

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第3期

Vol.38 No.3

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

我国人为源挥发性有机物反应性排放清单	梁小明, 张嘉妮, 陈小方, 石田立, 孙西勃, 范丽雅, 叶代启 (845)
上海城郊地区冬季霾污染事件反应性 VOCs 物种特征	高爽, 张坤, 高松, 修光利, 程娜, 潘研 (855)
京津冀地区主要排放源减排对 PM _{2.5} 污染改善贡献评估	吴文景, 常兴, 邢佳, 王书肖, 郝吉明 (867)
北京冬季 PM _{2.5} 中金属元素浓度特征和来源分析	乔宝文, 刘子锐, 胡波, 刘景云, 逢妮妮, 吴方堃, 徐仲均, 王跃思 (876)
2015 年石家庄市采暖期一次重污染过程细颗粒物在线来源解析	路娜, 李治国, 周静博, 赵鑫, 杨丽丽, 冯媛, 靳伟 (884)
利用 SPAMS 研究南宁市四季细颗粒物的化学成分及污染来源	刘慧琳, 陈志明, 毛敬英, 梁桂云, 黄炯丽, 李宏姣, 杨俊超, 莫招育 (894)
南半球海洋大气气溶胶单颗粒的理化特性分析	迟建伟, 李传金, 孙俊英, 张剑, 王辉, 王瀚韬, 李卫军 (903)
喷泉产生的细菌气溶胶空间分布特性	张崇森, 袁琳, 许鹏程, 刘可欣 (911)
生物滴滤塔净化含硫混合废气	叶杰旭, 缪孝平, 诸葛蕾, 赵翔宇, 江宁馨, 章晶晓, 陈东之, 陈建孟 (918)
西安城市不同功能区街道灰尘磁学特征及环境污染分析	房妮, 张俊辉, 王瑾, 姜珊, 夏敦胜 (924)
城乡交错带典型溪流沟渠沉积物氮污染特征及硝化-反硝化潜力	秦如彬, 李如忠, 高苏蒂, 张瑞钢 (936)
三峡库区小江支流沉积物硝化反硝化速率在蓄水期和泄水期的特征	王静, 刘洪杰, 雷禹, 徐晶, 宋立岩, 李勇 (946)
隔河岩水库二氧化碳通量时空变化及影响因素	赵登忠, 谭德宝, 李翀, 申邵洪 (954)
白洋淀多环芳烃与有机氯农药季节性污染特征及来源分析	王乙震, 张俊, 周绪申, 孔凡青, 徐铭霞 (964)
唐山陡河水库沉积物汞的分布、来源及污染评价	吴婷婷, 王明猛, 陈旭锋, 刘文利, 李太山, 闫海鱼, 何天容, 李仲根 (979)
三峡库区消落带优势草本植物淹水后汞的释放特征	邓晗, 张翔, 张成, 王永敏, 王定勇 (987)
电镀厂周边地表水中重金属分布特征及健康风险评估	余葱葱, 赵委托, 高小峰, 程胜高, 黄庭, 尹伊梦, 赵珍丽 (993)
九龙江表层沉积物重金属赋存形态及生态风险	林承奇, 胡恭任, 于瑞莲, 韩璐 (1002)
厦门筼筮湖表层沉积物金属元素赋存形态及污染评价	杨秋丽, 于瑞莲, 胡恭任, 林承奇, 韩璐 (1010)
龙口市污水灌溉区农田重金属来源、空间分布及污染评价	李春芳, 王菲, 曹文涛, 潘健, 吕建树, 吴泉源 (1018)
碳化稻壳-铁锰氧化菌耦合净化严寒村高铁锰地下水效能与机制	孙楠, 湛燕丽, 张颖, 鲁岩, 宋秋霞, 李春艳, 姜昭 (1028)
高藻水臭氧预氧化过程有机物转化及消毒副产物生成势	张赛, 胡学斌, 古励, 李莉, 郭显强 (1038)
预处理对短流程超滤工艺不可逆膜污染影响的中试试验	杨海燕, 邢加建, 王灿, 孙国胜, 赵焱, 梁恒, 徐叶琴, 李圭白 (1046)
Cu-Al ₂ O ₃ 中骨架铜类芬顿催化去除水中有机污染物	徐丹, 张丽丽, 柳丽芬 (1054)
过硫酸钾氧化去除 Cu(CN) ₂ 中的氰污染物	王云飞, 李一兵, 王彦斌, 齐璠静, 赵凯, 田世超, 郭涛, 关伟, 赵旭 (1061)
微生物燃料电池强化去除农药 2,4-二氯苯氧乙酸及同步产电性能	全向春, 全燕苹, 肖竹天 (1067)
桉树遗态结构 HAP/C 复合材料对水中 Cu(II) 的吸附特征	李超, 朱宗强, 曹爽, 朱义年, 谭笑, 丁慧 (1074)
基于 A ² /O 处理工艺的生活污水的成组生物毒性评价	张秋亚, 马晓妍, 王晓昌, 游猛 (1084)
污水氮浓度对粉绿狐尾藻去氮能力的影响	马永飞, 杨小珍, 赵小虎, 胡承孝, 谭碧玲, 孙学成, 吴金水 (1093)
全海水盐度抑制下厌氧氨氧化工艺的恢复特性	齐泮晴, 于德爽, 李津, 管勇杰, 魏思佳 (1102)
饥饿对硫自养反硝化反应器生物群落结构的影响	李芳芳, 施春红, 李海波, 袁蓉芳, 马方曙 (1109)
快速启动厌氧氨氧化工艺	闫刚, 徐乐中, 沈耀良, 吴鹏, 张婷, 程朝阳 (1116)
一种 CANON 工艺处理低氨氮废水的新模式	完颜德卿, 袁怡, 李祥, 毕贞 (1122)
侧流磷回收对低溶解氧 EBPR 系统性能的影响	马娟, 宋璐, 俞小军, 孙雷军, 孙洪伟 (1130)
厌氧氨氧化污泥群体感应信号分子检测及影响研究	陈舒涵, 李安婕, 王越兴, 吴玲娟 (1137)
有机负荷对醋糟厌氧消化系统启动的影响	戴晓虎, 于春晓, 李宁, 董滨, 戴翎翎 (1144)
过氧化钙预处理对活性污泥脱水性能的影响机制	白润英, 陈湛, 张伟军, 王东升 (1151)
不同工况蚯蚓人工湿地表层污泥处理效果	董梦珂, 李怀正, 徐一啸 (1159)
全氟辛酸对大肠杆菌的氧化胁迫和膜损伤	杨蒙, 李伟, 叶锦韶, 龙焰, 秦华明 (1167)
纳米银在环境水样和实验介质中的理化性质和毒性效应	衣俊, 程金平 (1173)
血吸虫病疫区鱼体器官中氯苯化合物的污染特征	李昆, 赵高峰, 周怀东, 张盼伟, 刘巧娜, 赵晓辉, 李东佼, 任敏, 赵丹丹 (1182)
纳米沸石对大白菜生长、抗氧化酶活性及镉形态、含量的影响	秦余丽, 熊仕娟, 徐卫红, 赵婉伊, 王卫中, 陈永勤, 迟苏琳, 陈序根, 张进忠, 熊治庭, 王正银, 谢德体 (1189)
利用 <i>in vitro</i> 方法研究不同铁矿对土壤砷生物给性的影响	钟松雄, 尹光彩, 黄润林, 何宏飞, 陈志良, 林亲铁, 王文科 (1201)
不锈钢电极对重金属污染土壤的强化电动修复及电极腐蚀结晶现象与机制	温东东, 付融冰, 张卫, 顾莹莹 (1209)
施用无害化污泥影响土壤碳库组分和碳库管理指数的演变	刘晓, 黄林, 郭康莉, 张雪凌, 杨俊诚, 姜慧敏, 张建峰 (1218)
施氮和水分管理对光合碳在土壤-水稻系统间分配的量化研究	王婷婷, 祝贞科, 朱捍华, 汤珍珠, 庞静, 李宝珍, 苏以荣, 葛体达, 吴金水 (1227)
模拟酸雨对次生林土壤呼吸及异养呼吸的影响	陈书涛, 孙鹭, 桑琳, 胡正华 (1235)
土壤硝化和反硝化微生物群落及活性对大气 CO ₂ 浓度和温度升高的响应	刘远, 王光利, 李恋卿, 潘根兴 (1245)
岩性对喀斯特灌丛土壤固氮菌与丛枝菌根真菌群落结构及丰度的影响	梁月明, 苏以荣, 何寻阳, 陈香碧 (1253)
板栗产区有机堆肥产物磷形态特征及其对叶片磷含量的影响	宋影, 郭素娟, 张丽, 孙慧娟, 谢明明, 武燕奇, 王静 (1262)
酸性物质对猪粪秸秆堆肥过程中氮素转化的影响	姜继超, 尧倩 (1272)
《环境科学》征稿简则 (1092)	
《环境科学》征订启事 (1158)	
信息 (1166, 1261, 1271)	

我国人为源挥发性有机物反应性排放清单

梁小明¹, 张嘉妮¹, 陈小方¹, 石田立¹, 孙西勃¹, 范丽雅^{1,2,3}, 叶代启^{1,2,3*}

(1. 华南理工大学环境与能源学院, 广州 510006; 2. 广东省大气环境与污染控制重点实验室, 广州 510006; 3. 大气污染控制广东高校工程技术研究中心, 广州 510006)

摘要: 以我国人为源挥发性有机物(VOCs)为研究对象, 使用具有代表性的 VOCs 总量排放清单、各污染源成分谱及物种最大增量反应活性值(MIR), 建立了2010年我国人为源 VOCs 基于臭氧生成潜势(OFP)的反应性排放清单。结果表明, 2010年我国人为源挥发性有机物总 OFP 为84 187.61 kt, 其中, 烷烃6 882.53 kt, 烯炔41 496.92 kt, 芳香烃32 945.32 kt, 卤代烃 161.45 kt, 含氧有机化合物2 701.40 kt。OFP 贡献前10种物种分别为丙烯、乙烯、间/对-二甲苯、甲苯、1-丁烯、邻-二甲苯、1,2,4-三甲苯、1,3-丁二烯、间-乙基甲苯和乙苯, 占人为源总 OFP 的63.95%, 仅占 VOCs 排放总量的31.84%。人为源三大污染源中, 工业源贡献了49.29%的 OFP, 为最大贡献源, 其次是交通源28.31%和农业源22.40%。建筑装饰、石油炼制、储存与运输、机械设备制造、交通设备制造和包装印刷为工业 OFP 主要贡献源; 轻型载客汽车、重型载客汽车及摩托车为交通源 OFP 污染控制的重点; 生物质燃烧两类子源均为农业源 OFP 重点控制对象。山东、江苏、广东、浙江和河南是我国人为源 OFP 贡献最大的省份, 占人为源总 OFP 的39.65%。该反应性清单的建立, 对我国基于反应性臭氧(O₃)控制对策的制定具有重要意义。

关键词: VOCs; 物种排放清单; 臭氧生成潜势; 人为源; 中国

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)03-0845-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201609162

Reactivity-based Anthropogenic VOCs Emission Inventory in China

LIANG Xiao-ming¹, ZHANG Jia-ni¹, CHEN Xiao-fang¹, SHI Tian-li¹, SUN Xi-bo¹, FAN Li-ya^{1,2,3}, YE Dai-qi^{1,2,3*}

(1. School of Environment and Energy, South China University of Technology, Guangzhou 510006, China; 2. Guangdong Provincial Key Laboratory of Atmospheric Environment and Pollution Control (SCUT), Guangzhou 510006, China; 3. Air Pollution Control of Guangdong University Engineering Technology Research Center(SCUT), Guangzhou 510006, China)

Abstract: A reactivity-based anthropogenic volatile organic compounds (VOCs) emission inventory in China in 2010 was developed on the basis of ozone formation potential (OFP), using the latest VOCs emission inventory, source profiles and maximum incremental reactivity (MIR) values. The results showed that the total anthropogenic OFP was 84 187.61 kt in China in 2010, of which 6 882.53 kt was from alkanes, 41 496.92 kt from alkenes/alkynes, 32 945.32 kt from aromatic hydrocarbons, 161.45 kt from halocarbons, and 2 701.40 kt from oxygenated organics. The top 10 species in terms of OFP consisted of propene, ethene, *m/p*-xylene, toluene, 1-butene, *o*-xylene, 1,2,4-trimethyl benzene, 1,3-butadiene, *m*-ethyl toluene and ethyl benzene, contributing 63.95% to the total OFP but only 31.84% to the mass-based emission. Industrial sources accounted for the largest (49.29%) of the total OFP, followed by transportation sources (28.31%) and agricultural sources (22.40%). The key industrial sources with high reactivity were architectural decoration industry, oil refinery industry, storage and transport, machinery equipment industry, transport equipment industry and printing. Passenger cars, motorcycles and heavy duty vehicles were the major OFP sources of transportation. The two biomass burning sources were both the key OFP sources of agriculture. Shandong, Jiangsu, Guangdong, Zhejiang and Henan were the top five provinces with contributions of 39.65% of the total OFP in China. The reactivity-based emission inventory in this study would be of great significance for the formulation of reactivity-based ozone (O₃) control strategies in China.

Key words: volatile organic compounds (VOCs); species emission inventory; ozone formation potential (OFP); anthropogenic source; China

近年来,我国高浓度近地面臭氧(O₃)和二次气溶胶(SOA)污染频发^[1~3]。PM_{2.5}、NO₂等污染物年均浓度逐渐下降,而臭氧日最大8 h浓度年均值整体呈稳定增长的趋势^[4~7],给我国臭氧污染控制带来更大的挑战。挥发性有机物(VOCs)作为O₃和PM_{2.5}形成的重要前体物^[1,8,9],其对臭氧形成的评估与关键贡献者的识别具有重要意义。基于反应性的臭氧控制对策在很大程度上比基于总量的控制策

略更有效,并已被欧美国家使用。美国环保署在其各州实施计划发展中发行了鼓励各州考虑VOCs反应性概念的指导意见^[10]。随后,德克萨斯州在其臭

收稿日期: 2016-09-21; 修订日期: 2016-10-20

基金项目: 环境保护公益性行业科研专项(201409019)

作者简介: 梁小明(1992~),女,硕士研究生,主要研究方向为大气污染物排放清单与空气质量模拟, E-mail: 291562122@qq.com

* 通信作者, E-mail: cedqye@scut.edu.cn

氧不达标的区域,采用基于反应性的法规来控制高反应性的 VOCs^[11]. 基于反应性管理体制最具革新性和最有力的案例是加州空气资源局的气溶胶涂料法规,2005 年美国环保署将其列为示范性工程项目^[12, 13]. 欧洲的反应性法规在其交通源控制取得明显成效后,在固定污染源的控制上也进行了研究,结果证实反应性政策与简单的总量控制对策相比,会带来更大的臭氧削减效益^[14, 15].

VOCs 物种排放清单和化学反应机制是评估反应性 VOCs 控制对策必不可少的两个参数^[14]. 目前,我国相关的一系列物种排放清单已被建立,主要包括全球和国家尺度的物种清单^[16~18]以及珠三角和长三角等区域性物种清单^[19~22]. 然而,由于过去本土化污染源成分谱的缺失,大多数物种清单主要采用国外的或其他区域的成分谱信息. 这种情况不包含 Mo 等^[16]和 Ou 等^[19]建立的物种清单,其在研究中应用了更新的本土化成分谱信息. Mo 等^[16]建立的国家尺度物种清单以 75 种 VOCs 物种作为研究对象,不能反映实际多类污染源的真正排放情况. 如其清单中并没有考虑 1,2,3,5-四甲苯,该物种是珠三角区域 OFP 贡献前十的物种之一^[19]. 因此,建立更新的尽可能涵盖各污染源成分谱信息的国家尺度物种排放清单极其必要. 另一方面,为了反映 VOCs 反应性和随后的臭氧生成情况,最大增量反应活性值(MIR)和臭氧生成潜势(OFP)已被广泛应用^[2, 19, 21, 23~25].

本研究以 2010 年我国人为源挥发性有机物总量排放清单为基础,通过大量的文献调研,获取并筛选具有代表性的 VOCs 污染源成分谱信息,结合 VOCs 各物种的最大增量反应活性指标(MIR),建立 2010 年我国人为源 VOCs 基于 OFP 的反应性排放清单. 识别高反应性的 VOCs 关键物种,主要污染源和污染省份,以期为我国臭氧控制政策的制定提供科学的依据和支撑.

1 材料与方法

1.1 总量排放清单与成分谱

2010 年我国人为源总量排放清单主要包括工业源、交通源和农业源. 其中工业源总量排放基数选取课题组近期的研究成果^[26],交通源和农业源选取龚芳^[27]的研究成果. 工业源排放基数优先选取 Qiu 等^[26]的成果主要基于其以下优势:①科学的源分类系统. 采用“源头追踪”的思路,按照 VOCs 物质在整个工业活动中的流动过程,将所有工业排

放源分为“VOCs 的生产”,“储存与运输”,“以 VOCs 为原料的工艺过程”和“含 VOCs 产品的使用”四大环节;②综合的污染源涵盖范围. 清单基本涵盖了所有的工业大源,共 98 类子污染源;③本土化排放因子的优先使用. 清单建立过程中优先使用本土化的排放因子,对于尚无本土排放因子的污染源选取国外的排放因子. 其中,工业源“含 VOCs 产品的使用”环节中固定燃烧源除原有的工业燃烧外,研究将民用燃煤源也列入了该环节,总量数据同样来源于龚芳^[27]的研究成果. 同时,研究对总量清单部分污染源总量进行了修正,主要修正污染源为生物质露天燃烧源,采用细化到各子行业且更新的排放因子^[28]进行核算,核算后的排放量与 Zhao 等^[29]研究的结果相近,与原有单一排放因子核算的总量相比更接近实际. 总量清单所涵盖的污染源尚不完善,部分污染源研究中尚未计入. 主要包括交通源中的非道路移动源,如火车、飞机和轮船等. 总量排放清单污染源系统在后续研究中有待进一步细化完善.

本研究以 188 种 VOCs 成分谱为研究对象,将其分为六大类:烷烃、烯炔烃、芳香烃、卤代烃、含氧有机化合物和其他,如表 1 所示. 其中,“其他”包含了部分污染源中未明确的且含量小于 1% 的物种或目前尚无 MIR 值的 VOCs 物种. 本研究优先选取国内最新的 VOCs 成分谱. 其中,工业源成分谱包括:“VOCs 的生产”环节(Mo 等^[30]的研究成果),“储存与运输”(Liu 等^[31]的研究成果),“以 VOCs 为原料的工艺过程”环节具代表性的成分谱研究成果^[30, 32~34],“含 VOCs 产品的使用”环节多项成分谱研究成果^[31~38]. 交通源和农业源成分谱均来自 Liu 等^[31]建立的成分谱信息. 对少量尚无 VOCs 本土成分谱信息的污染源采用美国 SPECIATE database 成分谱信息. 污染源范围及对应成分谱来源信息见表 2.

1.2 VOCs 物种排放清单

基于反应性的 VOCs 排放清单建立的前提是物种排放清单的建立,物种排放清单通过 2010 年我国人为源总量排放基数及各污染源的成分谱信息建立. 个体 VOCs 物种排放量通过下式计算:

$$E_i = \sum_j E_j \times R_{ij} \quad (1)$$

式中, i 为特定的 VOCs 物种; j 为污染源; E_i 为物种 i 的总排放量; E_j 为污染源 j 的总排放量; R_{ij} 是物种 i 在污染源 j 中所占的质量分数.

表 1 我国人为源污染源成分谱 188 种个体物种信息

Table 1 188 individual species of anthropogenic VOCs source profiles in China

序号 物种	序号 物种	序号 物种	序号 物种	序号 物种
烷烃(45)	39 4-甲基辛烷	77 反式-3-庚烯	115 茚	152 乙醇
1 乙烷	40 2,6-二甲基辛烷	78 1-辛烯	116 萘	153 乙酸
2 正丙烷	41 正壬烷	79 反式-2-辛烯	卤代烃(26)	154 乙酸乙酯
3 异丁烷	42 2-甲基壬烷	80 1-壬烯		155 二乙醚
4 正丁烷	43 正癸烷	81 正十一烯	117 氯甲烷	156 丙烯酸乙酯
5 2,2-二甲基丁烷	44 正十一烷	82 α-蒎烯	118 溴甲烷	157 2-乙氧基-乙酸乙酯
6 2,3-二甲基丁烷	45 正十二烷	83 β-蒎烯	119 二氯甲烷	158 乙二醇丁醚
7 异戊烯	烯炔烃(41)	84 苈烯	121 四氯化碳	159 丁酸甲酯
8 正戊烷		85 柠檬烯	122 氯乙烷	160 异丙醇
9 环戊烷	46 乙烯	86 蒎烯	123 氯乙烯	161 丙酮
10 2-甲基戊烷	47 乙炔	芳香烃(30)	124 1,2-二溴乙烷	162 乙酸异丙酯
11 3-甲基戊烷	48 丙烯		125 1,1-二氯乙烷	163 乙酸正丙酯
12 甲基环戊烷	49 甲基乙炔	87 苯	126 1,1-二氯乙烯	164 1-甲氧基-2-丙醇
13 2,3-二甲基戊烷	50 1-丁烯	88 甲苯	127 1,2-二氯乙烷	165 2-甲氧基-1-丙醇
14 2,4-二甲基戊烷	51 1,3-丁二烯	89 乙苯	128 1,1,1-三氯乙烷	166 1-甲氧基-2-乙酸丙酯
15 2,2,3-三甲基戊烷	52 顺式-2-丁烯	90 间/对-二甲苯	129 1,1,2-三氯乙烷	167 丙酸正丙酯
16 2,2,4-三甲基戊烷	53 反式-2-丁烯	91 邻-二甲苯	130 三氯乙烯	168 正丁醇
17 2,3,4-三甲基戊烷	54 2-甲基-1 丁烯	92 苯乙烯	131 顺式-1,2-二氯乙烯	169 异丁醇
18 正己烷	55 3-甲基-1 丁烯	93 α-甲基苯乙烯	132 反式-1,2-二氯乙烯	170 仲-丁醇
19 环己烷	56 2-甲基-2 丁烯	94 正丙苯	133 全氯乙烯	171 2-丁酮
20 2-甲基己烷	57 1-戊烯	95 异丙苯	134 3-氯丙烯	172 乙酸正丁酯
21 3-甲基己烷	58 异戊二烯	96 间-乙基甲苯	135 1,2-二氯丙烯	173 乙酸异丁酯
22 甲基环己烷	59 顺式-2-戊烯	97 邻-乙基甲苯	136 顺式-1,3-二氯丙烯	174 3-甲氧基-1-丁醇
23 丙基环己烷	60 反式-2-戊烯	98 对-乙基甲苯	137 反式-1,3-二氯丙烯	175 甲基叔丁基醚
24 乙基环己烷	61 环戊烯	99 1,2,3-三甲苯	138 氯苯	176 甲基异丁基酮
25 2,4-二甲基己烷	62 4-甲基-1-戊烯	100 1,2,4-三甲苯	139 邻-二氯苯	177 2-戊酮
26 1,3-二甲基环己烷	63 3-甲基-1-戊烯	101 1,3,5-三甲苯	140 间-二氯苯	178 3-戊酮
27 1,4-二甲基环己烷	64 反式-2-甲基-2-戊烯	102 间-二乙苯	141 对-二甲苯	179 乙酸仲戊酯
28 1,1,3-三甲基环己烷	65 2-甲基-1-戊烯	103 邻-二乙苯	142 氯甲苯	180 2-乙基-1-己醇
29 2,2,5-三甲基己烷	66 顺式-3-甲基 2-戊烯	104 对-二乙苯	含氧有机物(46)	181 己酮
30 1,2-二甲基环己烷	67 1-己烯	105 1-甲基-3-丙苯		182 环己酮
31 1-乙基-4-甲基环己烷	68 顺式-2-己烯	106 1-甲基-4-丙苯	143 甲醛	183 2-乙基乙酸己酯
32 正庚烷	69 反式-2-己烯	107 1,2,3,4-四甲苯	144 甲醇	184 2,6-二甲基-4-庚酮
33 2-甲基庚烷	70 环己烯	108 1,2,3,5-四甲苯	145 甲酸	185 芳樟醇
34 4-甲基庚烷	71 1-庚烯	109 1,2,4,5-四甲苯	146 乙酸甲酯	186 异佛尔酮
35 3-甲基庚烷	72 反式-3-甲基-2-庚烯	110 1,2-二甲苯-4-乙苯	147 1-丁醇-3-乙酸甲酯	187 四氢呋喃
36 3-乙基庚烷	73 1-甲基环庚烯	111 1,3-二甲苯-4-乙苯	148 2-甲基-2-丙烯酸甲酯	188 1,4-二噁烷
37 正辛烷	74 顺式-2-庚烯	112 1,3-二甲苯-2-乙苯	149 二甲氧基甲烷	其他
38 3-甲基辛烷	75 反式-2-庚烯	113 1,3-二甲苯-5-乙苯	150 碳酸二甲酯	
	76 顺式-3-庚烯	114 1,4-二甲苯-4-乙苯	151 乙醛	

1.3 VOCs 反应性排放清单(OFP)

在物种清单建立的基础上,以臭氧生成潜势(OFP)为本研究中反应性的指标,其可通过物种排放量与其对应的 MIR 值的乘积^[19, 21, 24]得出. 个体物种的 OFP 计算如下:

$$OFP_i = \sum_j E_{ij} \times MIR_i \quad (2)$$

式中, OFP_i 为物种 i 的总 OFP 值; E_{ij} 为物种 i 在污染源 j 中的排放量; MIR_i 为物种 i 的最大增量反应活性值. 其中 MIR 值来自 Carter^[39] 的最新研究成果.

2 结果与讨论

2.1 基于 OFP 的物种排放与特征

2010 年我国人为源挥发性有机物排放总量和总 OFP 分别为22 573. 28 kt和84 187. 62 kt. 反应性清单中,烷烃贡献的 OFP 为6 882. 53 kt,烯炔烃为41 496. 92 kt,芳香烃为32 945. 32 kt,卤代烃为161. 45 kt,含氧有机化合物为2 701. 40 kt. OFP 清单建立过程中,因现有污染源成分谱的不完善,部分物种被不同程度的低估了,如研究中含氧有机化合物在交通源并未被评估. 六大类成分谱的排放特征

表 2 我国人为源 VOCs 污染源及其成分谱信息

Table 2 Anthropogenic VOCs sources and their source profiles in China

污染源	文献
① VOCs 的生产	石油开采 天然气开采 石油炼制 基础化学原料制造 [30]
② 储存与运输	储存与运输 [31]
③ 以 VOCs 为原料的工艺过程	涂料制造 油墨制造 合成纤维 合成橡胶 合成树脂 胶黏剂制造 食品加工 日用化学品制造 化学原料药 橡胶制品 金属冶炼 [30, 32 ~ 34]
工业源	
④ 含 VOCs 产品的使用	固定燃烧源 炼焦 造纸 纸制品 纺织印染 皮革制造 制鞋 印刷和包装印刷 木材加工 家具制造 机械设备制造 交通运输设备制造 建筑装饰 电子制造 服装干洗 环境治理 [31 ~ 38]
交通源 道路移动源	轻型载客汽车 重型载客汽车 摩托车 轻型载货汽车 重型载货汽车 [31]
农业源 生物质燃烧	生物质露天燃烧 生物质燃料燃烧 [31]

如图 1 所示,烯炔烃和芳香烃为 OFP 清单中最主要的两大成分谱贡献者,其在总的 OFP 清单中所占质量分数分别为 49.29% 和 39.13%,相对于 VOCs 总量排放清单中的 20.98% 和 30.80% 都有所提高.相反,烷烃、卤代烃和含氧有机化合物在总量排放清单中占比分别为 29.47%、5.12% 和 10.44%,然而其 OFP 占比却下降至 8.18%、0.19% 和 3.21%.

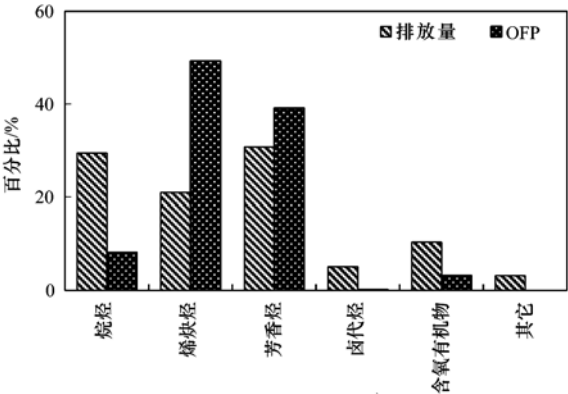


图 1 2010 年我国人为源 VOCs 物种排放量与 OFP 特征
Fig. 1 Speciated characteristics of anthropogenic emission and OFP in China in 2010

物种排放量及其 MIR 值会在 VOCs 排放量和 OFP 占比上带来较大差异. 图 2(a) 为我国人为源 VOCs 排放量贡献前 10 种物种及其对应的 MIR 值信息. OFP 清单中,贡献前 10 种 VOCs 物种,其对应的排放量占比及 MIR 值信息如图 2(b) 所示. OFP 贡献前 10 物种分别为: 丙烯 (11 947.24 kt)、乙烯 (9 729.87 kt)、间/对-二甲苯 (7 994.06 kt)、甲苯 (6 677.03 kt)、1-丁烯 (4 095.73 kt)、邻-二甲苯 (3 515.71 kt)、1,2,4-三甲苯 (2 951.70 kt)、1,3-丁二烯 (2 659.73 kt)、间-乙基甲苯 (2 283.50 kt) 和乙

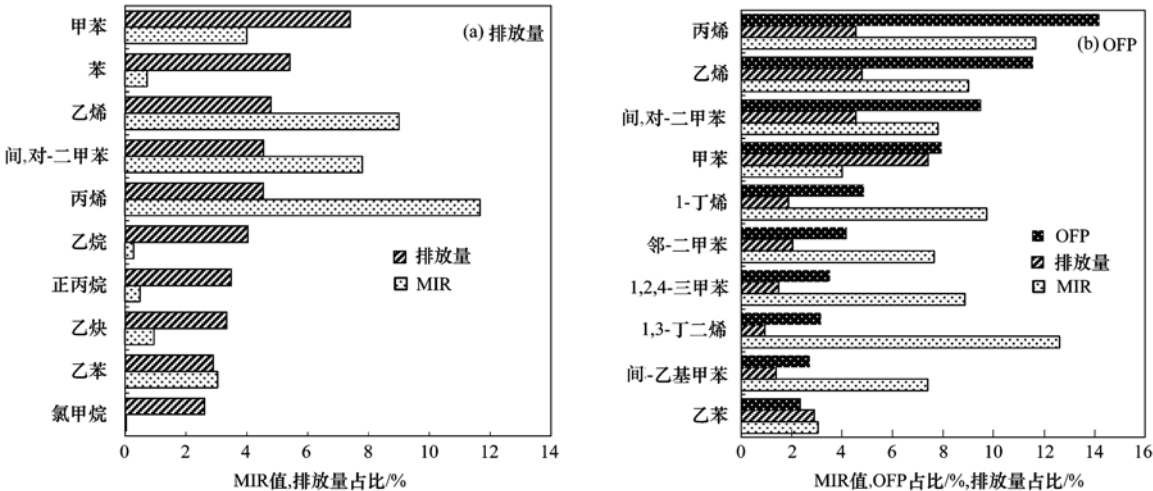


图 2 2010 年我国人为源 VOCs 排放量和 OFP 贡献前 10 种物种

Fig. 2 Key contributing species to VOCs mass-based emission and OFP in China in 2010

苯(1 980.33 kt). 该 10 种物种占人为源总 OFP 的 63.95%, 仅占 VOCs 排放总量 31.84%. 在 OFP 贡献前 10 物种中, 1-丁烯、邻-二甲苯、1,2,4-三甲苯、1,3-丁二烯、间-乙基甲苯, 该 5 种物种并不在排放量贡献前 10 清单中, 主要是由于其相对较小的排放量和较大的 MIR 值. 相反, 排放量较大但 MIR 值相对较小的苯、乙烷、正丙烷、乙炔、氯甲烷却在排放量前 10 清单中. 因此, 排放量大的物种其 OFP 值不一定大, OFP 值需要排放量及其 MIR 值综合确定.

2.2 基于 OFP 的污染源排放与特征

表 3 为 2010 年我国人为源分污染部门的排放量和 OFP 信息, 其中同时列出了各污染源在排放量清单和 OFP 清单中的占比和排名情况. 我国人为源三大污染源中, 工业源贡献了 49.29% 的 OFP, 其次是交通源 28.31% 和生物质燃烧源 22.40%. 工业源中, 环节四“含 VOCs 产品的使用”OFP 贡献最大, 为 29.64%, 其次为“VOCs 的生产”, 占 9.70%, “储存与运输”占 7.05% 和“以 VOCs 为原料的工艺过程”为 2.89%. 工业源 OFP 贡献子污染源中, 建筑装饰、石油炼制、储存与运输、机械设备制造、交通设备制造和包装印刷为主要污染源; 交通源 OFP 贡献子污染源中, 轻型载客汽车、摩托车及重型载客汽车为污染控制的重点; 农业源中生物质燃烧两类子源均是污染控制的重点.

污染源成分谱及其对应的 MIR 值差异使各污染源排放量和 OFP 的比重存在很大不同. 各污染源

排放量和 OFP 的排名情况如表 3, 各污染源的权重名次基本均发生了变化. 其中变化较大(名次变化 ≥ 5) 的污染源主要包括两类, 一类为污染源排放量大但 OFP 权重相对较小, 主要有合成材料、食品加工业、化学原料药和炼焦业; 另一类为污染源排放量相对较小但 OFP 权重较大, 主要有基础化学原料制造、纺织印染、家具制造、交通设备制造和轻型载货汽车. 污染源权重在其排放量和 OFP 间的明显差异表明了反应性概念在 VOCs 排放清单建立及国家政策指导中的重要性.

图 3 为 OFP 贡献前 10 种物种的污染源分布情况. 前 10 种 OFP 贡献物种中, 苯系物, 如甲苯、间/对-二甲苯、邻-二甲苯、间-乙基甲苯、1,2,4-三甲苯和乙苯, 超过 70% 的 OFP 来自“含 VOCs 产品的使用”和道路移动源两类污染源. 其中除 1,2,4-三甲苯中道路移动源 OFP 贡献达 51% 为最大污染源, 其他苯系物, “含 VOCs 产品的使用”贡献的 OFP 占比均超过 50%; 烯烃类, 乙烯、丙烯、1-丁烯和 1,3-丁二烯, 超过 40% 的 OFP 来源于生物质燃烧源, 其次为道路移动源和 VOCs 的生产环节. 因此, “VOCs 的生产”, “含 VOCs 产品的使用”, 道路移动源和生物质燃烧源是 VOCs 高反应性物种控制的重要污染源.

2.3 基于 OFP 的省市排放与特征

图 4 为 2010 年我国人为源挥发性有机物 OFP 分省市排放情况及三类源在各省市的 OFP 贡献情

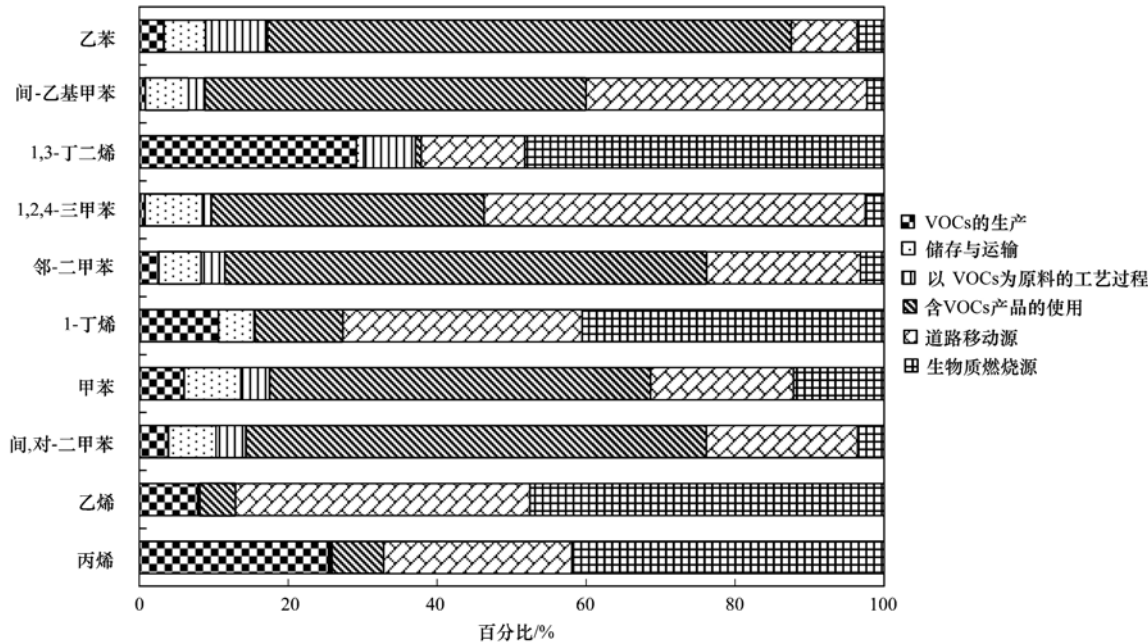


图 3 2010 年我国 VOCs 前 10 种 OFP 贡献物种污染源分布情况

Fig. 3 Top 10 OFP-based species and their emission sources in China in 2010

况. 其中 OFP 贡献最大的 5 个省份为: 山东、江苏、广东、浙江和河南, 基本均是社会发展和工业水平较为发达的地区, 其 OFP 均超过了 4 500 kt. 5 省份 OFP 占人为源总 OFP 的 39.65%. 河北、辽宁、安徽、四川和湖北 5 省人为源贡献的 OFP 在 3 000 ~

4 500 kt 之间, 合计 OFP 约占全国总 OFP 的 21.21%. 其余 21 省市的 OFP 均小于 3 000 kt, 其中 OFP 贡献小于 1 000 kt 的省市有贵州、海南、宁夏、青海和西藏, 基本均为经济发展水平较为落后的区域, 其合计 OFP 仅占总 OFP 的 2.68%.

表 3 2010 年我国人为源子行业污染源排放量与 OFP

Table 3 VOCs emission and OFP of anthropogenic subsectors in China in 2010

污染源	排放量		OFP		排放量名次	OFP 名次
	排放量/ $\text{kt} \cdot \text{a}^{-1}$	所占质量分数/%	OFP/ $\text{kt} \cdot \text{a}^{-1}$	所占质量分数/%		
工业源	13 425.58	59.48	41 496.79	49.29	/	/
① VOCs 的生产	2 630.00	11.65	8 166.36	9.70	/	/
石油开采	122.00	0.54	72.66	0.09	27	30
天然气开采	47.00	0.21	27.04	0.03	30	33
石油炼制	2 123.00	9.41	6 753.90	8.02	2	4
基础化学原料制造	338.00	1.50	1 312.77	1.56	19	14
② 储存与运输	1 295.00	5.74	5 939.13	7.05	/	/
储存与运输	1 295.00	5.74	5 939.13	7.05	6	6
③ 以 VOCs 为原料的工艺过程	1 769.18	7.84	2 434.00	2.89	/	/
涂料制造	181.00	0.80	483.51	0.57	25	22
油墨制造	35.00	0.16	32.17	0.04	33	32
合成材料	444.00	1.97	655.87	0.78	15	20
胶黏剂制造	74.00	0.33	197.68	0.23	29	28
食品加工	519.00	2.30	326.45	0.39	13	26
日用化学品制造	0.18	0.00	0.01	0.00	37	37
化学原料药	258.00	1.14	322.46	0.38	22	27
橡胶制品	221.00	0.98	375.40	0.45	24	24
金属冶炼	37.00	0.16	40.45	0.05	32	31
④ 含 VOCs 产品的使用	7 731.40	34.25	24 957.30	29.64	/	/
固定燃烧源	589.60	2.61	1 891.95	2.25	12	13
炼焦	486.00	2.15	717.84	0.85	14	19
造纸	6.00	0.03	6.63	0.01	35	35
纸制品	4.80	0.02	19.25	0.02	36	34
纺织印染	142.00	0.63	941.07	1.12	26	17
皮革制造	338.00	1.50	475.86	0.57	20	23
制鞋业	243.00	1.08	350.10	0.42	23	25
印刷和包装印刷	926.00	4.10	2 043.99	2.43	10	12
木材加工	425.00	1.88	905.46	1.08	16	18
家具制造	309.00	1.37	1 031.89	1.23	21	16
机械设备制造	1 407.00	6.23	4 482.87	5.32	5	8
交通运输设备制造	401.00	1.78	2 339.91	2.78	17	11
建筑装饰	1 987.00	8.80	8 381.25	9.96	3	2
电子制造	399.00	1.77	1 271.26	1.51	18	15
服装干洗	27.00	0.12	0.84	0.00	34	36
环境治理	41.00	0.18	97.12	0.12	31	29
交通源	4 800.00	21.26	23 836.31	28.31	/	/
轻型载客汽车	1 686.00	7.47	7 948.24	9.44	4	3
重型载客汽车	980.00	4.34	4 977.92	5.91	9	7
摩托车	1 139.00	5.05	5 986.60	7.11	7	5
轻型载货汽车	117.00	0.52	581.62	0.69	28	21
重型载货汽车	878.00	3.89	4 341.92	5.16	11	10
农业源	4 347.00	19.26	18 854.51	22.40	/	/
生物质露天燃烧	1 031.00	4.57	4 478.41	5.32	8	9
生物质燃料燃烧	3 316.00	14.69	14 376.10	17.08	1	1
总和	22 572.58	100.00	84 187.61	100.00	/	/

如图4所示,各省市因工业源、交通源以及农业源的结构差异,导致这三类源 OFP 在各省市的分布存在一定的差异。其中,工业源 OFP 贡献最大的省市为山东、江苏、广东和浙江,大多数省市第四环节“含 VOCs 产品的使用”是其主要的 OFP 污染源,如山东、江苏、广东和浙江等。这种情况主要是由于该环节涵盖的污染源范围广,VOCs 排放量比重大,同时该环节排放的 VOCs 物种如芳香烃,反应性相对较大。其他省份,如辽宁、海南、甘肃和新疆

等炼油厂较发达的省市,其工业源中第一环节“VOCs 的生产”为主要贡献源;交通源 OFP 贡献最大的省市为广东、山东、江苏和河北。大多数省市交通源 OFP 最主要的贡献来源于轻型载客汽车,如山东、河北、浙江、四川和北京等。广东、广西、福建和江西等地摩托车 OFP 贡献也较为显著;农业源 OFP 最大贡献省份为山东、安徽、黑龙江、江苏和河南, OFP 均超过了1 000 kt, 占总农业源 OFP 的 40.10%。

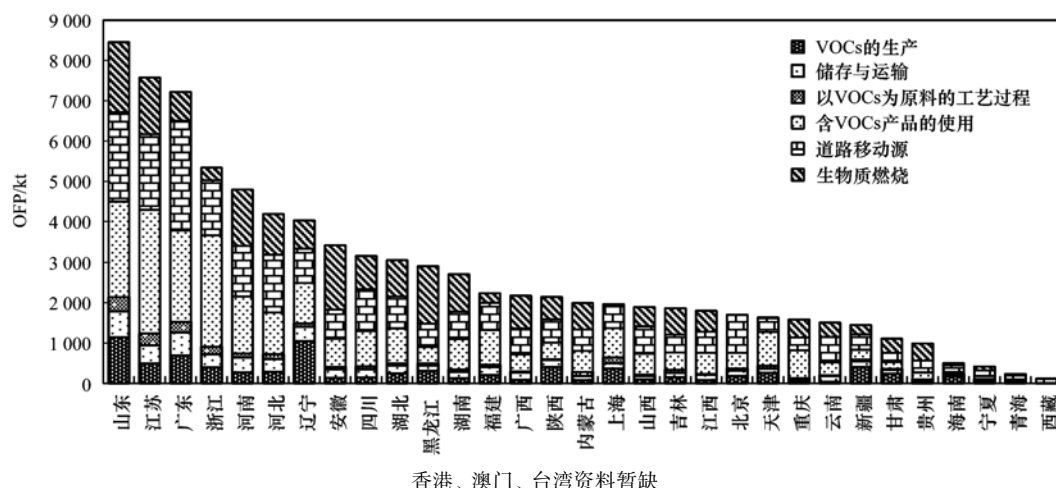


图4 2010年我国人为源 VOCs 基于 OFP 的省市分布

Fig. 4 Anthropogenic OFP inventory for each province in China in 2010

2.4 不确定性分析

反应性清单建立中不确定性来源主要包括总量排放清单的建立、污染源成分谱的选取和物种反应性参数的选取。总量排放清单的不确定性,主要是由于活动水平来源可靠性不强和排放因子本土化及代表性缺陷带来。本研究总量排放清单为已公开的清单成果,除了清单成果本身的不确定性以外,由于工业源和其他两类污染源(交通源和农业源)总量来自不同的清单,研究中增加了总量排放清单的不确定性;污染源成分谱本土化不完善,反应性清单核算时采用国内外学者现有的成分谱研究成果,成为重要的不确定性来源。不同学者对成分谱研究的方法,区域范围和物种对象等多方面因素不一致,给反应性清单的建立带来较高的不确定性。此外,由于本研究所选取的物种反应性参数(MIR)均来自Carter^[39]的最新研究成果,其不确定性相对总量清单和成分谱库的较小。

2.5 反应性清单的比较和我国臭氧控制对策的启示

2.5.1 反应性清单的比较

本研究建立的反应性清单与 Wu 等^[40]评估的2010年我国人为源 OFP 相比,尽管在物种反应性参

数选取上有所不同,即本研究选取 MIR 值, Wu 等选取光化学臭氧生成潜势(POCP),但研究结果仍具有一定的可比性。如表4所示,在 OFP 贡献关键物种方面,丙烯、乙烯、间/对-二甲苯、邻-二甲苯、甲苯均在其 OFP 贡献前10物种清单中,这5种物种各占人为源 OFP 的 47.36% (本研究)和 44.60%^[40];在 OFP 污染源特征方面,工业源 OFP 占比分别为 49.29% (本研究)和 48.18%^[40],生物质露天燃烧源占比分别为 5.32% (本研究)和 6.51%^[40]。其他污染源 OFP 难以比较,主要是由于污染源涵盖范围及分类系统存在差异。在 OFP 省级分布特征方面, OFP 贡献前4个省份均依次为山东、江苏、广东和浙江。其他省份 OFP 贡献次序存在较小差异。总之,相比而言,二者人为源 OFP 关键贡献者基本一致,但也存在一定的差异。人为源 OFP 的差异主要来自 VOCs 总量基础排放清单、污染源涵盖范围及污染源成分谱的差异三方面。

2.5.2 我国臭氧控制对策的启示

近年来,我国出台了一系列 VOCs 控制对策,“挥发性有机物排污收费试点办法”^[41]、“十三五”规划纲要中 VOCs 控制目标^[42]和“重点行业挥发性

有机物削减行动计划”^[43]等. 然而, 这些政策大多建立在效率相对低的基于 VOCs 总量的控制基础上. 考虑到目前我国 O₃ 污染的严峻局势, 亟需出台更有效的 O₃ 控制对策, 而基于 VOCs 反应性的控制对策很大程度上将成为未来我国 VOCs 控制的趋势. 本研究对我国基于反应性的 O₃ 控制对策具有重要的启示. 首先, 考虑到挥发性有机物定义的确 定决定着我国未来 VOCs 的控制方向, 因此, 国家层面的基于反应性的挥发性有机物定义极其必要. 其次, 从 OFP 贡献关键物种来看, 丙烯、乙烯、间/对-

二甲苯、甲苯、1-丁烯、邻-二甲苯、1,2,4-三甲苯、1,3-丁二烯、邻-乙基甲苯和乙苯, OFP 贡献前 10 种物种及其对应的污染源将是我国 VOCs 重点控制的方向. 最后, 从 OFP 污染行业及省市分布来看, 石油炼制、储存与运输、机械设备制造、交通设备制造和包装印刷将是工业源控制的首要对象; 轻型载客汽车、重型载客汽车及摩托车是交通源控制的重点; 生物质燃烧两类源均为农业源需控制的对象. 山东、江苏、广东、浙江和河南等我国 OFP 贡献大省, 是我国 VOCs 控制的重点省份.

表 4 我国人为源反应性排放清单的比较

Table 4 Comparison of reactivity-based anthropogenic VOCs emission inventory in China

项目	本研究	文献[40]
基准年	2010 年	2010 年
反应性参数指标	MIR	POCP
OFP 关键贡献物种	丙烯 (14.19%)、乙烯 (11.56%)、间/对-二甲苯 (9.50%)、甲苯 (7.93%)、1-丁烯 (4.87%)、邻-二甲苯 (4.18%)、1,2,4-三甲苯 (3.51%)、1,3-丁二烯 (3.16%)、间-乙基甲苯 (2.71%) 和乙苯 (2.35%)	丙烯 (12.3%)、间-二甲苯 (7.3%)、乙烯 (6.6%)、甲苯 (6.5%)、邻-二甲苯 (6.1%)、对-二甲苯 (5.8%) 和 C4~C6 烷烃 (4.7%)
OFP 污染源特征	工业源 (VOCs 的生产 9.70%, 储存与运输 7.05%, 以 VOCs 为原料的工艺过程 2.89% 和含 VOCs 产品的使用 29.64%, 合计 49.29%)、道路移动源 (28.31%)、生物质露天燃烧 (5.32%) 和生物质燃料燃烧 (17.08%)	工业源 (工业过程源、工业溶剂使用源和工业燃烧源, 合计 41.18%)、生物质露天燃烧 (6.51%)、民用燃烧 (17.84%)、道路交通源 (13.10%)、非道路交通源 (4.82%) 和生活源 (民用溶剂源等, 合计 9.47%)
OFP 前 10 贡献省份 (按由大到小)	山东、江苏、广东、浙江、河南、河北、辽宁、安徽、四川和湖北	山东、江苏、广东、浙江、河北、河南、四川、安徽、湖北和辽宁

3 结论

(1) 2010 年我国人为源挥发性有机物 OFP 为 84 187.61 kt, 其中, 烷烃 6 882.53 kt, 烯炔 41 496.92 kt, 芳香烃 32 945.32 kt, 卤代烃 161.45 kt, 含氧有机化合物 2 701.40 kt. OFP 贡献前 10 种物种分别为丙烯、乙烯、间/对-二甲苯、甲苯、1-丁烯、邻-二甲苯、1,2,4-三甲苯、1,3-丁二烯、间-乙基甲苯和乙苯, 占人为源总 OFP 的 63.95%, 仅占 VOCs 排放总量的 31.84%.

(2) 2010 年我国人为源三大污染源中, 工业源贡献了总 OFP 的 49.29%, 其次是交通源 28.31% 和农业源 22.40%. 建筑装饰、石油炼制、储存与运输、机械设备制造、交通设备制造和包装印刷为工业 OFP 主要贡献源; 轻型载客汽车、重型载客汽车及摩托车为交通源 OFP 污染控制的重点; 生物质燃烧两类源均为农业源 OFP 重点控制对象. 工业源中“VOCs 的生产”和“含 VOCs 产品的使用”环节, 道路移动源和生物质燃烧源是 OFP 贡献前 10 物种的重要贡献源.

(3) 山东、江苏、广东、浙江和河南是我国人

为源 OFP 贡献最大的省份, 占人为源总 OFP 的 39.65%. 工业源 OFP 最主要的贡献省份为山东、江苏、广东和浙江; 交通源为广东、山东、江苏和河北; 农业源为山东、安徽、黑龙江、江苏和河南.

(4) 本研究建立的 VOCs 反应性排放清单具有一定的不确定性, 后续应加强典型污染源排放因子及成分谱实测与规范工作, 同时加强反应性排放清单不确定性的定量分析, 以进一步完善我国 VOCs 反应性排放清单.

参考文献:

- [1] Shao M, Zhang Y H, Zeng L M, *et al.* Ground-level ozone in the Pearl River Delta and the roles of VOC and NO_x in its production [J]. *Journal of Environmental Management*, 2009, **90** (1): 512-518.
- [2] Guo S, Hu M, Zamora M L, *et al.* Elucidating severe urban haze formation in China [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2014, **111** (49): 17373-17378.
- [3] Xue L K, Wang T, Gao J, *et al.* Ground-level ozone in four Chinese cities: precursors, regional transport and heterogeneous processes [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14** (23): 13175-13188.
- [4] 中华人民共和国环境保护部. 国务院关于印发大气污染防治行动计划的通知 [EB/OL]. <http://zfs.mep.gov.cn/fg/>

- gwyw/201309/t20130912_260045. shtml, 2013-09-12.
- [5] 中华人民共和国环境保护部.《大气污染防治行动计划》实施情况中期评估报告[EB/OL]. http://www.zhb.gov.cn/xxgk/hjyw/201607/t20160706_357205.shtml, 2016-07-06.
- [6] 中国环境监测总站. 2013 中国环境状况公报[EB/OL]. http://www.cnemc.cn/publish/totalWebSite/news/news_41719.html, 2014-06-05.
- [7] 中国环境监测总站. 2015 中国环境状况公报[EB/OL]. http://www.cnemc.cn/publish/totalWebSite/news/news_48571.html, 2016-06-02.
- [8] Yuan B, Hu W W, Shao M, *et al.* VOC emissions, evolutions and contributions to SOA formation at a receptor site in eastern China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(17): 8815-8832.
- [9] Atkinson R. Atmospheric chemistry of VOCs and NO_x [J]. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**(12-14): 2063-2101.
- [10] U. S. Environmental Protection Agency. Interim guidance on control of volatile organic compounds in ozone state implementation plans[J]. *Federal Register*, 2005, **70**(176): 54046.
- [11] Stoeckenius T, Russell J. Survey of HRVOC regulations[R]. Report Houston Advanced Research Center Project No. H-12-2004-EE-UT-TI (582-4-6587), Novato, CA: Environment International Corporation, 2005.
- [12] California Air Resources Board. Updated Informative Digest, Adoption of Amendments to the Regulation for Reducing Volatile Organic Compound Emissions from Aerosol Coating Products and Tables of Maximum Incremental Reactivity (MIR) Values, and Adoption of Amendments to ARB Test Method 310, "Determination of Volatile Organic Compounds in Consumer Products"[S]. Stationary Source and Monitoring and Laboratory Divisions, California Environmental Protection Agency Air Resources Board; Sacramento, CA, 2000.
- [13] U. S. Environmental Protection Agency. Revisions to the California state implementation plan and revision to the definition of volatile organic compounds (VOC)-removal of VOC exemptions for California's aerosol coating products reactivity-based regulation [J]. *Federal Register*, 2005, **70**: 53930-53935.
- [14] Derwent R G, Jenkin M E, Passant N R, *et al.* Reactivity-based strategies for photochemical ozone control in Europe [J]. *Environmental Science & Policy*, 2007, **10**(5): 445-453.
- [15] Commission of the European Communities (CEC). Council directive amending directive 70/220/EEC on the approximation of the laws of the member states relating to measures to be taken against air pollution by emissions from motor vehicles[S]. 1991.
- [16] Mo Z W, Shao M, Lu S H. Compilation of a source profile database for hydrocarbon and OVOC emissions in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **143**: 209-217.
- [17] Wei W, Wang S X, Chatani S, *et al.* Emission and speciation of non-methane volatile organic compounds from anthropogenic sources in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(20): 4976-4988.
- [18] Streets D G, Bond T C, Carmichael G R, *et al.* An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000 [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2003, **108**(D21).
- [19] Ou J M, Zheng J Y, Li R R, *et al.* Speciated OVOC and VOC emission inventories and their implications for reactivity-based ozone control strategy in the Pearl River Delta region, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **530-531**: 393-402.
- [20] Fu X, Wang S H, Zhao B, *et al.* Emission inventory of primary pollutants and chemical speciation in 2010 for the Yangtze River Delta region, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **70**: 39-50.
- [21] Huang C, Chen C H, Li L, *et al.* Emission inventory of anthropogenic air pollutants and VOC species in the Yangtze River Delta region, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(9): 4105-4120.
- [22] Zheng J Y, Shao M, Che W W, *et al.* Speciated VOC emission inventory and spatial patterns of ozone formation potential in the Pearl River Delta, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(22): 8580-8586.
- [23] Chang C C, Chen T Y, Lin C Y, *et al.* Effects of reactive hydrocarbons on ozone formation in southern Taiwan [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(16): 2867-2878.
- [24] Carter W P L. Development of ozone reactivity scales for volatile organic compounds[J]. *Air & Waste*, 1994, **44**(7): 881-899.
- [25] Guo H, Wang T, Blake D R, *et al.* Regional and local contributions to ambient non-methane volatile organic compounds at a polluted rural/coastal site in Pearl River Delta, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(13): 2345-2359.
- [26] Qiu K Q, Yang L X, Lin J M, *et al.* Historical industrial emissions of non-methane volatile organic compounds in China for the period of 1980-2010[J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **86**: 102-112.
- [27] 龚芳. 我国人为源 VOCs 排放清单及行业排放特征分析 [D]. 西安: 西安建筑科技大学, 2013.
- [28] Wu R R, Bo Y, Li J, *et al.* Method to establish the emission inventory of anthropogenic volatile organic compounds in China and its application in the period 2008-2012 [J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **127**: 244-254.
- [29] Zhao B, Wang S X, Dong X Y, *et al.* Environmental effects of the recent emission changes in China; implications for particulate matter pollution and soil acidification [J]. *Environmental Research Letters*, 2013, **8**(2): 024031.
- [30] Mo Z W, Shao M, Lu S H, *et al.* Process-specific emission characteristics of volatile organic compounds (VOCs) from petrochemical facilities in the Yangtze River Delta, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **533**: 422-431.
- [31] Liu Y, Shao M, Fu L L, *et al.* Source profiles of volatile organic compounds (VOCs) measured in China: Part I [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(25): 6247-6260.
- [32] He Q S, Yan Y L, Li H Y, *et al.* Characteristics and reactivity of volatile organic compounds from non-coal emission sources in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **115**: 153-162.
- [33] Shi J W, Deng H, Bai Z P, *et al.* Emission and profile characteristic of volatile organic compounds emitted from coke production, iron smelt, heating station and power plant in Liaoning Province, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **515-516**: 101-108.
- [34] Zheng J Y, Yu Y F, Mo Z W, *et al.* Industrial sector-based volatile organic compound (VOC) source profiles measured in manufacturing facilities in the Pearl River Delta, China [J].

- Science of the Total Environment, 2013, **456-457**: 127-136.
- [35] 徐志荣, 王鹏, 王浙明, 等. 典型染整企业定型机废气排放特征及潜在环境危害浅析[J]. 环境科学, 2014, **35**(3): 847-852.
- Xu Z R, Wang P, Wang Z M, *et al.* Study on the emission characteristics and potential environment hazards of the heat-setting machine of the typical dyeing and finishing enterprise[J]. Environmental Science, 2014, **35**(3): 847-852.
- [36] He Z K, Zhang Y P, Wei W J. Formaldehyde and VOC emissions at different manufacturing stages of wood-based panels [J]. Building and Environment, 2012, **47**: 197-204.
- [37] Yuan B, Shao M, Lu S H, *et al.* Source profiles of volatile organic compounds associated with solvent use in Beijing, China [J]. Atmospheric Environment, 2010, **44**(15): 1919-1926.
- [38] 王伯光, 冯志诚, 周炎, 等. 聚氨酯合成革厂空气中挥发性有机物的成分谱[J]. 中国环境科学, 2009, **29**(9): 914-918.
- Wang B G, Feng Z C, Zhou Y, *et al.* VOC components in the air caused by the local polyurethane synthetic leather industries in the Pearl River Delta region[J]. China Environmental Science, 2009, **29**(9): 914-918.
- [39] Carter W L P. Updated Maximum Incremental Reactivity scale and hydrocarbon bin reactivities for regulatory applications[R]. Reported to California Air Resources Board Contract 07-339, 2010.
- [40] Wu W J, Zhao B, Wang S X, *et al.* Ozone and secondary organic aerosol formation potential from anthropogenic volatile organic compounds emissions in China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2016, doi: 10.1016/j.jes.2016.03.025.
- [41] 中华人民共和国环境保护部. 关于印发《挥发性有机物排污收费试点办法》的通知[EB/OL]. http://www.zhb.gov.cn/gzfw_13107/zcfg/hjjzc/gjfbdjzcx/lssfzc/201606/P020160623584387917111.pdf, 2015-09-18.
- [42] 中华人民共和国工业和信息化部. 中华人民共和国国民经济和社会发展第十三个五年规划纲要[EB/OL]. <http://www.miit.gov.cn/n1146290/n1146392/c4676365/content.html>, 2016-03-18.
- [43] 中华人民共和国工业和信息化部. 两部门关于印发重点行业挥发性有机物削减行动计划的通知[EB/OL]. <http://www.miit.gov.cn/n1146295/n1652858/n1652930/n3757016/c5137974/content.html>, 2016-07-13.

CONTENTS

Reactivity-based Anthropogenic VOCs Emission Inventory in China	LIANG Xiao-ming, ZHANG Jia-ni, CHEN Xiao-fang, <i>et al.</i> (845)
Characteristics of Reactive VOCs Species During High Haze-Pollution Events in Suburban Area of Shanghai in Winter	GAO Shuang, ZHANG Kun, GAO Song, <i>et al.</i> (855)
Assessment of PM _{2.5} Pollution Mitigation due to Emission Reduction from Main Emission Sources in the Beijing-Tianjin-Hebei Region	WU Wen-jing, CHANG Xing, XING Jia, <i>et al.</i> (867)
Concentration Characteristics and Sources of Trace Metals in PM _{2.5} During Wintertime in Beijing	QIAO Bao-wen, LIU Zi-rui, HU Bo, <i>et al.</i> (876)
Online Source Analysis of Particulate Matter (PM _{2.5}) in a Heavy Pollution Process of Shijiazhuang City During Heating Period in 2015	LU Na, LI Zhi-guo, ZHOU Jing-bo, <i>et al.</i> (884)
Analysis of Chemical Composition and Pollution Source of the Fine Particulate Matter by the SPAMS in the Four Seasons in Nanning	LIU Hui-lin, CHEN Zhi-ming, MAO Jing-ying, <i>et al.</i> (894)
Physico-chemical Characteristics of Individual Aerosol Particles in Marine Atmosphere on South Hemisphere	CHI Jian-wei, LI Chuan-jin, SUN Jun-ying, <i>et al.</i> (903)
Characteristics of Spatial Distribution of Bacterial Aerosols Produced by Fountain	ZHANG Chong-miao, YUAN Lin, XU Peng-cheng, <i>et al.</i> (911)
Removal of Volatile Sulfur Odor by the Biotrickling Filter	YE Jie-xu, MIAO Xiao-ping, ZHUGE Lei, <i>et al.</i> (918)
Magnetic Characteristics and Environmental Pollution Analysis of Street Dust in Different Functional Zones of Xi'an City	FANG Ni, ZHANG Jun-hui, WANG Jin, <i>et al.</i> (924)
Pollution Characteristics and Nitrification and Denitrification Potential of Superficial Sediments from Streams in an Urban-Rural Fringe	QIN Ru-bin, LI Ru-zhong, GAO Su-di, <i>et al.</i> (936)
Nitrification and Denitrification Rates in a Small Tributary, Nanhe River, of Three Gorge Dam Reservoir During Water Collection and Release Events	WANG Jing, LIU Hong-jie, LEI Yu, <i>et al.</i> (946)
Tempo-spatial Variations and Influential Factors of Carbon Dioxide Emissions from the Geheyan Reservoir over the Qingjiang River Basin, China	ZHAO Deng-zhong, TAN De-bao, LI Chong, <i>et al.</i> (954)
Seasonal Pollution Characteristics and Source Identification of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Organochlorine Pesticides in Surface Water of Baiyangdian Lake	WANG Yi-zhen, ZHANG Jun, ZHOU Xu-shen, <i>et al.</i> (964)
Distributions, Sources and Pollution Assessment of Hg in Sediment of Douhe Reservoir in Tangshan City	WU Ting-ting, WANG Ming-meng, CHEN Xu-feng, <i>et al.</i> (979)
Release Characteristics of Mercury from Submersed Typical Herbaceous Plants in the Water-Level Fluctuation Zone of the Three Gorges Reservoir Area	DENG Han, ZHANG Xiang, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (987)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Surface Water Around Electroplating Factories	YU Cong-cong, ZHAO Wei-tuo, GAO Xiao-feng, <i>et al.</i> (993)
Speciation and Ecological Risk of Heavy Metals in Surface Sediments from Jiulong River	LIN Cheng-qi, HU Gong-ren, YU Rui-lian, <i>et al.</i> (1002)
Fractionation and Contamination Assessment of Metal Elements in the Surface Sediments of Yundang Lagoon in Xiamen	YANG Qiu-li, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (1010)
Source Analysis, Spatial Distribution and Pollution Assessment of Heavy Metals in Sewage Irrigation Area Farmland Soils of Longkou City	LI Chun-fang, WANG Fei, CAO Wen-tao, <i>et al.</i> (1018)
Efficiency and Mechanism of Purifying High Iron-Manganese from Ground Water in the Cold Villages and Towns Based on The Coupling of Rice Husk and Iron-Manganese Oxidizing Bacteria	SUN Nan, CHEN Yan-li, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (1028)
Peroxidation of High Algae-laden Water by Ozone; Algae Organic Matter Transformation and Disinfection By-products Formation	ZHANG Sai, HU Xue-bin, GU Li, <i>et al.</i> (1038)
Effects of Pretreatment on Hydraulic Irreversible Membrane Fouling During Ultrafiltration Short Process: A Pilot Study	YANG Hai-yan, XING Jia-jian, WANG Can, <i>et al.</i> (1046)
Fenton-like Catalytic Removal of Organic Pollutants in Water by Framework Cu in Cu-Al ₂ O ₃	XU Dan, ZHANG Li-li, LIU Li-fen (1054)
Oxidation Destruction of Cu(CN) ₂ ²⁻ by Persulfate	WANG Yun-fei, LI Yi-bing, WANG Yan-bin, <i>et al.</i> (1061)
Enhanced Removal of Herbicide 2,4-dichlorophenoxyacetic Acid and Simultaneous Power Generation in Microbial Fuel Cells	QUAN Xiang-chun, QUAN Yan-ping, XIAO Zhu-tian (1067)
Adsorption Characteristics of Copper in Water by the Porous Biomorph-Genetic Composite of HAP/C with Eucalyptus Wood Template	LI Chao, ZHU Zong-qiang, CAO Shuang, <i>et al.</i> (1074)
Biological Toxicity Evaluation of Domestic Wastewater Based on A ² /O Treatment Processes Using a Battery of Bioassays	ZHANG Qiu-ya, MA Xiao-yan, WANG Xiao-chang, <i>et al.</i> (1084)
Effect of Wastewater Nitrogen Concentrations on Nitrogen Removal Ability of <i>Myriophyllum aquaticum</i>	MA Yong-fei, YANG Xiao-zhen, ZHAO Xiao-hu, <i>et al.</i> (1093)
Recovery Performance of ANAMMOX Process after Inhibition Resulting from Seawater	QI Pan-qing, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (1102)
Impact of Starvation Conditions on Biological Community Structure in Sulfur Autotrophic Denitrification Reactor	LI Fang-fang, SHI Chun-hong, LI Hai-bo, <i>et al.</i> (1109)
Quick Start-up of Anaerobic Ammonium Oxidation Process	LÜ Gang, XU Le-zhong, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (1116)
A New Model for the Treatment of Low Ammonia Nitrogen Wastewater by CANON Process	WANYAN De-qing, YUAN Yi, LI Xiang, <i>et al.</i> (1122)
Effects of Side-stream Phosphorus Recovery on the Performance of EBPR System Under Low Dissolved Oxygen Condition	MA Juan, SONG Lu, YU Xiao-jun, <i>et al.</i> (1130)
Identification and Influence of Quorum Sensing on Anaerobic Ammonium Oxidation Process	CHEN Shu-han, LI An-jie, WANG Yue-xing, <i>et al.</i> (1137)
Effects of Organic Loading Rate on Startup Performance of Anaerobic Digestion with Vinegar Residues	DAI Xiao-hu, YU Chun-xiao, LI Ning, <i>et al.</i> (1144)
Influencing Mechanism of Calcium Peroxide Pre-treatment on Dewatering Performance of Waste Activated Sludge	BAI Run-ying, CHEN Zhan, ZHANG Wei-jun, <i>et al.</i> (1151)
Treatment Effects of Earthworm Constructed Wetlands in Different Working Conditions	DONG Meng-ke, LI Huai-zheng, XU Yi-xiao (1159)
Effect of PFOA on Oxidative Stress and Membrane Damage of <i>Escherichia coli</i>	YANG Meng, LI Yi, YE Jin-shao, <i>et al.</i> (1167)
Physicochemical Properties and Antibacterial Effect of Silver Nanoparticles; A Comparison of Environmental and Laboratorial Conditions	YI Jun, CHENG Jin-ping (1173)
Pollution Characteristics of Chlorobenzenes in Organs of Fish from Typical Epidemic Areas of Schistosomiasis Prevalence	LI Kun, ZHAO Gao-feng, ZHOU Huai-dong, <i>et al.</i> (1182)
Effect of Nano Zeolite on Growth, Activity of Antioxidant Enzyme, and Chemical Fractions and Concentration of Cd in Chinese Cabbage	QIN Yu-li, XIONG Shi-juan, XU Wei-hong, <i>et al.</i> (1189)
Effect of Different Iron Minerals on Bioaccessibility of Soil Arsenic Using <i>in vitro</i> Methods	ZHONG Song-xiong, YIN Guang-cai, HUANG Run-lin, <i>et al.</i> (1201)
Enhanced Electrokinetic Remediation of Heavy Metals Contaminated Soils by Stainless Steel Electrodes as well as the Phenomenon and Mechanism of Electrode Corrosion and Crystallization	WEN Dong-dong, FU Rong-bing, ZHANG Wei, <i>et al.</i> (1209)
Influence of the Application of Non-Hazardous Sewage Sludge on the Evolution of Soil Carbon Pool and Carbon Pool Management Index	LIU Xiao, HUANG Lin, GUO Kang-li, <i>et al.</i> (1218)
Input and Distribution of Photosynthesized Carbon in Soil-Rice System Affected by Water Management and Nitrogen Fertilization	WANG Ting-ting, ZHU Zhen-ke, ZHU Han-hua, <i>et al.</i> (1227)
Effects of Simulated Acid Rain on Soil Respiration and Heterotrophic Respiration in a Secondary Forest	CHEN Shu-tao, SUN Lu, SANG Lin, <i>et al.</i> (1235)
Response of Soil Nitrifier and Denitrifier Community and Activity to Elevated Atmospheric CO ₂ Concentration and Temperature	LIU Yuan, WANG Guang-li, LI Lian-qing, <i>et al.</i> (1245)
Effects of Lithology on the Abundance and Composition of Soil Nitrogen-fixing Bacteria and Arbuscular Mycorrhizal Fungal Communities in Karst Shrub Ecosystem	LIANG Yue-ming, SU Yi-rong, HE Xun-yang, <i>et al.</i> (1253)
Characterization of Phosphorus Forms in Organic Composts and Their Effects on Leaf Phosphorus Content of <i>Castanea mollissima</i> in Chinese Chestnut Producing Area	SONG Ying, GUO Su-juan, ZHANG Li, <i>et al.</i> (1262)
Effects of Acidic Materials on the N Transformations During the Composting of Pig Manure and Wheat Straw	JIANG Ji-shao, YAO Qian (1272)