

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第8期

Vol.37 No.8

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

中国地区二次有机气溶胶的时空分布特征和来源分析 陈卓,刘峻峰,陶玮,陶澍 (2815)

中国民用煤燃烧排放细颗粒物中重金属的清单 刘海彪,孔少飞,王伟,严沁 (2823)

基于长时间序列的北京 PM_{2.5}浓度日变化及气象条件影响分析 苗蕾,廖晓农,王迎春 (2836)

2004~2015年北京市清洁点臭氧浓度变化特征 程念亮,李云婷,张大伟,陈添,魏强,孙彤卉,王步英,富佳明,何乐为,程兵芬,皮帅,马立光,崔继宪,孟凡 (2847)

抗战胜利70周年大阅兵期间石家庄大气细颗粒物在线来源解析 周静博,李治国,路娜,徐曼,杨鹏,高康宁,王建国,靳伟 (2855)

成都平原大气颗粒物中无机水溶性离子污染特征 蒋燕,贺光艳,罗彬,陈建文,王斌,杜云松,杜明 (2863)

嘉兴市春季一次持续雾霾过程中气象条件与污染物变化特征分析 沈利娟,王红磊,李莉,吕升,袁婧,张孝寒,章国骏,王翡 (2871)

泉州市大气降尘中金属元素污染特征及来源解析 张棕巍,胡恭任,于瑞莲,刘贤荣,胡起超,王晓明 (2881)

城市室内灰尘重金属水平、影响因素及健康风险:以贵阳市为例 李晓燕,汪浪,张舒婷 (2889)

桂林市酸雨变化特征及来源分析 郭雅思,于爽,黎泳珊,孙平安,何若雪 (2897)

农田土壤施用系列新型氮肥后气态氮(NH₃和N₂O)减排效果比较:以夏玉米季为例 范会,姜姗姗,魏茨,蒋静艳 (2906)

青海南部高原积雪期与生长季高寒草甸土壤CO₂、CH₄和N₂O通量的观测 吴建国,周巧富 (2914)

三峡库区香溪河秋末至中冬CO₂和CH₄分压特征分析 张军伟,雷丹,肖尚斌,张成,穆晓辉,刘佳,李迎晨 (2924)

气候变化对于桥水库总磷与溶解氧的潜在影响分析 张晨,刘汉安,高学平,张文娜 (2932)

三峡库区小流域土地利用结构变化及其氮素输出控制效应:以兰陵溪小流域为例 吴东,黄志霖,肖文发,曾立雄,韩黎阳 (2940)

入湖河流水质对土地利用时空格局的响应研究:以洱海北部流域为例 项颂,庞燕,储昭升,胡小贞,孙莉,薛力强 (2947)

库湾营养盐循环对三峡库区营养盐运输的影响:以草堂河为例 王晓彤,罗光富,操满,王雨春,汪福顺,邓兵 (2957)

农田溪流人工深潭地貌格局暂态存储特征分析 李如忠,黄青飞,钱靖,殷晓曦,韦林 (2964)

农田排水沟渠水体-底泥中溶质氮分布特征试验研究 李强坤,胡亚伟,宋常吉,彭聪 (2973)

三峡库区典型消落带土壤微生物生物量碳、氮的变化特征及其影响因素探讨 柴雪思,雷利国,江长胜,黄哲,范志伟,郝庆菊 (2979)

重金属在河口区潮汐界面与盐度界面响应规律研究 刘静,郑丙辉,刘录三,马迎群,林岗璇,汪星,夏阳 (2989)

深圳地区全氟辛酸磺酸的环境多介质迁移和归趋行为研究 崔晓宇,张鸿,罗骥,张若冰 (3001)

柘林湾表层沉积物中有机氯农药的分布特征及生态风险评价 卫亚宁,潘佳钊,宋玉梅,郭鹏然,王毅 (3007)

北运河水体中荧光溶解性有机物空间分布特征及来源分析 陈永娟,胡玮璇,庞树江,王晓燕 (3017)

昌邑滨海湿地沉积物的放射性核素水平与环境指示意义 王启栋,宋金明,李学刚,袁华茂,李宁,曹磊 (3026)

甯醇对南山老龙洞地下水粪便污染的指示 廖昱,孙玉川,王尊波,梁作兵,张远瞩 (3034)

漳沱河冲洪积扇地下水中酞酸酯的污染现状与分布特征 昌盛,赵兴茹,刘琰,耿梦娇,乔翠琴 (3041)

雨季不同土地利用下表层岩溶泉中脂肪酸来源分析 张媚,孙玉川,谢正兰,余琴,赵瑞一,梁作兵 (3049)

Zn系LDHs覆膜改性人工湿地沸石基质除磷机制 张翔凌,黄华玲,郭露,陈巧珍,阮聪颖,冷玉洁 (3058)

Ce³⁺与Cu²⁺协同强化芬顿体系氧化苯酚的效能与机制研究 张剑桥,迟惠中,宋阳,罗从伟,江进,马军 (3067)

Pt/生物炭电极反应器处理水中腐殖酸的研究 丁文川,向星光,曾晓岚,厉晓宇,梁国强, M. M. Mian (3073)

石墨烯-TiO₂光催化剂复合板制备及其对五氯酚的催化降解 徐琪,周泽宇,王洪涛 (3079)

单偶氮染料AY17的光催化降解动力学及机制 阳海,魏宏庆,胡乐天,胡倩,阳立平,刘华杰,易翔,易兵 (3086)

硫自养反硝化处理高含氟光伏废水可行性 马航,朱强,朱亮,李祥,黄勇,魏凡凯,杨朋兵 (3094)

膜曝气-生物膜反应器生物强化处理阿特拉津废水运行性能 刘春,于长富,张静,陈晓轩,张磊,杨景亮 (3101)

ABR工艺ANAMMOX耦合短程硝化协同脱氮处理城市污水 吴鹏,张诗颖,宋吟玲,徐乐中,沈耀良,张婷 (3108)

活性污泥厌氧Fe(III)还原氨氧化现象初探 李祥,林兴,杨朋兵,黄勇,刘恒蔚 (3114)

低浓度氨氮废水单级自养脱氮EGSB反应器的快速启动 顾书军,方芳,李凯,刘勇,郭劲松,陈猷鹏,蒋甫阳 (3120)

超低溶解氧条件下的EBPR系统除磷性能 马娟,宋璐,俞小军,李璐,孙雷军,孙洪伟,李光银 (3128)

活性污泥表面性质对絮凝沉降性能与出水悬浮物的影响 何志江,赵媛,张源凯,王洪臣,齐鲁,尹训飞,张晓军 (3135)

山东省典型金矿区土壤重金属空间特征分析与环境风险评估 王菲,吴泉源,吕建树,董玉龙,曹文涛,康日斐,曹见飞 (3144)

电子垃圾拆解区土壤重金属空间异质性及分布特征 赵科理,傅伟军,叶正钱,戴巍 (3151)

我国18种不同理化性质的土壤对硝酸盐的吸附解吸作用研究 冯璞阳,李哲,者渝芸,黄杰,梁东丽 (3160)

流动搅动法研究针铁矿对亚硝酸盐的吸附特征 李鑫,杨军,饶伟,王代长,杜光辉,化党领,刘世亮,刘红恩 (3169)

聚羟基铝柱撑硅藻土的制备及其对水溶液中Cu²⁺、Zn²⁺的吸附特性 朱健,雷明婧,王平,张伟丽,陈仰 (3177)

新型污泥基吸附材料制备及其氨氮去除性能评价 王文东,刘荟,张银婷,杨生炯 (3186)

纳米复合水凝胶的制备及其对重金属离子的吸附 朱倩,李正魁,张一品,韩华杨,王浩 (3192)

鼠李糖脂与β-环糊精复合提取预测污染土壤中PAHs的生物有效性 张亚楠,杨兴伦,卞永荣,谷成刚,王芳,王代长,蒋新 (3201)

不同磷水平下丛枝菌根真菌对纳米氧化锌生物效应的影响 景新新,苏志忠,邢红恩,王发园,石兆勇,刘雪琴 (3208)

中美水生生物基准受试物种敏感性差异研究 王晓南,闫振广,余若祯,王婉华,陈丽红,刘征涛 (3216)

贫营养和痕量抗生素对质粒抗生素抗性适应度代价的影响 林文芳,陈胜,万堃,王春明,林惠荣,于鑫 (3224)

不同氨水平下间作对玉米土壤硝化势和氨氧化微生物数量的影响 吕玉,周龙,龙光强,汤利 (3229)

《环境科学》征订启事(3025) 《环境科学》征稿简则(3057) 信息(3072, 3085, 3143)

中国民用煤燃烧排放细颗粒物中重金属的清单

刘海彪^{1,2}, 孔少飞^{1,2,3*}, 王伟^{1,2}, 严沁^{1,2}

(1. 南京信息工程大学气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 南京 210044; 2. 南京信息工程大学中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室, 南京 210044; 3. 中国地质大学(武汉)环境学院, 武汉 430074)

摘要: 基于稀释通道采样系统和室内模拟燃烧实测, 并搜集全国各省区煤中 11 种重金属的含量, 推算出两种常用民用煤(蜂窝煤和块煤)燃烧排放的细颗粒物($PM_{2.5}$)中 V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 等 11 种重金属排放因子. 计算了 2012 年全国(除港、澳、台地区)民用燃煤排放 $PM_{2.5}$ 中重金属的排放量, 并建立了全国 30 km × 30 km 的网格化清单. 结果表明, 蜂窝煤燃烧排放 $PM_{2.5}$ 中, Pb、Zn、As 和 Cu 的排放因子较高, 分别为 27.1、16.8、0.99 和 0.97 $mg \cdot kg^{-1}$, 分别是块煤的 56、6、10 和 2 倍. 2012 年我国民用燃煤燃烧排放 $PM_{2.5}$ 中 V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 的排放总量分别为 0.5、30.1、59.5、1.1、29.3、20.0、188.9、64.9、1.6、3.4 和 176.7 t. 湖南、河北、内蒙古、河南和山东等省区民用煤燃烧排放的各种重金属总排放量较高, 分别占全国排放总量的 12.4%、12.3%、10.4%、9.9% 和 9.3%. 不同重金属的单位面积排放强度与人均排放量显示, 北京、河南、山东、湖南、江西、贵州以及内蒙古等地区存在较高的重金属健康风险. 空间分布信息显示, Zn 和 Pb 年排放量较大的地区分布较广, 主要分布在内蒙古、河北、北京、天津、山东、河南、甘肃、湖南以及江西等省(市)区. 本研究所得细粒子中重金属清单可为区域空气质量模拟、人体健康风险评估等提供基础数据.

关键词: 民用燃煤; 细颗粒物; 重金属; 排放清单; 空间分布

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)08-2823-13 DOI: 10.13227/j.hjxx.2016.08.002

Emission Inventory of Heavy Metals in Fine Particles Emitted from Residential Coal Burning in China

LIU Hai-biao^{1,2}, KONG Shao-fei^{1,2,3*}, WANG Wei^{1,2}, YAN Qin^{1,2}

(1. Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China; 2. Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China; 3. School of Environmental Studies, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China)

Abstract: Based on a dilution sampling system and domestic burning tests, emission factors (EFs) for eleven heavy metals of V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Zn, As, Cd, Sb and Pb in $PM_{2.5}$ from raw coal and honeycoal burning were calculated, using their contents in raw coals of different provinces. Then the total emission amounts of heavy metals from residential coals burning in 2012 were calculated and 30 km × 30 km grid cell-based emission inventories were established. The results showed that the EFs of Pb, Zn, As and Cu were higher from honeycomb coal burning. They were 27.1, 16.8, 0.99 and 0.97 $mg \cdot kg^{-1}$, which were 56, 6, 10 and 2 times of those for raw coal, respectively. The total emissions of V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Zn, As, Cd, Sb and Pb in $PM_{2.5}$ from residential coal burning in 2012 were 0.5, 30.1, 59.5, 1.1, 29.3, 20.0, 188.9, 64.9, 1.6, 3.4 and 176.7 t. Hunan, Hebei, Inner Mongolia, Henan, and Shandong held higher emission amounts, which were 12.4%, 12.3%, 10.4%, 9.9% and 9.3% of the total emissions of the whole country. Beijing, Henan, Shandong, Hunan, Jiangxi, Guizhou and Inner Mongolia were the regions with higher emission intensities and emission amounts per capita. The spatial distribution showed that the regions with higher annual emissions of Zn and Pb distributed widely, mainly in Inner Mongolia, Hebei, Beijing, Tianjin, Shandong, Henan, Gansu, Hunan and Jiangxi. The emission inventories for heavy metals in fine particles established here are important for regional air quality modeling and human health risk assessment.

Key words: residential coal burning; fine particle; heavy metal; emission inventory; spatial distribution

煤炭作为我国主要的一次能源, 2012 年全国消费总量达到 33.57 亿 t, 占全球消费总量的一半^[1]. 据世界卫生组织统计, 2012 年全球大约有 30 亿人口直接使用明火或通过简单炉具燃烧生物质、煤等燃料做饭取暖, 每年大约有 430 万人死于这些燃料燃烧造成的室内空气污染. 中国有 79% 的农村居民以及 14% 的城市居民在使用这些燃料^[2]. 2012 年我

国居民生活燃煤消耗量为 9 153.44 万 t, 占全国煤炭消耗总量的 2.6%^[3]. 与工业活动相比, 民用煤炭

收稿日期: 2016-01-21; 修订日期: 2016-03-20

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金项目(41305119); 教育部博士点基金项目(20133228120001); 江苏省环境保护科研课题项目(2015017)

作者简介: 刘海彪(1992~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为源排放清单, E-mail: jkbiao@126.com

* 通讯联系人, E-mail: kongshaofei@126.com

烧条件差,无有效的排放控制措施,单位质量燃料在家庭炉灶中燃烧排放污染物的量高于工业活动的排放^[4,5].我国各类能源使用过程中排放的黑炭和多环芳烃,49.8%和62%均来自居民生活燃料燃烧^[6,7].民用煤作为我国一次污染物的主要排放源,亟需对其污染物排放量进行定量表征.

同时民用煤作为室内空气的主要污染源,其排放污染物直接危害人体健康^[8].宣威是我国肺癌死亡率最高的地区之一^[9].有研究表明,宣威农村肺癌的高发病率与家庭使用烟煤高度相关^[9~12].Zn、Cd、Pb和As等重金属可能是导致肺癌高发区PM₁₀样品具有较强氧化损伤能力^[13]及生物活性^[14]的重要因素.煤炭燃烧是大气重金属的重要来源^[15~18],重金属的75%~90%分布在可吸入颗粒物(PM₁₀)中,颗粒物粒径越小,重金属含量越高^[16~19].民用煤燃烧排放的颗粒物以细颗粒为主,PM_{2.5}占PM₁₀的70%~94%^[20~22].重金属可随PM_{2.5}进入人体细支气管和肺泡,甚至进入血液循环^[23~25]给人体带来巨大伤害.例如血铅污染能引起贫血症、神经机能失调和肾损伤;镉可在人体内积蓄,能引起泌尿系统的功能变化以及骨骼严重软化;As、Cr、Ni、Pb、Cd和Sb等重金属具有一定的致癌能力^[24,25];V的化合物也属于剧毒物,对眼、皮肤、呼吸道和神经等都具有毒性^[26].民用煤作为室内PM_{2.5}污染的主要来源之一^[27],开展其燃烧排放PM_{2.5}中重金属特征研究对室内人体健康风险防控具有重要意义.

目前在民用煤燃烧排放方面,对碳组分、多环芳烃以及PM_{2.5}等排放因子已有一些实测研究^[28~31],但对于PM_{2.5}中重金属排放因子的研究却未见报道.在清单方面,田贺忠等^[32~34]基于燃料消耗的排放因子法,按经济部门构建了2005年全国范围内燃煤源砷、锑和硒的排放清单;还按燃煤、燃油、生物质燃烧、金属冶炼以及水泥生产等不同贡献源类型构建了2009年全国范围内大气Ni的排放清单^[35].Reff等^[36]根据不同源排放PM_{2.5}的化学组成,结合PM_{2.5}排放量构建了84种源排放PM_{2.5}中各微量元素的排放清单,这是美国第一个关于PM_{2.5}中微量元素的清单,其中包括了各类重金属.目前,国内关于民用煤燃烧排放PM_{2.5}中重金属的清单还未见报道.开展民用煤燃烧排放的PM_{2.5}中重金属的排放因子实测和基于实测排放因子,构建细粒子中重金属清单对掌握我国民用生活燃煤重金属排放特征和空间分布,开展人群健康风险评价以及制

定相关污染控制政策等具有重要意义.

本研究基于室内模拟燃烧,结合稀释通道系统,获得蜂窝煤和块煤这两种常用民用煤燃烧排放PM_{2.5}中V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb和Pb等重金属的排放因子,并结合中国能源统计年鉴的数据,构建2012年中国民用燃煤燃烧排放PM_{2.5}中重金属的排放清单(香港、澳门、台湾资料暂缺),分析重金属的空间分布特征.

1 材料与方法

1.1 排放因子实测

1.1.1 样品及炉具来源

本研究通过走访调查,选择天津市场内销售较好的一种蜂窝煤(FW)和一种块煤(KM)作为试验样品.燃煤炉具采用从市场中购买的民用节能炉具.

1.1.2 样品采集

采用稀释通道系统对烟气进行采集,系统结构见孔少飞等^[20]的研究.燃料燃烧后排放的烟气通过烟囱排出,在烟囱距火苗高约2.5m处用采样枪通过等速采样将一定体积的烟气抽进稀释系统.在烟气进入采样舱前先经过除湿装置将水汽除去.烟气进入采样舱后,真空泵将一定体积的干洁空气与烟气一并送入稀释舱进行稀释,稀释倍数约在25倍左右.烟气稀释冷却后,采用PM_{2.5}切割头将烟气中的颗粒物收集到滤膜上.采用稀释通道采集聚丙烯纤维滤膜样品,采样流量为20 L·min⁻¹.

1.1.3 试验过程

块煤试验前先用少量薪材将块煤引燃,待充分燃烧后,再将0.3 kg块煤放进炉灶中,开始采样,直至块煤完全燃烧,停止采样.蜂窝煤试验采用3块煤重叠燃烧的方式,先将最底部的一块蜂窝煤引燃,然后再将另两块蜂窝煤放上,等3块蜂窝煤燃烧完全后,停止采样.每种燃料进行3次平行试验.

1.1.4 样品保存与分析

采样滤膜为直径47 mm的聚丙烯纤维滤膜.聚丙烯纤维滤膜采样前置于60℃的烘箱中烘烤2 h,然后在25℃,40%相对湿度的超净实验室中平衡48 h,使用精度为10⁻⁶ g的分析天平称重,恒重前后膜质量差值在5×10⁻⁶ g以内认为恒重合格,并保存于清洁的膜盒中;采样后的滤膜保存在膜盒中,用盒盖密封,膜盒外用锡箔包裹放入冰箱(-20℃)保存.称重前,将采样膜置于相同的环境中平衡48 h,然后再称量质量,两次膜质量差值为膜上颗粒物质量.

重金属元素分析采用美国Agilent公司的

Agilent 7500a 型电感耦合等离子体质谱仪 (ICP-MS) 完成。将待测样品放入 100 mL 带盖的聚四氟乙烯烧杯中, 使用移液管, 加入 5 mL 萃取溶液 (pH = 5.6), 用塑料滴管加一滴 HF (pH = 5.3), 确认萃取溶液体积足以覆盖全部样品, 于 220°C 控温电加热板上加热回流 2.5 h。然后取下盖子蒸干, 关掉电加热板, 利用余温, 用稀盐酸 (pH = 5.4) 5 mL 浸取, 移入 10 mL 塑料比色管中, 以纯水稀释至标线并摇匀, 完成样品的前处理。然后利用雾化器将待分析样品溶液先经雾化处理后, 通过载气, 将所形成含待测分析元素的气溶胶输送至等离子炬管中。样品受热后, 经一系列去溶剂、分解、原子化/离子化等反应, 待分析元素形成单价正离子, 透过真空界面传输进入质谱仪。再用四极杆质量分析器将各特定质荷比分离, 以电子倍增器加以检测, 来进行元素的定性及定量测定工作。

1.1.5 质量控制与质量保证

采样后滤膜放入 -20°C 的冰箱中冷冻保存, 防止样品损失。ICP-MS 的检出限是在本方法拟定的试验条件下, 按试验分析步骤制备 12 份试样空白溶液测定 12 次, 以 3 倍标准偏差计算得出的。V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 的检出限分别为 0.000 8、0.096 4、0.015 5、0.000 4、0.008 3、0.043 7、0.115 9、0.101 8、0.000 2 和 0.000 9 μg 。

1.1.6 排放因子计算

排放因子按公式(1)进行计算:

$$EF_{ij} = \frac{v \times m_{ij} \times n}{v_1 \times M_j} \quad (1)$$

式中, EF_{ij} 为第 j 种燃料燃烧后 i 类污染物的排放因子, $\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$; v 为烟气流量, $\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$; v_1 为采样流量, $\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$; m_{ij} 为第 j 种燃料燃烧后滤膜中 i 类污染物的质量, g ; n 为稀释倍数; M_j 为第 j 种燃料的燃烧量, kg 。

1.2 排放清单构建

1.2.1 排放总量计算

通过查询资料, 确定各省区煤中不同重金属的含量, 详见 2.2.1 节。结合天津地区煤中各重金属的含量和实测排放因子, 推算全国其它地区民用煤燃烧排放各重金属的排放因子。根据 2012 年中国能源统计年鉴^[31], 查找全国各地(除港、澳、台地区)生活消费块煤(原煤)和蜂窝煤(型煤)的量, 结合排放因子, 根据公式(2)分省区计算 $\text{PM}_{2.5}$ 中重金属的排放量。

$$Q_i = \sum M_j \times EF_{ij} \times 10^{-3} \quad (2)$$

式中, Q_i 为 i 类污染物排放量, t ; M_j 为第 j 种燃料的燃烧量, t ; EF_{ij} 为第 j 种燃料燃烧后 i 类污染物的排放因子, $\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

1.2.2 重金属的空间分布

将 2012 年全国各市县人口数据^[37] 作为空间分布权重因子, 利用 Albers 投影, 以东经 73°25'23"E, 135°6'23"E 和北纬 18°5'50"N, 53°35'49"N 为空间分配的网格域, 运用 Arcgis 软件建立 30 km \times 30 km 分辨率的网格化清单。

2 结果与讨论

2.1 民用煤燃烧排放 $\text{PM}_{2.5}$ 中重金属的排放因子

本研究实测所的重金属排放因子见表 1。蜂窝煤燃烧排放 $\text{PM}_{2.5}$ 中 Pb 的排放因子较高, 为 27.1 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 是块煤的 56 倍; Zn 其次, 为 16.8 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 是块煤的 6 倍; As (0.99 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 和 Cu (0.97 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 的排放因子分别是块煤的 10 和 2 倍; 蜂窝煤 Sb (0.11 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 和 Cd (0.11 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) 的排放因子虽不高, 但却是块煤的 37 和 19 倍。其余重金属的排放因子都较小(小于 0.30 $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$), 且与块煤之间相差不大。

在已有的研究中, 民用煤颗粒物排放因子的变化非常大。刘源等^[28] 在实验室模拟民用燃煤的燃烧方式, 通过烟尘罩稀释通道系统采样, 获取了 6 种不同成熟度的散煤和蜂窝煤燃烧排放 $\text{PM}_{2.5}$ 的排放因子, 散煤为 0.78 ~ 11.06 $\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 蜂窝煤为 3.78 ~ 7.28 $\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 并得出结论认为不同煤种排放因子差异很大。Bond 等^[38] 对挥发分为 38.8% 的烟煤进行测量, 获得 $\text{PM}_{2.5}$ 排放因子为 12 $\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 本研究测得的两种民用煤的 $\text{PM}_{2.5}$ 排放因子均在上述数值范围内。

目前, 关于民用煤燃烧排放 $\text{PM}_{2.5}$ 中重金属的排放因子尚未见报道。将本研究各重金属排放因子与 $\text{PM}_{2.5}$ 排放因子的比值与其它研究所得 $\text{PM}_{2.5}$ 的成分谱进行比较, 见表 2。本研究所测蜂窝煤燃烧排放 $\text{PM}_{2.5}$ 中各重金属的排放因子与 $\text{PM}_{2.5}$ 排放因子的比值与 Ge 等^[39] 的研究相比, Co、Ni、Cd 以及 Sb 相差 4 ~ 7 倍; 其余重金属相差 1 ~ 3 倍; 两者中 Pb 和 Zn 均是含量最大的两种重金属, 要比其它重金属高 1 ~ 3 个数量级。本研究块煤燃烧排放 $\text{PM}_{2.5}$ 中含量最高的 Pb 和 Zn 比其它研究^[39~41] 低 21.5 ~ 80.1 和 7.4 ~ 33.3 倍。但这些研究中这两种重金属含量与本研究类似, 均要比其它重金属高 1 ~ 3 个数量级。这表明民用煤燃烧排放的 $\text{PM}_{2.5}$ 中 Pb 和 Zn 是最主

要的重金属成分. 本研究与其他研究所得结果之间的差异跟燃煤品质和燃烧方式等有关, 需要更多的实测数据进行补充和验证.

2.2 民用燃煤燃烧排放 PM_{2.5} 中重金属的排放清单

2.2.1 各省(市)区重金属排放因子确定

根据文献[42]提供的数据, 将某省区内所有煤矿煤样中各重金属含量去掉一个最大值和一个最小值求平均, 得到该省区煤中各重金属的平均含量. 因部分省区没有煤矿统计数据, 考虑其调煤从周边省市调配, 因而采用邻近省份数据替代. 其中北京、天津都采用河北省的数据; 黑龙江和吉林采用东北-内蒙古东部矿区的平均值, 同时东北-内蒙古东部矿区也属于内蒙古的矿区; 重庆采用四川省的数据; 其余未统计的省区则采用全国平均值; 各省区

表 1 民用煤燃烧排放 PM_{2.5} 中重金属的排放因子

(平均值 ± 标准偏差)/mg·kg⁻¹

Table 1 Emission factors of heavy metals in PM_{2.5} from domestic coal burning (mean ± standard value)/mg·kg⁻¹

组分	蜂窝煤	块煤
V	0.005 ± 0.003	0.011 ± 0.012
Cr	0.295 ± 0.221	0.317 ± 0.393
Mn	0.214 ± 0.203	0.375 ± 0.401
Co	0.007 ± 0.005	0.013 ± 0.012
Ni	0.133 ± 0.105	0.237 ± 0.228
Cu	0.967 ± 0.790	0.397 ± 0.393
Zn	16.755 ± 8.838	2.707 ± 2.815
As	0.988 ± 0.564	0.099 ± 0.082
Cd	0.110 ± 0.072	0.003 ± 0.003
Sb	0.113 ± 0.060	0.006 ± 0.006
Pb	27.117 ± 13.714	0.480 ± 0.392
PM _{2.5}	3 323.5 ± 2 434.3	1 287.1 ± 641.3

表 2 与文献中成分谱的比较¹⁾/μg·g⁻¹

Table 2 Comparison with profiles in literatures/μg·g⁻¹

项目	燃煤类型	采样方法	稀释倍数	V	Cr	Mn	Co	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Sb	Pb
本研究	蜂窝煤	—	25	2	89	64	2	40	291	5 041	297	33	34	8 159
	块煤			9	246	291	10	184	308	2 103	77	2	5	373
文献[39]	蜂窝煤	稀释通道	—	1	253	31	11	283	279	2 700	224	174	122	5 120
	煤饼			29	1 210	29	31	730	79	46 200	2 370	313	363	29 900
文献[40]	烟煤	采样	—	na	—	na	—	—	—	70 000	na	—	—	16 000
文献[41]	块煤	—	10	120	0	4 260	0	180	1 180	15 560	580	890	2 400	8 020

1) na 表示未分析; “—”表示无此项

煤中 As 含量采用崔凤海等^[43]的研究, 未统计省区(不含港、澳、台地区)也采用全国平均值. 表 3 列出了全国各省区煤中 V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 等 11 种重金属的平均含量. 将天津两种民用煤实测的重金属排放因子除以天津煤中相应重金属的平均含量, 得到各重金属相应的常量比

值, 再结合其余各省区煤中这 11 种重金属的平均含量(见表 3), 得到各省(市)区民用蜂窝煤与块煤燃烧排放 PM_{2.5} 中各重金属的排放因子, 见表 4 和表 5.

2.2.2 排放总量

根据推算的排放因子和 2012 年全国各省区民用煤消耗情况(见图 1) 计算得出 2012 年全国各省

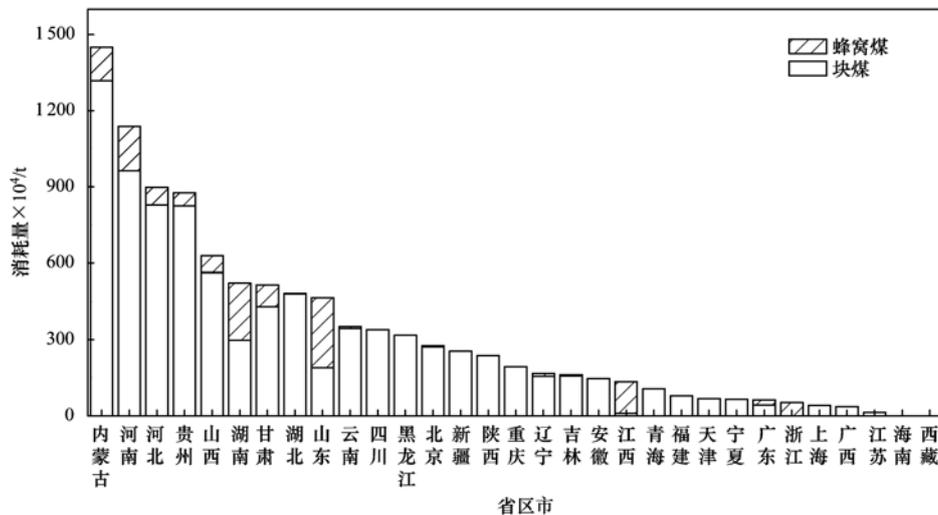


图 1 2012 年全国各省区民用煤消耗量

Fig. 1 Coal consumption for different provinces of China in 2012

香港、澳门、台湾资料暂缺, 下同

表 3 中国各地区煤中不同重金属的含量¹⁾/mg·kg⁻¹Table 3 Contents of heavy metals in coals from different provinces of China/mg·kg⁻¹

省区	V	Cr	Mn	Co	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Sb	Pb
北京	70.5	18.5	47.0*	9.7	13.7	49.2	112.5	3.7	0.9	1.2	39.0
天津	70.5	18.5	47.0*	9.7	13.7	49.2	112.5	1.8	0.9	1.2	39.0
河北	70.5	18.5	47.0*	9.7	13.7	49.2	112.5	1.8	0.9	1.2	39.0
山西	18.0	9.5	20.1	3.5	16.4	15.3	37.9	2.6	0.6	0.6	21.1
内蒙古	16.0	11.3	137.6	7.6	10.5	9.1	45.9	2.0	0.1	1.2	10.3
辽宁	32.5	55.2	105.6	18.0	37.1	29.6	71.8	3.7	0.3*	6.2	17.0
吉林	28.6	15.9	116.0	7.2	15.4	15.5	51.1	15.5	0.1	1.3*	20.1
黑龙江	28.6	15.9	116.0	7.2	15.4	15.5	51.1	3.3	0.1	1.3*	20.1
上海	25.0*	16.0*	47.0*	7.0*	15.0*	13.0*	38.0*	5.0*	0.3*	1.3*	14.0*
江苏	25.3	21.8	96.0	13.5	17.6	49.0	17.2	2.2	0.0	0.2	13.0
浙江	34.5	13.6	28.9	2.7	15.0*	13.0*	38.0*	11.0	0.3*	0.5	14.0*
安徽	31.4	20.3	16.5	9.9	32.4	20.3	6.2	5.0*	0.1	0.6	15.8
福建	25.0*	16.0*	47.0*	7.0*	15.0*	13.0*	38.0*	7.5	0.3*	1.3*	14.0*
江西	71.2	42.2	54.4	6.5	26.5	14.8	102.7	4.0	0.8	1.8	22.3
山东	41.9	7.4	68.2	5.7	29.5	18.7	22.3	3.1	0.3*	0.2	16.8
河南	25.0*	29.6	47.0*	3.2	15.0*	13.0*	38.0*	2.6	0.3*	0.2	15.0
湖北	25.0*	16.0*	47.0*	7.0*	15.0*	13.0*	38.0*	5.1	0.3*	1.3*	14.0*
湖南	31.2	9.7	48.9	3.7	6.3	13.0*	38.0*	19.8	3.4	4.0	14.0*
广东	25.0*	16.0*	47.0*	7.0*	15.0*	13.0*	38.0*	9.6	0.3*	1.3*	14.0*
广西	408.0	181.0	43.2	4.6	15.0*	13.0*	38.0*	10.7	0.3*	0.5	14.0*
海南	25.0*	16.0*	47.0*	7.0*	15.0*	13.0*	38.0*	5.0*	0.3*	1.3*	14.0*
重庆	25.0*	31.7	203.6	47.6	65.2	65.9	38.0*	3.9	3.1	1.3*	36.3
四川	25.0*	31.7	203.6	47.6	65.2	65.9	38.0*	3.9	3.1	1.3*	36.3
贵州	43.2	10.4	119.0	7.4	12.2	23.7	21.1	2.9	0.9	13.1	17.0
云南	25.0*	7.4	34.4	1.9	15.0*	8.7	38.0*	3.6	0.7	1.7	12.2
西藏	25.0*	16.0*	47.0*	7.0	15.0*	13.0*	38.0*	5.0*	0.3*	1.3*	14.0*
陕西	25.0*	16.0*	47.0*	7.0*	15.0*	13.0*	38.0*	3.0	0.3*	1.3*	30.1
甘肃	25.0*	16.0*	47.0*	7.0*	15.0*	13.0*	38.0*	4.9	0.3*	1.3*	14.0*
青海	25.0*	16.0*	47.0*	7.0*	15.0*	13.0*	38.0*	2.0	0.3*	1.3*	14.0*
宁夏	25.0*	16.0*	47.0*	7.0*	15.0*	13.0*	38.0*	2.2	0.3*	1.3*	14.0*
新疆	25.0*	6.8	47.0*	3.6	15.0*	13.0*	17.0	4.2	0.3*	0.7	14.0*

1) * 全国平均值, 香港、澳门、台湾资料暂缺, 下同

表 4 各省区蜂窝煤燃烧排放 PM_{2.5} 中重金属的排放因子/mg·kg⁻¹Table 4 Emission factors of heavy metals in PM_{2.5} from honeycomb coal burning for different provinces/mg·kg⁻¹

省区	V	Cr	Mn	Co	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Sb	Pb
北京	0.005	0.295	0.214	0.007	0.133	0.967	16.755	2.031	0.110	0.113	27.117
天津	0.005	0.295	0.214	0.007	0.133	0.967	16.755	0.988	0.110	0.113	27.117
河北	0.005	0.295	0.214	0.007	0.133	0.967	16.755	0.988	0.110	0.113	27.117
山西	0.001	0.151	0.091	0.002	0.159	0.301	5.648	1.427	0.075	0.057	14.685
内蒙古	0.001	0.180	0.626	0.005	0.102	0.178	6.837	1.098	0.006	0.111	7.151
辽宁	0.002	0.881	0.481	0.013	0.361	0.582	10.694	2.031	0.033	0.591	11.812
吉林	0.002	0.254	0.528	0.005	0.149	0.304	7.607	8.508	0.013	0.124	14.004
黑龙江	0.002	0.254	0.528	0.005	0.149	0.304	7.607	1.811	0.013	0.124	14.004
上海	0.002	0.256	0.214	0.005	0.146	0.256	5.658	2.744	0.035	0.124	9.739
江苏	0.002	0.349	0.437	0.010	0.171	0.962	2.561	1.208	0.004	0.021	9.071
浙江	0.002	0.217	0.132	0.002	0.146	0.256	5.658	6.038	0.035	0.049	9.739
安徽	0.002	0.324	0.075	0.007	0.316	0.400	0.922	2.744	0.006	0.061	10.957
福建	0.002	0.256	0.214	0.005	0.146	0.256	5.658	4.117	0.035	0.124	9.739
江西	0.005	0.675	0.247	0.005	0.258	0.291	15.291	2.196	0.097	0.174	15.485
山东	0.003	0.119	0.310	0.004	0.287	0.368	3.319	1.702	0.038	0.023	11.673
河南	0.002	0.474	0.214	0.002	0.146	0.256	5.658	1.427	0.035	0.022	10.456
湖北	0.002	0.256	0.214	0.005	0.146	0.256	5.658	2.799	0.035	0.124	9.739

续表 4

省区	V	Cr	Mn	Co	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Sb	Pb
湖南	0.002	0.155	0.223	0.003	0.062	0.256	5.658	10.868	0.397	0.381	9.739
广东	0.002	0.256	0.214	0.005	0.146	0.256	5.658	5.269	0.035	0.124	9.739
广西	0.029	2.892	0.197	0.003	0.146	0.256	5.658	5.873	0.035	0.047	9.739
海南	0.002	0.256	0.214	0.005	0.146	0.256	5.658	2.744	0.035	0.124	9.739
重庆	0.002	0.507	0.927	0.034	0.635	1.295	5.658	2.141	0.367	0.124	25.253
四川	0.002	0.507	0.927	0.034	0.635	1.295	5.658	2.141	0.367	0.124	25.253
贵州	0.003	0.167	0.542	0.005	0.118	0.466	3.140	1.592	0.103	1.254	11.840
云南	0.002	0.118	0.157	0.001	0.146	0.171	5.658	1.976	0.083	0.159	8.494
西藏	0.002	0.256	0.214	0.005	0.146	0.256	5.658	2.744	0.035	0.124	9.739
陕西	0.002	0.256	0.214	0.005	0.146	0.256	5.658	1.647	0.035	0.124	20.919
甘肃	0.002	0.256	0.214	0.005	0.146	0.256	5.658	2.690	0.035	0.124	9.739
青海	0.002	0.256	0.214	0.005	0.146	0.256	5.658	1.098	0.035	0.124	9.739
宁夏	0.002	0.256	0.214	0.005	0.146	0.256	5.658	1.208	0.035	0.124	9.739
新疆	0.002	0.109	0.214	0.003	0.146	0.256	2.533	2.305	0.035	0.068	9.739

表 5 各省区块煤燃烧排放 PM_{2.5} 中重金属的排放因子/mg·kg⁻¹Table 5 Emission factors of heavy metals in PM_{2.5} from raw coal burning for different provinces/mg·kg⁻¹

省区	V	Cr	Mn	Co	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Sb	Pb
北京	0.011	0.317	0.375	0.013	0.237	0.397	2.707	0.204	0.003	0.006	0.480
天津	0.011	0.317	0.375	0.013	0.237	0.397	2.707	0.099	0.003	0.006	0.480
河北	0.011	0.317	0.375	0.013	0.237	0.397	2.707	0.099	0.003	0.006	0.480
山西	0.003	0.163	0.160	0.005	0.284	0.123	0.912	0.143	0.002	0.003	0.260
内蒙古	0.002	0.193	1.097	0.010	0.182	0.073	1.105	0.110	0.000	0.006	0.127
辽宁	0.005	0.947	0.842	0.024	0.644	0.239	1.728	0.204	0.001	0.031	0.209
吉林	0.004	0.273	0.925	0.010	0.266	0.125	1.229	0.853	0.000	0.007	0.248
黑龙江	0.004	0.273	0.925	0.010	0.266	0.125	1.229	0.182	0.000	0.007	0.248
上海	0.004	0.275	0.375	0.009	0.260	0.105	0.914	0.275	0.001	0.007	0.172
江苏	0.004	0.375	0.766	0.018	0.305	0.395	0.414	0.121	0.000	0.001	0.161
浙江	0.005	0.234	0.231	0.004	0.260	0.105	0.914	0.605	0.001	0.003	0.172
安徽	0.005	0.348	0.132	0.013	0.562	0.164	0.149	0.275	0.000	0.003	0.194
福建	0.004	0.275	0.375	0.009	0.260	0.105	0.914	0.413	0.001	0.007	0.172
江西	0.011	0.725	0.434	0.009	0.459	0.120	2.471	0.220	0.003	0.009	0.274
山东	0.007	0.128	0.544	0.008	0.511	0.151	0.536	0.171	0.001	0.001	0.207
河南	0.004	0.509	0.375	0.004	0.260	0.105	0.914	0.143	0.001	0.001	0.185
湖北	0.004	0.275	0.375	0.009	0.260	0.105	0.914	0.281	0.001	0.007	0.172
湖南	0.005	0.166	0.390	0.005	0.110	0.105	0.914	1.089	0.011	0.020	0.172
广东	0.004	0.275	0.375	0.009	0.260	0.105	0.914	0.528	0.001	0.007	0.172
广西	0.064	3.108	0.345	0.006	0.260	0.105	0.914	0.589	0.001	0.002	0.172
海南	0.004	0.275	0.375	0.009	0.260	0.105	0.914	0.275	0.001	0.007	0.172
重庆	0.004	0.544	1.624	0.064	1.131	0.532	0.914	0.215	0.010	0.007	0.447
四川	0.004	0.544	1.624	0.064	1.131	0.532	0.914	0.215	0.010	0.007	0.447
贵州	0.007	0.179	0.949	0.010	0.211	0.191	0.507	0.160	0.003	0.067	0.210
云南	0.004	0.127	0.274	0.003	0.260	0.070	0.914	0.198	0.002	0.008	0.150
西藏	0.004	0.275	0.375	0.009	0.260	0.105	0.914	0.275	0.001	0.007	0.172
陕西	0.004	0.275	0.375	0.009	0.260	0.105	0.914	0.165	0.001	0.007	0.370
甘肃	0.004	0.275	0.375	0.009	0.260	0.105	0.914	0.270	0.001	0.007	0.172
青海	0.004	0.275	0.375	0.009	0.260	0.105	0.914	0.110	0.001	0.007	0.172
宁夏	0.004	0.275	0.375	0.009	0.260	0.105	0.914	0.121	0.001	0.007	0.172
新疆	0.004	0.117	0.375	0.005	0.260	0.105	0.409	0.231	0.001	0.004	0.172

区民用煤燃烧排放 PM_{2.5} 中 11 种重金属的排放总量 (见表 6). V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 的全国排放总量分别为 0.5、30.1、59.5、

1.1、29.3、20.0、188.9、64.9、1.6、3.4 和 176.7 t. Zn 和 Pb 的排放量远高于其他重金属, 共占 11 种重金属排放总量的 63.5%. 湖南、河北、内蒙古、

表 6 2012 年全国各省区民用煤燃烧排放 $PM_{2.5}$ 中重金属排放量¹⁾/kgTable 6 Emission amounts of heavy metals in $PM_{2.5}$ from residential coal burning in 2012 for different provinces/kg

省区	V	Cr	Mn	Co	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Sb	Pb
北京	30.1	874.9	1 029.5	35.7	650.5	1 119.7	8 044.5	635.8	12.6	20.9	2 399.5
天津	7.4	214.3	253.5	8.8	160.2	268.4	1 829.9	66.9	2.0	4.1	324.5
河北	94.6	2 831.7	3 256.2	112.6	2 056.3	3 960.9	34 058.1	1 505.9	101.2	128.1	22 791.6
山西	16.7	1 015.1	961.6	27.8	1 705.4	889.6	8 781.4	1 724.8	59.4	53.3	10 911.3
内蒙古	34.4	2 783.0	15 289.9	140.5	2 538.2	1 199.3	23 561.0	2 895.1	9.9	224.0	11 083.4
辽宁	8.2	1 581.5	1 369.2	38.9	1 045.2	443.5	4 003.1	566.5	5.5	121.5	1 779.3
吉林	7.1	443.2	1 482.6	15.3	426.7	213.7	2 366.7	1 827.5	1.3	17.5	1 194.3
黑龙江	14.2	867.6	2 939.5	30.4	846.2	397.1	3 905.1	576.7	1.1	21.0	787.6
上海	1.6	113.2	154.5	3.9	107.2	43.2	376.5	113.3	0.4	2.7	71.0
江苏	0.6	52.6	107.6	2.5	42.9	55.5	58.1	17.0	0.0	0.2	22.6
浙江	1.3	115.2	69.7	1.0	77.4	135.4	2 998.7	3 200.0	18.8	25.9	5 161.8
安徽	7.2	510.8	193.6	19.4	826.0	241.0	218.7	404.0	0.2	4.8	284.9
福建	3.1	217.1	296.3	7.4	205.6	82.9	722.2	325.9	0.8	5.2	136.2
江西	7.4	916.3	352.7	6.7	368.2	376.3	19 361.3	2 766.4	121.5	218.8	19 384.3
山东	20.6	570.1	1 887.4	25.8	1 759.5	1 301.3	10 171.7	5 017.1	106.4	65.7	32 593.5
河南	40.7	5 730.4	3 985.8	45.1	2 761.8	1 457.3	18 704.4	3 874.5	71.4	49.8	20 080.0
湖北	18.8	1 326.2	1 807.0	45.1	1 254.0	509.8	4 518.9	1 410.2	5.4	34.5	1 044.7
湖南	19.5	843.6	1 663.9	20.5	465.9	888.1	15 471.3	27 731.9	927.8	919.1	22 459.0
广东	2.0	170.8	205.6	5.1	142.2	97.3	1 545.0	1 299.0	7.6	28.2	2 053.6
广西	23.4	1 143.2	126.8	2.3	95.7	38.6	336.2	216.5	0.4	0.9	63.4
海南	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
重庆	7.6	1 056.5	3 152.9	123.4	2 195.6	1 032.1	1 774.2	416.3	19.4	12.8	867.6
四川	13.3	1 851.9	5 526.4	216.4	3 848.4	1 809.0	3 109.8	729.7	34.0	22.5	1 520.7
贵州	57.2	1 564.7	8 117.0	84.1	1 802.6	1 819.6	5 819.5	2 144.0	76.7	1 201.1	7 886.4
云南	13.6	447.4	958.9	9.0	909.1	255.2	3 584.1	833.4	14.1	41.2	1 164.3
西藏	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
陕西	9.3	652.1	890.0	22.2	617.7	249.0	2 169.6	391.6	2.3	15.7	878.8
甘肃	18.3	1 400.7	1 797.0	44.6	1 245.0	669.0	8 746.4	3 446.9	34.3	134.3	9 020.9
青海	4.2	295.7	403.5	10.1	280.1	112.9	983.7	118.4	1.0	7.1	185.5
宁夏	2.6	182.0	248.4	6.2	172.4	69.5	605.4	80.1	0.6	4.4	114.2
新疆	10.0	299.5	956.3	12.3	663.6	267.5	1 043.4	589.1	2.5	9.2	439.6
全国	494.9	30 071.4	59 483.2	1 122.8	29 269.6	20 002.6	188 869.0	64 924.4	1 638.7	3 394.4	176 704.6

1) “—”表示无数据

河南和山东等省区民用煤燃烧排放的各种重金属总排放量较高,分别占全国排放总量的 12.4%、12.3%、10.4%、9.9% 和 9.3%; 福建、宁夏、上海以及江苏等地区排放量较少,共只占全国排放总量的 0.9%。海南和西藏由于没有民用燃煤消耗量的统计数据,未进行计算。

由于蜂窝煤和块煤之间重金属排放因子存在差异,虽然全国块煤消耗量为 8 784.7 万 t, 约是蜂窝煤消耗量(1 304.7 万 t)的 6.7 倍,但蜂窝煤对 Sb、As、Cd 和 Pb 排放量的贡献率却达到 70%~88% (见图 2),对 Pb 和 Cd 的贡献率最高,其次是 As。其余重金属由于块煤消耗量大,蜂窝煤与块煤之间排放因子相差不大,从而使得块煤的贡献占主要地位。民用煤中 Zn 和 Pb 的排放量要远远超过其他重金属排

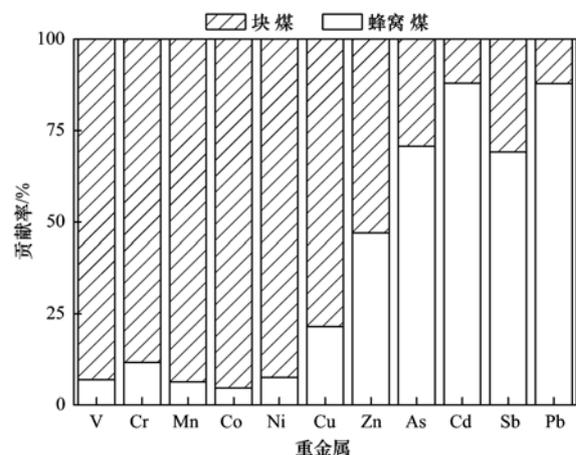


图 2 蜂窝煤与块煤燃烧对 11 种重金属排放量的贡献

Fig. 2 Contributions of honeycomb coal and raw coal burning to the total emissions of each heavy metal

放量,而且蜂窝煤对这两种重金属的贡献率分别为47%和82%。从室内人体健康风险防控的角度考虑,蜂窝煤排放Pb和Zn需重点关注。

2.2.3 排放强度

图3给出了2012年各地区民用煤燃烧排放PM_{2.5}中重金属的排放强度。民用煤Zn排放强度最

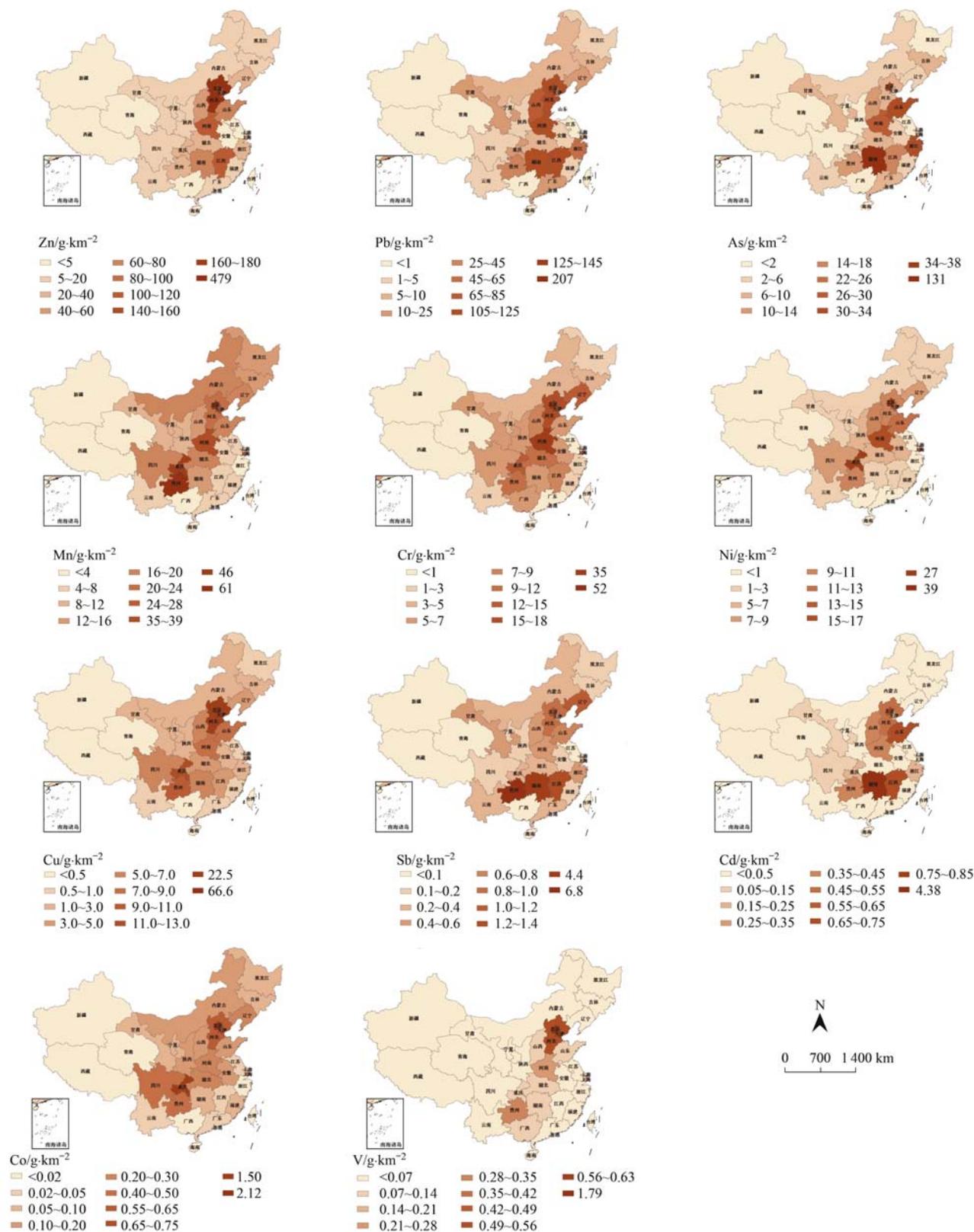


图3 2012年中国各省区民用煤燃烧排放PM_{2.5}中重金属的排放强度

Fig. 3 Emission intensities of heavy metals in PM_{2.5} from residential coal burning in different provinces of China in 2012

高的地区是北京,为 $478.6 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$,远高于排在第二位的河北($180.4 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$);天津、江西以及河南排放强度也较高,分别为 153.1 、 115.7 和 $113.0 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$;其余地区均小于 $80 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$,安徽、广西、青海和新疆的排放强度最少,均小于 $5 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$.山东省 Pb 的排放强度最高,为 $207 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$;北京和河南次之,分别为 $142.8 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$ 和 $121.3 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$;湖南、江西以及河北等地 Pb 的排放强度在 $106.0 \sim 120.7 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$ 之间.这些地区也是全国血铅超标事件频发区^[44].其余省份 Pb 的排放强度均在 $0.2 \sim 69.6 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$ 之间.湖南是民用煤 As 排放强度最高的地区,其排放强度为 $130.9 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$,是排在第二位的北京($37.8 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$)的 3.5 倍.其余重金属排放强度均小于 $66.6 \text{ g}\cdot\text{km}^{-2}$.整体来说,北京、河南、山东、湖南、江西、贵州等地区是民用煤重金属排放强度较高的地区,存在较高的人群健康风险.

2.2.4 人均排放量

人均排放量也可以体现某地区重金属对人群健康风险的大小.图 4 显示了各重金属的人均排放量. Zn 的人均排放量除了内蒙古($957.8 \text{ mg}\cdot\text{人}^{-1}$)外,北京、河北和江西等地也较多,在 $403.1 \sim 618.8 \text{ mg}\cdot\text{人}^{-1}$ 之间,甘肃、山西以及湖南等地的人均排放量超过 $200 \text{ mg}\cdot\text{人}^{-1}$. Pb 人均排放量较大的省份以内蒙古($450.6 \text{ mg}\cdot\text{人}^{-1}$)和江西($403.5 \text{ mg}\cdot\text{人}^{-1}$)为主;山东、甘肃、湖南、山西以及河北等地区也较多,人均排放量在 $307.3 \sim 340.2 \text{ mg}\cdot\text{人}^{-1}$ 之间;浙江、河南、北京和贵州等地的人均排放量在 $107.5 \sim 190.8 \text{ mg}\cdot\text{人}^{-1}$ 之间;其余地区的人均排放量均小于 $50 \text{ mg}\cdot\text{人}^{-1}$.由于不同地区煤中各重金属的含量存在巨大差异,各重金属人均排放量最大值会比较突出,如 Zn、As 以及 Mn 等.整体来说,内蒙古、贵州、北京、湖南以及甘肃等地区各类重金属人均排放量较高,这些地区存在较高的重金属(特别是 Zn、Pb、As 和 Mn 等重金属)健康风险.

2.2.5 空间分布特征

图 5 给出了民用燃煤燃烧排放 $\text{PM}_{2.5}$ 中 11 种重金属的 $30 \text{ km} \times 30 \text{ km}$ 空间分布. Zn 年排放量大于 900 kg 的区域主要分布在北京、天津、包头、唐山、赤峰、呼和浩特、石家庄和重庆等地区,其中天津、包头和唐山等部分地区年排放量在 1.4 t 左右,北京市部分地区年排放量大于 1.5 t ,全市(除了密云县和延庆县)总量超过了 7.0 t .

Pb 年排放量大于 650 kg 的地区主要分布在北京、山东中部和南部、湖南东部、江西北部等地区,其中北京各区总和达到了 2.3 t ,山东济南地区总和达到了 1.2 t ,其余地区均在 1 t 以下. As 和 Cd 年排放量较大的地区主要集中在湖南,这与湖南当地煤矿中 As 和 Cd 含量高以及较高的蜂窝煤用量紧密相关. Mn($>400 \text{ kg}$)年排放量较高的地区主要集中在重庆市(不含周边县)以及内蒙古中部(呼和浩特和包头及周边)和东部(赤峰和通辽及周边)等地区. Cr($>400 \text{ kg}$)、Ni($>400 \text{ kg}$)、Cu($>400 \text{ kg}$)和 Co($>9 \text{ kg}$)等重金属年排放量较高的地区分布在北京市(不含密云和延庆县)以及重庆市(不含周边县)等地区. Sb($>25 \text{ kg}$)年排放量较大的地区主要分布在贵州大部以及湖南中东部. V($>15 \text{ kg}$)年排放量较大的地区主要集中在北京.总体上, Pb 和 Zn 两种重金属年排放量较大的地区分布较广,主要分布在内蒙古、河北、北京、天津、山东、河南、甘肃、湖南以及江西等省(市)区;其余重金属年排放量较高的地区都有一定的地域性,在个别省(市)区较集中,主要是由这些重金属在煤中含量随地域不同有明显的差异以及各地区民用煤用量多少造成的.

2.3 清单不确定性分析

影响民用煤燃烧排放 $\text{PM}_{2.5}$ 中重金属清单的主要因素为重金属排放因子和民用煤消耗量活动源水平数据的可靠性.本研究与前人研究相比,在细粒子中重金属排放因子实测方面有显著进步.本研究采用稀释通道,实测了天津市场上两种民用煤燃烧排放细粒子中重金属排放因子,并搜集了全国各煤矿产区煤中重金属的含量,推算出各省民用块煤和蜂窝煤排放重金属的排放因子,与已有的研究相比^[31,32],不考虑燃烧装置的释放比、能源分配比等参数,降低了清单构建过程中的参数数量,可减小清单的不确定性.也考虑到蜂窝煤与块煤的差异,构建了两类燃烧排放重金属清单.同时本研究所得重金属清单,是基于细颗粒物的,也是进步之处.但本研究选用煤炭种类偏少,各地区实际燃煤品质以及蜂窝煤制作工艺尚不清楚,推算的排放因子有较大的不确定性.后续研究,需要对不同地区的民用煤重金属排放因子进行实测,补充和更新排放因子数据库.活动源水平来自国家统计数据,能较好地保证其可靠性.

本研究采用了 Streets 等^[45]的不确定度计算方法,结果如表 7 所示.95% 置信度下各重金属清单

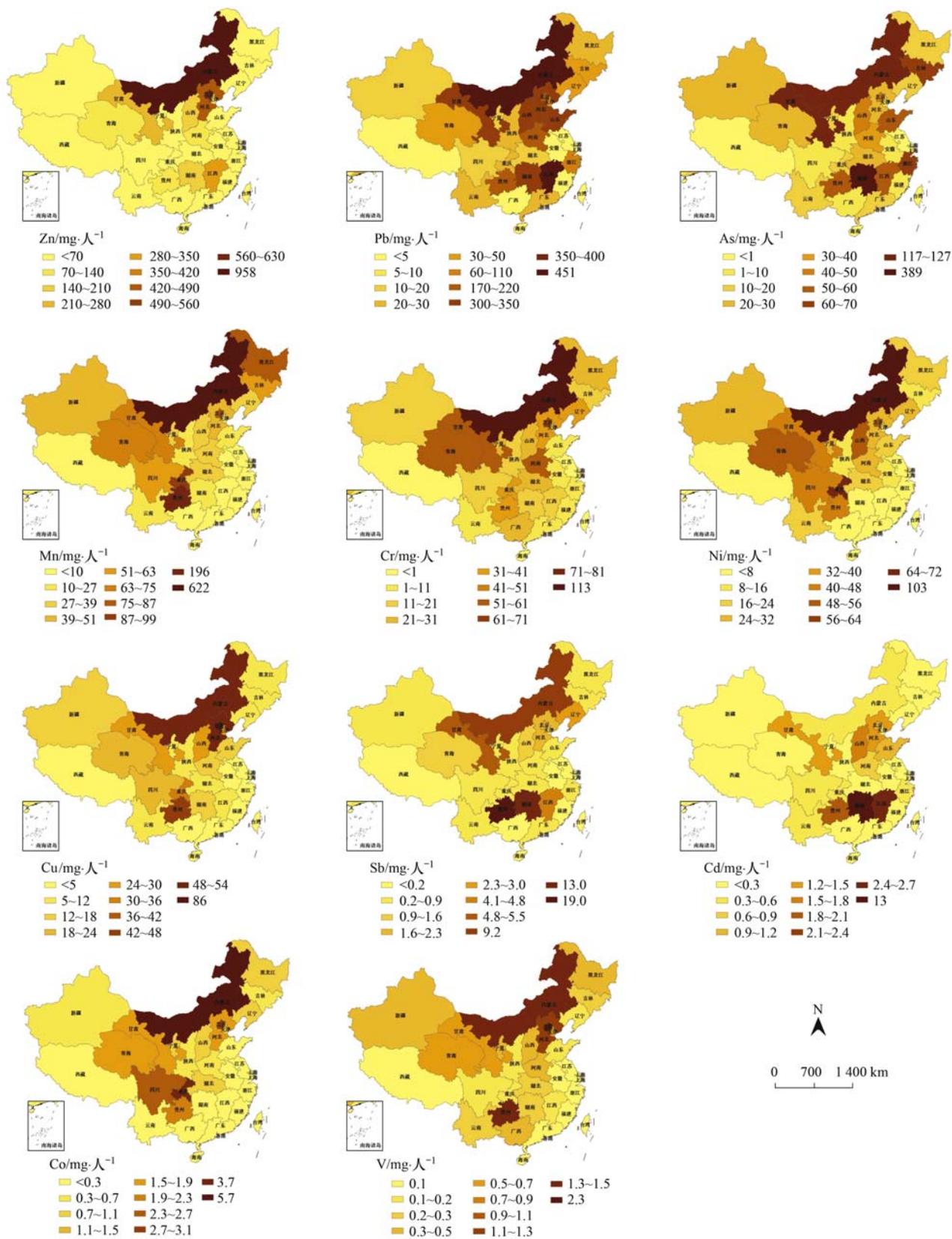


图 4 2012 年全国各省区民用煤燃烧排放 $PM_{2.5}$ 中重金属的人均排放量

Fig. 4 Per capita emission of heavy metals in $PM_{2.5}$ from residential coal burning in different provinces of China in 2012

的不确定度在 90% ~ 216% 之间,其中, V、Cr 和 Mn 的不确定度较大,主要是因为民用块煤对这 3 种重

金属的贡献率较大,在 88% ~ 93% 之间,且块煤燃烧排放的 $PM_{2.5}$ 中这 3 种重金属排放因子的相对标

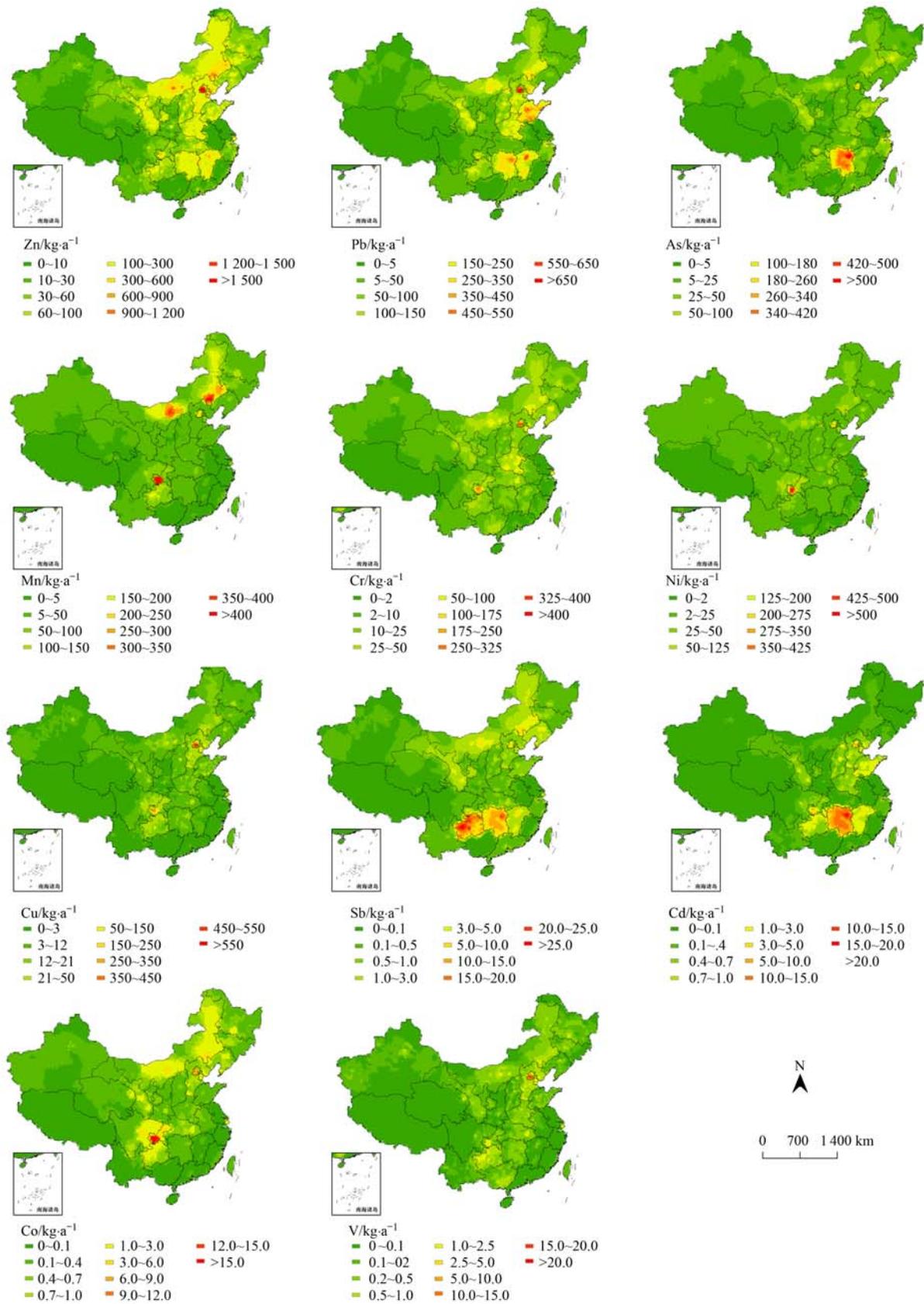


图 5 2012 年全国民用煤燃烧排放 PM_{2.5} 中重金属的空间分布

Fig. 5 Spatial distribution (30 km × 30 km) of heavy metals in PM_{2.5} emitted from residential coal burning of China in 2012

表 7 95%置信度下各重金属的不确定度/%

Table 7 Uncertainty in emission estimates under $\pm 95\%$ confidence intervals/%

组分	V	Cr	Mn	Co	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Sb	Pb
不确定度	202	216	197	167	175	157	119	92	115	94	90

准偏差较大.

3 结论

(1) 蜂窝煤燃烧排放 $PM_{2.5}$ 中, Pb、Zn、As 和 Cu 的排放因子较高, 为 27.1、16.8、0.99 和 0.97 $mg \cdot kg^{-1}$, 分别是块煤的 56、6、10 和 2 倍; 蜂窝煤 Sb 和 Cd 的实测排放因子虽然较小, 为 0.11 $mg \cdot kg^{-1}$, 但却是块煤的 37 和 19 倍. 其余重金属排放因子都较小(均小于 0.30 $mg \cdot kg^{-1}$), 且与块煤之间相差不大.

(2) 2012 年我国民用煤燃烧排放 $PM_{2.5}$ 中 V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Sb 和 Pb 的排放总量分别为 0.5、30.1、59.5、1.1、29.3、20.0、188.9、64.9、1.6、3.4 和 176.7 t. Zn 和 Pb 的排放量远远高于其他重金属, 共占 11 种重金属排放总量的 63.5%. 湖南、河北、内蒙古、河南以及山东等省区民用煤燃烧排放的各种重金属总排放量较高, 占全国总量的 54.3%.

(3) 不同重金属的单位面积排放强度与人均排放量显示, 北京、河南、山东、湖南、江西、贵州以及内蒙古等地区存在较高的重金属健康风险. 空间分布信息则显示, Pb 和 Zn 两种重金属年排放量较大的地区分布较广, 主要分布在内蒙古、河北、北京、天津、山东、河南、甘肃、湖南以及江西等省(市)区; 由于不同地区煤中重金属含量和各地区民用煤用量差异较大, 其余重金属年排放量较高的地区都有一定的地域性, 在个别省(市)区较集中.

参考文献:

- [1] BP. BP statistical review of world energy [R]. [S. l.]: BP Statistical Review of World Energy, 2013. 33-34, 40-41.
- [2] Household Air Pollution and Health. Household air pollution and health [EB/OL]. (2015-11). <http://www.who.int/mediacentre/factsheets/fs292/en/>.
- [3] 于国光, 王铁冠, 吴大鹏. 薪柴燃烧源和燃煤源中多环芳烃的成分谱研究[J]. 生态环境, 2007, 16(2): 285-289.
- [4] 国家统计局能源统计司. 中国能源统计年鉴 2012 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2013.
- [5] Shen G F, Yang Y F, Wang W, *et al.* Emission factors of particulate matter and elemental carbon for crop residues and coals burned in typical household stoves in China [J]. Environmental Science & Technology, 2010, 44(18): 7157-7162.
- [6] Wang R, Tao S, Wang W T, *et al.* Black carbon emissions in China from 1949 to 2050 [J]. Environmental Science & Technology, 2012, 46(14): 7595-7603.
- [7] Shen G F, Tao S, Wei S Y, *et al.* Emissions of parent, nitro, and oxygenated polycyclic aromatic hydrocarbons from residential wood combustion in rural China [J]. Environmental Science & Technology, 2012, 46(15): 8123-8130.
- [8] Florig H K. Peer reviewed: China's air pollution risks [J]. Environmental Science & Technology, 1997, 31(6): 274A-279A.
- [9] 周林, 邵龙义, 刘君霞, 等. 宣威肺癌高发区室内 PM_{10} 对肺泡上皮细胞凋亡的影响 [J]. 中国环境科学, 2010, 30(7): 1004-1008.
- [10] Tian L W, Lucas D, Fischer S L, *et al.* Particle and gas emissions from a simulated coal-burning household fire pit [J]. Environmental Science & Technology, 2008, 42(7): 2503-2508.
- [11] Lan Q, Chapman R S, Schreinemachers D M, *et al.* Household stove improvement and risk of lung cancer in Xuanwei, China [J]. Journal of the National Cancer Institute, 2002, 94(11): 826-835.
- [12] 邵龙义, 杨园园, 吴明远, 等. 宣威肺癌高发区室内 PM_{10} 的氧化性损伤能力及其与微量元素的关系 [J]. 环境与健康杂志, 2008, 25(12): 1094-1096.
- [13] 周林, 邵龙义, 宋晓焱, 等. 宣威肺癌高发区室内 PM_{10} 的生物活性研究 [J]. 毒理学杂志, 2009, 23(6): 439-441.
- [14] 杨婧, 郭晓爽, 滕曼, 等. 我国大气细颗粒物中金属污染特征及来源解析研究进展 [J]. 环境化学, 2014, 33(9): 1514-1521.
- [15] Tian H Z, Wang Y, Xue Z G, *et al.* Trend and characteristics of atmospheric emissions of Hg, As, and Se from coal combustion in China, 1980-2007 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, 10(23): 11905-11919.
- [16] Rizzio E, Giaveri G, Arginelli D, *et al.* Trace elements total content and particle sizes distribution in the air particulate matter of a rural-residential area in north Italy investigated by instrumental neutron activation analysis [J]. Science of the Total Environment, 1999, 226(1): 47-56.
- [17] 方凤满. 中国大气颗粒物中金属元素环境地球化学行为研究 [J]. 生态环境学报, 2010, 19(4): 979-984.
- [18] 林俊, 刘卫, 李燕, 等. 上海市郊区大气细颗粒和超细颗粒物中元素粒径分布研究 [J]. 环境科学, 2009, 30(4): 982-987.
- [19] 徐宏辉, 王跃思, 温天雪, 等. 北京市大气气溶胶中金属元素的粒径分布和垂直分布 [J]. 环境化学, 2007, 26(5): 675-679.
- [20] 孔少飞, 白志鹏, 陆炳. 民用燃料燃烧排放 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中碳组分排放因子对比 [J]. 中国环境科学, 2014, 34(11): 2749-2756.
- [21] Reddy M S, Venkataraman C. Inventory of aerosol and sulphur dioxide emissions from India. Part II: biomass combustion [J].

- Atmospheric Environment, 2002, **36**(4): 699-712.
- [22] 彭瑞玲, 刘君卓, 潘小川, 等. 3 种民用燃料的燃烧颗粒物的含量及其粒径组成[J]. 环境与健康杂志, 2005, **22**(1): 13-15.
- [23] 姚琳, 廖欣峰, 张海洋, 等. 中国大气重金属污染研究进展与趋势[J]. 环境科学与管理, 2012, **37**(9): 41-44.
- [24] Hu X, Zhang Y, Ding Z H, *et al.* Bioaccessibility and health risk of arsenic and heavy metals (Cd, Co, Cr, Cu, Ni, Pb, Zn and Mn) in TSP and PM_{2.5} in Nanjing, China[J]. Atmospheric Environment, 2012, **57**: 146-152.
- [25] Hu Z J, Shi Y L, Niu H Y, *et al.* Synthetic musk fragrances and heavy metals in snow samples of Beijing urban area, China[J]. Atmospheric Research, 2012, **104-105**: 302-305.
- [26] 岳龙清, 岳子玉, 罗德礼, 等. 钒及其化合物的安全防护及应急处理[A]. 见: 2013 年第二届全国危险物质与安全应急技术研讨会论文集[C]. 成都: 中国化学会, 2013. 465-476.
- [27] 石晶金, 袁东, 赵卓慧. 我国住宅室内 PM_{2.5} 来源及浓度的影响因素研究进展[J]. 环境与健康杂志, 2015, **32**(9): 825-829.
- [28] 刘源, 张元勋, 魏永杰, 等. 民用燃煤含碳颗粒物的排放因子测量[J]. 环境科学学报, 2007, **27**(9): 1409-1416.
- [29] Chen Y J, Zhi G R, Feng Y L, *et al.* Measurements of emission factors for primary carbonaceous particles from residential raw-coal combustion in China[J]. Geophysical Research Letters, 2006, **33**(20): L20815.
- [30] Chen Y J, Sheng G Y, Bi X H, *et al.* Emission factors for Carbonaceous particles and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from residential coal combustion in China[J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(6): 1861-1867.
- [31] 海婷婷, 陈颖军, 王艳, 等. 民用燃煤源中多环芳烃排放因子实测及其影响因素研究[J]. 环境科学, 2013, **34**(7): 2533-2538.
- [32] 田贺忠, 赵丹, 何孟常, 等. 2005 年中国燃煤大气锑排放清单[J]. 中国环境科学, 2010, **30**(11): 1550-1557.
- [33] 田贺忠, 曲益萍. 2005 年中国燃煤大气砷排放清单[J]. 环境科学, 2009, **30**(4): 956-962.
- [34] 田贺忠, 曲益萍, 王艳, 等. 2005 年度中国燃煤大气硒排放清单[J]. 中国环境科学, 2009, **29**(10): 1011-1015.
- [35] Tian H Z, Lu L, Cheng K, *et al.* Anthropogenic atmospheric nickel emissions and its distribution characteristics in China[J]. Science of the Total Environment, 2012, **417-418**: 148-157.
- [36] Reff A, Bhave P V, Simon H, *et al.* Emissions inventory of PM_{2.5} trace elements across the United States[J]. Environmental Science & Technology, 2009, **43**(15): 5790-5796.
- [37] 公安部治安管理局. 中华人民共和国全国分县市人口统计资料 2012[M]. 北京: 群众出版社, 2014.
- [38] Bond T C, Covert D S, Kramlich J C, *et al.* Primary particle emissions from residential coal burning: optical properties and size distributions [J]. Journal of Geophysical Research: Atmosphere, 2002, **107**(D21): ICC 9-1-ICC 9-14.
- [39] Ge S, Xu X, Judith C, *et al.* Emissions of air pollutants from household stoves: honeycomb coal versus coal cake [J]. Environmental Science & Technology, 2004, **38**(17): 4612-4618.
- [40] Engelbrecht J P, Swanepoel L, Chow J C, *et al.* The comparison of source contributions from residential coal and low-smoke fuels, using CMB modeling, in South Africa [J]. Environmental Science & Policy, 2002, **5**(2): 157-167.
- [41] Watson J G, Chow J C, Houck J E. PM_{2.5} chemical source profiles for vehicle exhaust, vegetative burning, geological material, and coal burning in Northwestern Colorado during 1995 [J]. Chemosphere, 2001, **43**(8): 1141-1151.
- [42] 唐修义, 黄文辉. 中国煤中微量元素[M]. 北京: 商务印书馆, 2004.
- [43] 崔凤海, 陈怀珍. 我国煤中砷的分布及赋存特征[J]. 煤炭科学技术, 1998, **26**(12): 44-46.
- [44] 叶铁桥, 重金属污染事件频发[N]. 中国青年报, 2012-02-01(07).
- [45] Streets D G, Yarber K F, Woo J H, *et al.* Biomass burning in Asia; annual and seasonal estimates and atmospheric Emissions [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2003, **17**(4): 1099.

CONTENTS

Spatiotemporal Distribution and Source Attribution of SOA in China	CHEN Zhuo, LIU Jun-feng, TAO Wei, <i>et al.</i> (2815)
Emission Inventory of Heavy Metals in Fine Particles Emitted from Residential Coal Burning in China	LIU Hai-biao, KONG Shao-fei, WANG Wei, <i>et al.</i> (2823)
Diurnal Variation of PM _{2.5} Mass Concentration in Beijing and Influence of Meteorological Factors Based on Long Term Date	MIAO Lei, LIAO Xiao-nong, WANG Ying-chun (2836)
Characteristics of Ozone Background Concentration in Beijing from 2004 to 2015	CHENG Nian-liang, LI Yun-ting, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i> (2847)
Online Sources about Atmospheric Fine Particles During the 70th Anniversary of Victory Parade in Shijiazhuang	ZHOU Jing-bo, LI Zhi-guo, LU Na, <i>et al.</i> (2855)
Pollution Characteristics of Inorganic Water-soluble Ions in Atmospheric Particulate Matter in Chengdu Plain	JIANG Yan, HE Guang-yan, LUO Bin, <i>et al.</i> (2863)
Observation Analysis on the Characteristics of Meteorological Elements and Pollutants During a Continuous Fog and Haze Episode in Spring in Jiaying City SHEN Li-juan, WANG Hong-lei, LI Li, <i>et al.</i> (2871)
Characteristics and Source Apportionment of Metals in the Dustfall of Quanzhou City	ZHANG Zong-wei, HU Gong-ren, YU Rui-lian, <i>et al.</i> (2881)
Level and the Courses of Heavy Metals and Its Risk Assessment in Indoor Dust of City: Take Guiyang as a Case	LI Xiao-yan, WANG Lang, ZHANG Shu-ting (2889)
Chemical Characteristics and Source of Acid Precipitation in Guilin	GUO Ya-si, YU Shi, LI Yong-shan, <i>et al.</i> (2897)
Assessment of Gaseous Nitrogen (NH ₃ and N ₂ O) Mitigation After the Application of a Range of New Nitrogen Fertilizers in Summer Maize Cultivation FAN Hui, JIANG Shan-shan, WEI Ying, <i>et al.</i> (2906)
Soil CO ₂ , CH ₄ and N ₂ O Fluxes from Alpine Meadows on the Plateau of Southern Qinghai Province During Snow Cover Period and Growing Seasons	WU Jian-guo, ZHOU Qiao-fu (2914)
Partial Pressure of Carbon Dioxide and Methane from Autumn to Winter in Xiangxi Bay of the Three Gorges Reservoir	ZHANG Jun-wei, LEI Dan, XIAO Shang-bin, <i>et al.</i> (2924)
Potential Impacts of Climate Change on Phosphorus and DO in Yuqiao Reservoir	ZHANG Chen, LIU Han-an, GAO Xue-ping, <i>et al.</i> (2932)
Land Use Structure Change and Its Control Effect of Nitrogen Output in a Small Watershed of Three Gorges Reservoir Area: A Case Study of Lanlingxi Watershed WU Dong, HUANG Zhi-lin, XIAO Wen-fa, <i>et al.</i> (2940)
Response of Inflow Water Quality to Land Use Pattern in Northern Watershed of Lake Erhai	XIANG Song, PANG Yan, CHU Zhao-sheng, <i>et al.</i> (2947)
Effect of Nutrient Cycles in Tributaries on the Transport of Nutrient in the Three Gorge Reservoirs: A Case Study of Caotang River	WANG Xiao-tong, LUO Guang-fu, CAO Man, <i>et al.</i> (2957)
Transient Storage Characteristics of Artificial Pool Geomorphic Structure in an Agricultural Headwater Stream	LI Ru-zhong, HUANG Qing-fei, QIAN Jing, <i>et al.</i> (2964)
Distribution Characteristics of Solute Nitrogen in the Water-Sediment of Farmland Drainage Ditch	LI Qiang-kun, HU Ya-wei, SONG Chang-ji, <i>et al.</i> (2973)
Characteristics and Influencing Factors of Soil Microbial Biomass Carbon and Nitrogen in Drawdown Area in the Three Gorges Reservoir CHAI Xue-si, LEI Li-guo, JIANG Chang-sheng, <i>et al.</i> (2979)
Response Behaviors of Heavy Metals at Tidal Currents Interface and Salinity Interface in the Estuary Area	LIU Jing, ZHENG Bing-hui, LIU Lu-san, <i>et al.</i> (2989)
Simulation of Multimedia Transfer and Fate of Perfluorooctane Sulfonate (PFOS) in Shenzhen Region	CUI Xiao-yu, ZHANG Hong, LUO Ji, <i>et al.</i> (3001)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Surface Sediments of Zhelin Bay in Guangdong Province, China WEI Ya-ning, PAN Jia-chuan, SONG Yu-mei, <i>et al.</i> (3007)
Spatial Distribution Characteristics and Source Analysis of Dissolved Organic Matter in Beiyun River	CHEN Yong-juan, HU Wei-xuan, PANG Shu-jiang, <i>et al.</i> (3017)
Distribution and Environmental Significances of Radionuclides in the Sediment of the Changyi Coastal Wetland	WANG Qi-dong, SONG Jin-ming, LI Xue-gang, <i>et al.</i> (3026)
Fecal Contamination in Laolongdong Underground River as Measured by the Sterol Biomarkers	LIAO Yu, SUN Yu-chuan, WANG Zun-bo, <i>et al.</i> (3034)
Distribution Characteristics and Pollution Status of Phthalate Esters in the Groundwater of Hutuo River Pluvial Fan	CHANG Sheng, ZHAO Xing-ru, LIU Yan, <i>et al.</i> (3041)
Impacts of Land Use on the Source of Dissolved Fatty Acids in Epikarst Spring During Rainy Season	ZHANG Mei, SUN Yu-chuan, XIE Zheng-lan, <i>et al.</i> (3049)
Mechanisms of Phosphorus Removal by Modified Zeolites Substrates Coated with Zn-LDHs in Laboratory-scale Vertical-flow Constructed Wetlands ZHANG Xiang-ling, HUANG Hua-ling, GUO Lu, <i>et al.</i> (3058)
Synergistic Enhancement on Oxidation of Phenol by Fenton Processes by Adding Ce ³⁺ and Cu ²⁺ Ions	ZHANG Jian-qiao, CHI Hui-zhong, SONG Yang, <i>et al.</i> (3067)
Removal of Humic Acid from Water Using Pt/biochar Electrode Reactor	DING Wen-chuan, XIANG Xing-guang, ZENG Xiao-lan, <i>et al.</i> (3073)
Generation of Graphene-titanium Dioxide Nanotubes Catalytic Board and Its Photocatalysis Capability to Degrade Pentachlorophenol	XU Qi, ZHOU Ze-yu, WANG Hong-tao (3079)
Photocatalytic Degradation Kinetics and Mechanism of Monoazo Dye Acid Yellow 17 by UV/TiO ₂ in Aqueous Solution	YANG Hai, WEI Hong-qin, HU Le-tian, <i>et al.</i> (3086)
Feasibility of Sulfur-based Autotrophic Denitrification of Photovoltaic Wastewater Containing High Fluorine	MA Hang, ZHU Qiang, ZHU Liang, <i>et al.</i> (3094)
Operation Performance of a Bioaugmented Membrane-aerated Biofilm Reactor Treating Atrazine Wastewater	LIU Chun, YU Chang-fu, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (3101)
Nitrogen Removal of Municipal Wastewater by ANAMMOX Coupled Shortcut Nitrification in Anaerobic Baffled Reactor	WU Peng, ZHANG Shi-ying, SONG Yin-ling, <i>et al.</i> (3108)
Simultaneous Ferric Reduction with Ammonia Oxidation Phenomena in Activated Sludge in Anaerobic Environment	LI Xiang, LIN Xing, YANG Peng-bing, <i>et al.</i> (3114)
Rapid Start-up of One-stage Autotrophic Nitrogen Removal Process in EGSB Reactor for Wastewater with Low Concentration of Ammonia	GU Shu-jun, FANG Fang, LI Kai, <i>et al.</i> (3120)
Phosphorus Removal Performance in EBPR System under Extra-low Dissolved Oxygen Condition	MA Juan, SONG Lu, YU Xiao-jun, <i>et al.</i> (3128)
Influence of Activated Sludge Surface Properties on Flocculating Settling and Effluent Suspend Solid	HE Zhi-jiang, ZHAO Yuan, ZHANG Yuan-kai, <i>et al.</i> (3135)
Spatial Characteristics and Environmental Risk of Heavy Metals in Typical Gold Mining Area of Shandong Province	WANG Fei, WU Quan-yuan, LÜ Jian-shu, <i>et al.</i> (3144)
Spatial Variation of Soil Heavy Metals in an E-waste Dismantling Area and Their Distribution Characteristics	ZHAO Ke-li, FU Wei-jun, YE Zheng-qian, <i>et al.</i> (3151)
Selenate Adsorption and Desorption in 18 Kinds of Chinese Soil with Their Physicochemical Properties	FENG Pu-yang, LI Zhe, ZHE Yu-yun, <i>et al.</i> (3160)
Adsorption Characteristics of Arsenite on Goethite by Flow Stirring Method	LI Xin, YANG Jun, RAO Wei, <i>et al.</i> (3169)
Preparation of Poly-hydroxy-aluminum Pillared Diatomite and Characteristics of Cu ²⁺ , Zn ²⁺ Adsorption on the Pillar in Aqueous Solutions ZHU Jian, LEI Ming-jing, WANG Ping, <i>et al.</i> (3177)
Preparation and NH ₄ ⁺ -N Removal Performance of a Novel Filter Substrate Made from Sludges	WANG Wen-dong, LIU Hui, ZHANG Yin-ting, <i>et al.</i> (3186)
Preparation of Nanocomposite Hydrogel and Its Adsorption of Heavy Metal Ions	ZHU Qian, LI Zheng-kui, ZHANG Yi-pin, <i>et al.</i> (3192)
Prediction of PAHs Bioavailability in Spiked Soil by Composite Extraction with Hydroxypropyl-β-cyclodextrin and Rhamnolipid	ZHANG Ya-nan, YANG Xing-lun, BIAN Yong-rong, <i>et al.</i> (3201)
Biological Effects of ZnO Nanoparticles as Influenced by Arbuscular Mycorrhizal Inoculation and Phosphorus Fertilization	JING Xin-xin, SU Zhi-zhong, XING Hong-en, <i>et al.</i> (3208)
Difference of Species Sensitivities for Aquatic Life Criteria in China and the USA	WANG Xiao-nan, YAN Zhen-guang, YU Ruo-zhen, <i>et al.</i> (3216)
Effects of Low-level Nutrition and Trace Antibiotics on the Fitness Cost of Plasmids Bearing Antibiotic Resistance	LIN Wen-fang, CHEN Sheng, WAN Kun, <i>et al.</i> (3224)
Effect of Different Nitrogen Rates on the Nitrification Potential and Abundance of Ammonia-oxidizer in Intercropping Maize Soils	LÜ Yu, ZHOU Long, LONG Guang-qiang, <i>et al.</i> (3229)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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
赵进才 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8月15日 第37卷 第8期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 8 Aug. 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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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	中国国际图书贸易集团有限公司 (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