletin, 2000, **40**(5): 387-396.
- [30] Fu S, Cheng H X, Liu Y H, *et al.* Composition, distribution, and characterization of polycyclic aromatic hydrocarbons in soil in Linfen, China[J]. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 2009, **82**(2): 167-171.
- [31] Xiao R, Bai J H, Wang J J, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in wetland soils under different land uses in a coastal estuary: toxic levels, sources and relationships with soil organic matter and water-stable aggregates [J]. Chemosphere, 2014, **110**: 8-16.
- [32] 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.
- [33] Rocher V, Azimi S, Moillieron R, *et al.* Hydrocarbons and heavy metals in the different sewer deposits in the 'Le Marais' catchment (Paris, France): stocks, distributions and origins [J]. Science of the Total Environment, 2004, **323**(1-3): 107-122.
- [34] 张健, 樊曙先, 孙玉, 等. 厦门春季PM₁₀中PAHs成分谱特征及其与气象要素的相关性分析[J]. 环境科学, 2015, **36**(4): 1173-1181.
- [35] 毕丽玫, 郝吉明, 宁平, 等. 昆明城区大气PM_{2.5}中PAHs的污染特征及来源分析[J]. 中国环境科学, 2015, **35**(3): 659-667.
- [36] 周颖, 周家斌, 王磊, 等. 武汉秋冬季大气PM_{2.5}中多环芳烃的分布特征及来源[J]. 生态环境学报, 2013, **22**(3): 506-511.
- [37] Wei Y L, Bao L J, Wu C C, *et al.* Association of soil polycyclic aromatic hydrocarbon levels and anthropogenic impacts in a rapidly urbanizing region: Spatial distribution, soil-air exchange and ecological risk[J]. Science of the Total Environment, 2014, **473-474**: 676-684.
- [38] 周变红, 张承中, 王格慧. 西安城区大气中多环芳烃的季节变化特征及健康风险评估[J]. 环境科学学报, 2012, **32**(9): 2324-2331.
- [39] Ravindra K, Sokhi R, Van Grieken R. Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons: source attribution, emission factors and regulation [J]. Atmospheric Environment, 2008, **42**(13): 2895-2921.
- [40] Khairy M A, Lohmann R. Source apportionment and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmospheric environment of Alexandria, Egypt[J]. Chemosphere, 2013, **91**(7): 895-903.
- [41] Marr L C, Kirchstetter T W, Harley R A. Characterization of polycyclic aromatic hydrocarbons in motor vehicle fuels and exhaust emissions [J]. Environmental Science & Technology, 1999, **33**(18): 3091-3099.
- [42] Simecik M F, Eisenreich S J, Lioy 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.

CONTENTS

Chemical Characteristics of Particulate Matters and Trajectory Influence on Air Quality in Shanghai During the Heavy Haze Episode in December, 2013	ZHOU Min, QIAO Li-ping, ZHU Shu-hui, <i>et al.</i> (1179)
Analysis of Single Particle Aging and Mixing State at an Agriculture Site (Quzhou) in the North China Plain in Summer Using a Single Particle Aerosol Mass Spectrometer	HUANG Zi-long, ZENG Li-min, DONG Hua-bin, <i>et al.</i> (1188)
Investigation of Aerosol Mixed State and CCN Activity in Nanjing	ZHU Lin, MA Yan, ZHENG Jun, <i>et al.</i> (1199)
Characteristics of Number Concentration Size Distributions of Aerosols Under Different Weather Processes in Beijing	SU Jie, ZHAO Pu-sheng, CHEN Yi-na (1208)
Temporal and Spatial Distribution Characteristics of PM _{2.5} in Chongqing Urban Areas	LIU Yong-lin, SUN Qi-min, ZHONG Ming-yang, <i>et al.</i> (1219)
Comparison of Monitoring Methods of Organic Carbon and Element Carbon in Atmospheric Fine Particles	PANG Bo, JI Dong-sheng, LIU Zi-rui, <i>et al.</i> (1230)
Residue Characteristics of Perfluorinated Compounds in the Atmosphere of Shenzhen	HE Peng-fei, ZHANG Hong, LI Jing, <i>et al.</i> (1240)
Monitoring Atmospheric CO ₂ and δ ¹³ C(CO ₂) Background Levels at Shangdianzi Station in Beijing, China	XIA Ling-jun, ZHOU Ling-xi, LIU Li-xin, <i>et al.</i> (1248)
Concentration and Size Distribution of Bioaerosols in Indoor Environment of University Dormitory During the Plum Rain Period	LIU Ting, LI Lu, ZHANG Jia-quan, <i>et al.</i> (1256)
Air Microbial Pollution and Health Risk of Urban Black Odorous Water	LIU Jian-fu, CHEN Jing-xiong, GU Shi-you (1264)
Particle Size Distribution, Seasonal Variation Characteristics and Human Exposure Assessment of Heavy Metals in Typical Settled Dust from Beijing	CAO Zhi-guo, YU Gang, LÜ Xiang-ying, <i>et al.</i> (1272)
Distribution Characteristics and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Surface Dust of Xi'an City, China	WANG Li, WANG Li-jun, SHI Xing-min, <i>et al.</i> (1279)
Toluene, Benzene and Acetone Adsorption by Activated Carbon Coated with PDMS	LIU Han-bing, JIANG Xin, WANG Xin, <i>et al.</i> (1287)
Distribution Characteristics, Sources and Pollution Assessment of Trace Elements in Surficial Sediments of the Coastal Wetlands, Northeastern Hainan Island	ZHANG Wei-kun, GAN Hua-yang, BI Xiang-yang, <i>et al.</i> (1295)
Heavy Metals Accumulation in the Caofeidian Reclamation Soils: Indicated by Soil Magnetic Susceptibility	XUE Yong, ZHOU Qian, LI Yuan, <i>et al.</i> (1306)
Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation and Their Moisture Sources in Mengzi Region, Southern Yunnan	LI Guang, ZHANG Xin-ping, XU You-peng, <i>et al.</i> (1313)
GIS Spatial Distribution and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Surface Sediments of Shallow Lakes in Jiangsu Province	LI Ying-jie, ZHANG Lie-yu, WU Yi-wen, <i>et al.</i> (1321)
Microcosm Simulation Study and Methylmercury Forming Mechanism at Landscape Water of City	LIU Xiao-hong, SI You-bin, GUO Zi-wei, <i>et al.</i> (1330)
Seasonal Stratification and the Response of Water Quality of a Temperate Reservoir—Zhoucun Reservoir in North of China	ZENG Ming-zheng, HUANG Ting-lin, QIU Xiao-peng, <i>et al.</i> (1337)
Hydrochemical Characteristics of Snow Meltwater and River Water During Snow-melting Period in the Headwaters of the Ertis River, Xinjiang	WEI Hong, WU Jin-kui, SHEN Yong-ping, <i>et al.</i> (1345)
Relationship Between the Phytoplankton Distribution and Environmental Factors in Fenhe Scenic Spot of Taiyuan	FENG Jia, GUO Yu-ning, WANG Fei, <i>et al.</i> (1353)
Distribution Characteristics of Nitrifiers and Denitrifiers in the River Sediments of Tongling City	CHENG Jian-hua, DOU Zhi-yong, SUN Qing-ye (1362)
Contribution of Base Flow to Total Nitrogen Loading in Subtropical Agricultural Catchments	MA Qiu-mei, LI Wei, WANG Yi, <i>et al.</i> (1371)
Characteristics and Transport Patterns of Ammonia, Nitrites, Nitrates and Inorganic Nitrogen Flux at Epikarst Springs and a Subterranean Stream in Nanshan, Chongqing	ZHANG Yuan-zhu, HE Qiu-fang, JIANG Yong-jun, <i>et al.</i> (1379)
Pollution Characteristics and Evaluation of Nitrogen, Phosphorus and Organic Matter in Sediments of Shanmei Reservoir in Fujian, China	QIU Zu-kai, HU Xiao-zhen, YAO Cheng, <i>et al.</i> (1389)
Effect of <i>Elodea natallii</i> -immobilized Nitrogen Cycling Bacteria on Nitrogen Removal Mechanism in an Inflow River, Gonghu Bay	HAN Hua-yang, LI Zheng-kui, WANG Hao, <i>et al.</i> (1397)
Spatial and Temporal Distribution Characteristics of Different Forms of Phosphorus in Three Sorts of Rivers around Lake Taihu	GAO Yong-xia, SONG Yu-zhi, YU Jiahua, <i>et al.</i> (1404)
Distribution of Phosphorus Forms in the Overlying Water Under Disturbance with the Addition of Algae	CHEN Jun, LI Yong, LI Da-peng, <i>et al.</i> (1413)
Impacts of Sediment Disturbance on the Distribution of Suspended Particle Size and Phosphorus	GUO Jun-rui, LI Da-peng, LIU Yan-jian (1422)
Effect of Zirconium Modified Kaolin-Based Cap on Migration and Transformation of Phosphorus Between Sediment and Overlying Water	ZHANG Zhe, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (1427)
Toxicity of 4-Chlorophenol Solution Under Electrochemical Reduction-oxidation Process	WANG Yan, SHI Qin, WANG Hui, <i>et al.</i> (1437)
Removal and Recycle of Phosphor from Water Using Magnetic Core/Shell Structured Fe ₃ O ₄ @SiO ₂ Nanoparticles Functionalized with Hydrated Aluminum Oxide	LAI Li, XIE Qiang, FANG Wen-kan, <i>et al.</i> (1444)
Occurrence and Removal of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Their Derivatives in Typical Wastewater Treatment Plants in Beijing	QIAO Meng, QI Wei-xiao, ZHAO Xu, <i>et al.</i> (1451)
Spectral Characteristics of Dissolved Organic Matters in Reject Water from Wastewater Treatment Plants	NIU Tian-hao, ZHOU Zhen, HU Da-long, <i>et al.</i> (1460)
Feasibility and Economic Analysis of Denitrification of Photovoltaic Wastewater Containing High Fluorine	LI Xiang, ZHU Liang, HUANG Yong, <i>et al.</i> (1467)
Quick Start-up and Sustaining of Shortcut Nitrification in Continuous Flow Reactor	WU Peng, ZHANG Shi-ying, SONG Yin-ling, <i>et al.</i> (1472)
Performance Recoverability of Denitrifying Granular Sludge Under the Stressing Effect of Nanoscale Zero-valent Iron	WANG Fan-fan, QIAN Fei-yue, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (1478)
Effect of Low-concentration Ciprofloxacin on the Nitrification and Nitrifying Microorganisms of Biofilms in Biological Aerated Filter	HE Shi, GU Chao-chao, WEI Xin, <i>et al.</i> (1485)
Optimization Study on the Nitrogen and Phosphorus Removal of Modified Two-sludge System Under the Condition of Low Carbon Source	YANG Wei-qiang, WANG Dong-bo, LI Xiao-ming, <i>et al.</i> (1492)
Effects of Short-time Conservation Tillage Managements on Greenhouse Gases Emissions from Soybean-Winter Wheat Rotation System	XIE Yan, CHEN Xi, HU Zheng-hua, <i>et al.</i> (1499)
Diurnal and Seasonal Dynamic Variation of Soil Respiration and Its Influencing Factors of Different Fenced Enclosure Years in Desert Steppe	CUI Hai, ZHANG Ya-hong (1507)
Correlation Among Soil Organic Carbon, Soil Inorganic Carbon and the Environmental Factors in a Typical Oasis in the Southern Edge of the Tarim Basin	GONG Lu, ZHU Mei-ling, LIU Zeng-yuan, <i>et al.</i> (1516)
Effects of Low-Molecular-Weight Organic Acids on the Speciation of Pb in Purple Soil and Soil Solution	LIU Jiang, JIANG Tao, HUANG Rong, <i>et al.</i> (1523)
Phytoremediation of Petroleum Contaminated Soils with <i>Iris pseudacorus</i> L. and the Metabolic Analysis in Roots	WANG Ya-nan, CHENG Li-juan, ZHOU Qi-xing (1531)
Oxidation Process of Dissolvable Sulfide by Manganite and Its Influencing Factors	LUO Yao, LI Shan, TAN Wen-feng, <i>et al.</i> (1539)
Screening and Enzyme Production Characteristics of Thermophilic Cellulase-producing Strains	FENG Hong-mei, QIN Yong-sheng, LI Xiao-fan, <i>et al.</i> (1546)
Development of Determination Method of Fluoroquinolone Antibiotics in Sludge Based on Solid Phase Extraction and HPLC-Fluorescence Detection Analysis	DAI Xiao-hu, XUE Yong-gang, LIU Hua-jie, <i>et al.</i> (1553)
Distribution and Risk Assessment of Sulfonamides Antibiotics in Soil and Vegetables from Feedlot Livestock	JIN Cai-xia, SI Xiao-wei, WANG Zi-ying, <i>et al.</i> (1562)
Influence of Four Kinds of PPCPs on Micronucleus Rate of the Root-Tip Cells of <i>Vicia-faba</i> and Garlic	WANG Lan-jun, WANG Jin-hua, ZHU Lu-sheng, <i>et al.</i> (1568)
Environmental Behaviors and Ecotoxicology of the Emerging Contaminants Polyhalogenated Carbazoles	LIN Kun-de, CHEN Yan-qiu, YUAN Dong-xing (1576)
Classification of Priority Area for Soil Environmental Protection Around Water Sources; Method Proposed and Case Demonstration	LI Lei, WANG Tie-yu, WANG Xiao-jun, <i>et al.</i> (1584)

《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 刘 毅 汤鸿霄 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)

2016年4月15日 第37卷 第4期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 4 Apr. 15, 2016

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: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行