

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第4期

Vol.38 No.4

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

西宁近郊大气氮干湿沉降研究	许稳, 金鑫, 罗少辉, 冯兆忠, 张霖, 潘月鹏, 刘学军 (1279)
兰州春夏季 PM ₁₀ 碳组分昼夜变化特征与来源分析	马丽, 余晔, 王博, 赵素平, 李刚 (1289)
海南三亚大气颗粒物中水溶性无机离子浓度及其粒径分布特征	王璐, 刘子锐, 温天雪, 苗红妍, 王跃思 (1298)
2015年北京城区大气 PM _{2.5} 中 NH ₄ ⁺ 、NO ₃ ⁻ 、SO ₄ ²⁻ 及前体气体的污染特征	丁萌萌, 周健楠, 刘保献, 王焱, 张博韬, 石爱军, 杨懂艳, 常森 (1307)
北京市某垃圾焚烧厂周边大气二噁英污染特征及暴露风险	齐丽, 任玥, 刘爱民, 黄业茹, 赵震, 王江, 李泓 (1317)
北京和保定地区大气细颗粒物中可培养细菌的种群特征	胡亚东, 马安周, 吕鹏翼, 张杨, 庄国强 (1327)
基于实时交通数据的南京市主次干道机动车排放特征分析	李笑语, 吴琳, 邹超, 张意, 毛洪钧, 荆博宇 (1340)
过渡金属掺杂对铜锡烧绿石催化碳烟燃烧性能的影响	李曦峰, 孙宇琦, 王仲鹏, 牟宗刚, 崔兆杰 (1348)
南水北调中线北京段水质状况分析	徐华山, 赵磊, 孙昊苏, 任玉芬, 丁涛, 常帅, 王海东, 李森, 果钊 (1357)
三峡前置库汉丰湖试运行年水文水质变化特征	杨兵, 何丙辉, 王德宝 (1366)
基于偏最小二乘模型的河流水质对土地利用的响应	李琳琳, 张依章, 唐常源, 郑磊, 孟伟, 卢少勇, 敦宇 (1376)
抚仙湖夏季热分层时期水温及水质分布特征	王琳杰, 余辉, 牛勇, 牛远, 张有林, 刘倩, 吉正元 (1384)
千岛湖溶解氧与浮游植物垂向分层特征及其影响因素	俞焰, 刘德富, 杨正健, 张佳磊, 徐雅倩, 刘晋高, 严广寒 (1393)
高通量测序技术研究辽河真核浮游藻类的群落结构特征	王靖淇, 王书平, 张远, 林佳宁, 高欣, 臧小苗, 赵茜 (1403)
三门湾近海有机污染对浮游细菌群落的影响	戴文芳, 郭永豪, 郁维娜, 熊金波 (1414)
沉积物-水界面氮的源解析和硝化反硝化	金赞芳, 龚嘉临, 施伊丽, 金漫彤, 李非里 (1423)
广州南沙红树林湿地水体和沉积物中有机氯农药的残留特征	丁洋, 黄焕芳, 李绘, 罗杰, 郑煌, 孙焰, 杨丹, 张原, 祁士华 (1431)
太湖西岸河网沉积物中重金属污染特征及风险评价	边博, 周燕, 张琴 (1442)
锁磷剂对杭州西湖底泥磷释放的控制效果	朱广伟, 李静, 朱梦圆, 龚志军, 许海, 杨桂军, 张运林, 秦伯强 (1451)
超滤处理东江水不可逆膜污染物的识别和活性炭对其吸附去除	杨海燕, 王灿, 鄢忠森, 李冬平, 赵焱, 瞿芳术, 梁恒, 徐叶琴, 李圭白 (1460)
UV/SPS 降解水中三氯生的效能及动力学	李青松, 李学艳, 姚宁波, 骆靖宇, 李国新, 陈国元, 高乃云 (1467)
真空紫外-亚硫酸盐法降解 PFOS 影响因素	韩慧丽, 王宏杰, 董文艺 (1477)
g-C ₃ N ₄ 协同光催化还原 Cr(VI) 及氧化磺基水杨酸	李莉莉, 陈翠柏, 兰华春, 刘菲, 安晓强 (1483)
锆改性硅藻土吸附水中磷的研究	范艺, 王哲, 赵连勤, 吴德意 (1490)
3 种常规消毒方法对磺胺类抗性基因削减效果的比较	郑吉, 周振超, 陈芳, 陈涛, 魏媛媛, 韩玥, 陈红 (1497)
典型生活污水处理工艺对雌激素效应的去除	张秋亚, 马晓妍, 王晓昌, 游猛 (1506)
SRT 对酵母-SBR 处理油脂废水稳定性的影响	吕文洲, 张树林, 乔宇祥, 刘英 (1513)
分散染料 neocron black (NB) 的生物降解特性	杨波, 丁凤友, 徐辉, 李方, 田晴, 马春燕 (1520)
多聚磷酸盐激酶基因在污水生物除磷中的功能	南亚萍, 周国标, 袁林江 (1529)
生物膜短程硝化系统的恢复及其转化为 CANON 工艺的过程	付昆明, 周厚田, 苏雪莹, 王会芳 (1536)
厌氧氨氧化反应器脱氮性能及细菌群落多样性分析	曹雁, 王桐屿, 秦玉洁, 韩彬, 任君怡 (1544)
内环境调节层对厌氧生物反应器填埋场中氮转化的影响	何正坤, 宋博宇, 朱南文, 董军 (1551)
矿化垃圾中 Fe(III) 还原耦合 CH ₄ 厌氧去除特性	王立立, 何婷, 龙焰, 刘常宝 (1558)
应用铅同位素示踪研究泉州某林地垂直剖面土壤中重金属污染及来源解析	孙境蔚, 于瑞莲, 胡恭任, 苏光明, 王晓明 (1566)
畜禽粪便有机肥中重金属在土壤剖面中积累迁移特征及生物有效性差异	何梦媛, 董同喜, 茹淑华, 苏德纯 (1576)
山东省农田土壤多环芳烃的污染特征及源解析	葛蔚, 程琪琪, 柴超, 曾路生, 吴娟, 陈清华, 朱祥伟, 马东 (1587)
江汉平原典型土壤环境中有机磷农药的分布特征及影响因素	王建伟, 张彩香, 潘真真, 廖小平, 刘媛, 吕曲, 汤蜜 (1597)
基于生物有效性的农田土壤磷素组分特征及其影响因素分析	蔡观, 胡亚军, 王婷婷, 袁红朝, 王久荣, 李巧云, 葛体达, 吴金水 (1606)
秸秆还田对外源氮在土壤中转化及其微生物响应的影响	陈珊, 丁咸庆, 祝贞科, 王娟, 彭佩钦, 葛体达, 吴金水 (1613)
生物炭输入对城郊农业区农田地表反照率及土壤呼吸的影响	张阳阳, 胡学玉, 邹娟, 张迪, 陈威, 王向前, 陈窈君, 刘扬 (1622)
淹水水稻土消耗 N ₂ O 能力及机制	王玲, 邢肖毅, 秦红灵, 刘毅, 魏文学 (1633)
不同污水处理工艺非二氧化碳温室气体的释放	李惠娟, 彭党聪, 刘文博, 姚倩, 卓杨 (1640)
施用不同污泥堆肥品对土壤温室气体排放的影响	杨雨滢, 易建婷, 张成, 陈宏, 木志坚 (1647)
不同镉水平下纳米沸石对土壤 pH、CEC 及 Cd 形态的影响	迟苏琳, 徐卫红, 熊仕娟, 王卫中, 秦余丽, 赵婉伊, 张春来, 李彦华, 李桃, 张进忠, 熊治庭, 王正银, 谢德体 (1654)
不同作物对外源硒动态吸收、转运的差异及其机制	彭琴, 李哲, 梁东丽, 王梦柯, 郭璐 (1667)
褪黑素对水稻幼芽镍胁迫的缓解作用	刘仕翔, 黄益宗, 罗泽娇, 黄永春, 蒋航 (1675)
不同形态磺胺类药物在根-土界面的空间分布及毒性评价	金彩霞, 司晓薇, 王万峰, 王春峰, 王子英, 张琴文, 王婉 (1683)
三峡库区消落带沉积物对鱼体富集率的影响	孙松, 李楚娴, 张成, 王永敏, 王定勇 (1689)
重庆市居民头发重金属富集特征及相关性分析	何明靖, 李琦, 王登祥, 赵佳渊, 杨婷 (1697)
16S rRNA 高通量测序研究集雨窖水中微生物群落结构及多样性	杨浩, 张国珍, 杨晓妮, 武福平, 赵炜, 张洪伟, 张翔 (1704)
石墨烯掺杂聚苯胺阳极提高微生物燃料电池性能	黄力华, 李秀芬, 任月萍, 王新华 (1717)
美国污染场地清理的风险评估简介及政策制定	容跃 (1726)
《环境科学》征稿简则 (1505) 《环境科学》征订启事 (1682) 信息 (1339, 1459, 1612)	

北京市某垃圾焚烧厂周边大气二噁英污染特征及暴露风险

齐丽¹, 任玥¹, 刘爱民¹, 黄业茹^{1*}, 赵震², 王江², 李泓^{2*}

(1. 国家环境分析测试中心, 国家环境保护二噁英污染控制重点实验室, 北京 100029; 2. 北京市朝阳区环境保护监测站, 北京 100125)

摘要: 2014 年 4 月至 2015 年 1 月对北京市某生活垃圾焚烧发电厂周边 6 km 范围内 7 个采样点采集环境空气, 应用高分辨气相色谱-高分辨质谱 (HRGC-HRMS) 联用技术对二噁英 (PCDD/Fs) 浓度水平进行监测并对其组成特征及时空特征进行了分析. 结果表明该生活垃圾焚烧发电厂周边环境空气中 PCDD/Fs 质量浓度的变化范围为 $8.9 \sim 140 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$, 毒性当量 (TEQ) 变化范围为 $0.11 \sim 1.8 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$, 其中秋季霾天 4 个采样点和冬季全部采样点超出日本环境空气质量标准限值 (TEQ: $0.6 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$). 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF 和 OCDD 是四季空气中 PCDD/Fs 质量浓度的主要贡献单体, 年平均贡献率分别为 20.5% 和 14.0%, 而 2,3,4,7,8-PeCDF 是总 TEQ 贡献最大的单体, 年平均贡献率为 43.3%. 空间分布特征表现为各采样点浓度水平与距污染源距离远近没有显著相关性; 季节变化特征表现为冬季值显著高于其他季节, 分析可能与冬季燃煤采暖及大气扩散条件差导致的大气颗粒物污染较重有关, 与各季采样时段内大气 PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 的平均浓度水平呈正相关相一致. 样品中二噁英同族体及异构体分布指纹谱图与该焚烧设施排放烟气存在差别, 主成分分析 (PCA) 源解析结论与指纹谱图特征分析结论一致. 二噁英呼吸暴露剂量估算结果表明该区域人群呼吸暴露风险总体处于较为安全的水平 [$0.060 \sim 0.224 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$], 但仍需关注大气颗粒物重污染天气发生时的呼吸暴露风险.

关键词: 生活垃圾焚烧; 环境空气; PCDD/Fs; 季节变化; 主成分分析; 呼吸暴露

中图分类号: X51; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)04-1317-10 DOI: 10.13227/j.hj.kx.201608147

Pollution Characteristics of PCDD/Fs in Ambient Air and Exposure Risk Assessment Around a Municipal Solid Waste Incinerator in Beijing

QI Li¹, REN Yue¹, LIU Ai-min¹, HUANG Ye-ru^{1*}, ZHAO Zhen², WANG Jiang², LI Hong^{2*}

(1. State Environmental Protection Key Laboratory of Dioxin Pollution Control, National Research Center for Environmental Analysis and Measurement, Beijing 100029, China; 2. Beijing Chaoyang District Environmental Protection Monitoring Station, Beijing 100125, China)

Abstract: Ambient air was sampled and analyzed around a municipal solid waste incinerator (MSWI) in Beijing from April 2014 to January 2015 to investigate the concentrations, profiles and seasonal variations of PCDD/Fs in the region using HRGC-HRMS technique. The mass concentrations and TEQ of 2,3,7,8-substituted PCDD/Fs in the air samples ranged from 8.9 to $140 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ and from 0.11 to $1.8 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$, respectively. The concentration values at 4 sampling sites in haze day in autumn and all 7 sampling sites in winter were higher than the ambient air standard of $0.6 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ for dioxins regulated in Japan. 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF and OCDD dominated PCDD/Fs in all the samples for all four seasons with average contribution fractions of 20.5% and 14.0%, respectively, while 2,3,4,7,8-PeCDF was the dominant congener contributing to TEQ (43.3%). The spatial distribution basically exhibited a trend that the concentrations at all sites were comparable and not related to the distances from the source. Seasonal variation showed obviously higher concentration in winter than the other three seasons, which may attribute to the high concentration of ambient particulate matter due to domestic heating and worse atmospheric dispersion that occurred in winter. The homologue and congener profiles of PCDD/Fs in the air samples differed from those of the flue gas emission from the MSWI, consistent with the principle component analysis results. Dioxin inhalation exposure dose estimation showed that the dioxin inhalation exposure risk of residents living in the studied area was at a relatively safe level [$0.060 \sim 0.224 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$]. However, the dioxin inhalation exposure risk in heavily polluted seasons still needs great concerns.

Key words: municipal solid waste incinerator (MSWI); ambient air; PCDD/Fs; seasonal variation; principle component analysis; inhalation exposure

收稿日期: 2016-08-22; 修订日期: 2016-11-11

基金项目: 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2015CB453101)

作者简介: 齐丽(1980~), 女, 博士, 高级工程师, 主要研究方向为二噁英类及有机气溶胶, E-mail: ql_cneac@163.com

* 通信作者, E-mail: yrhuan@cneac.com; 1171844495@qq.com

多氯代二苯并-对-二噁英(PCDDs)和多氯代二苯并呋喃(PCDFs)统称为二噁英类(dioxins),是具有致癌、致畸和致突变的内分泌干扰物质。在2001年签署的斯德哥尔摩公约中,二噁英类被列为首批受控对象。

多介质归趋模型模拟研究表明大气传输是二噁英类在环境中的主要迁移途径之一^[1,2],即排放至大气中的二噁英类通过和各个环境介质间的相间迁移,在全球范围内分布并进入食物链,危害生态系统和人体健康^[3]。大气中的二噁英主要来自金属冶炼、废弃物焚烧等人类生产活动^[4-7],其中生活垃圾焚烧排放是城市地区大气二噁英来源的最重要途径之一。自Olie等^[8]首次发现城市生活垃圾焚烧的烟气和飞灰中存在二噁英以来,许多国家和地区对城市生活垃圾焚烧厂二噁英排放的环境影响进行了深入的科学研究^[9-14]。有研究表明大部分生活垃圾焚烧厂周围大气中的二噁英分布与生活垃圾焚烧厂废气二噁英的排放浓度成正比^[15,16]。我国对垃圾焚烧厂周边大气中二噁英浓度水平的监测起步相对较晚,目前仅有少量研究报告。除污染源外,不同的气候也是影响大气二噁英浓度水平及其行为特征的重要因素^[17]。由于季节的交替伴随着主导风向、温度、干湿沉降等因素的改变,研究大气中二噁英的浓度与季节变化的关系,一方面可以揭示其来源问题^[13,18-20],另一方面也反映二噁英在大气中的某种亏损过程或去向问题。

北京作为国家经济金融的决策中心和管理中心,随着经济的高速持续增长,城市规模的不断扩大和人民生活水平的迅速提高,城市生活垃圾的产生量急剧增加。除卫生填埋外,垃圾焚烧已逐渐发展成为一种重要的垃圾处理方式。考虑到垃圾焚烧产生的二次污染物如二噁英等可能对周边环境及居民的健康造成负面影响,此处理方式一度受到公众的强烈反对。因此,本研究选取北京市某大型垃圾焚烧发电厂周边环境作为研究区域于2014~2015年不同季节开展共计5次监测(其中秋季监测包括雾-霾天气和晴好天气两次监测),综合评价其周边环境空气中二噁英类污染物的浓度水平、组成及分布规律,以及周边人群经呼吸途径的二噁英类暴露水平,探讨该设施二噁英排放对周边地区可能造成的环境影响及健康风险,以期环境管理部门有效开展垃圾焚烧处理提供数据参考和技术支持。

1 材料与方法

1.1 研究区域及样品采集

生活垃圾焚烧发电厂设计垃圾处理规模为 $1\,600\text{ t}\cdot\text{d}^{-1}$,安装有 $800\text{ t}\cdot\text{d}^{-1}\times 2$ 炉排炉以及烟气处理系统(脱酸塔+活性炭喷射+布袋除尘器)。以厂区(图1中梯形区域所示)为中心,采用同心圆布点法力求覆盖各方位的原则,并根据周边居民分布情况,在周边6 km范围内不同方位选取6个居民聚集区(S1、S3~S7)和1个厂界区(S2)进行环境空气二噁英监测,各采样点距污染源的距离分别约为1.8、0.4、1.4、2.7、3.6、5.9和3.9 km。采样仪器均设置于开阔院落地面上,周边15 m内无较大障碍物,分别位于排放源的东北、东南、西北、西南、正西方向及厂区边界。各采样点位置如图1所示。



梯形区域为厂区

图1 环境空气采样布点示意

Fig. 1 Ambient air sampling sites around the MSWI

由于城市大气环境中二噁英浓度水平受季节交替的影响,因此采样时间主要考虑以天文季节与气候季节相结合划分的春(3~5月)、夏(6~8月)、秋(9~11月)、冬(12月~次年2月)这4个季节的分布选取每季的中间月份设置监测。每个采样点每次连续采样72 h。采样时间分别为:春季(2014-04-25~2014-04-28)、夏季(2014-07-15~2014-07-18)、秋季(2014-10-29~2014-11-01)和冬季(2015-01-13~2015-01-16)。由于秋季监测正值重污染气象过程,故增加一次重污染气象过后的比较监测(2014-11-02~2014-11-03)。采样方法依据HJ/T 194-2005,采样仪器为大流量环境空气采样器(Shibata, HV-1000F, 日本),分别用石英纤维滤膜(QFF)(Whatman, $20.3\text{ cm}\times 25.4\text{ cm}$)和聚氨酯泡沫塑料(PUF, $\Phi 90\text{ mm}\times 50\text{ mm}$)收集颗粒态和气态样品。采样流量为 $500\text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ 。采样前滤膜在 450°C 的马弗炉中焙烤6 h;PUF经煮沸的纯净水、丙酮进行预清洗,而后用二氯甲烷索氏提取,真空干

燥后放入棕色瓶中密封保存。

1.2 样品前处理、分析及质控

样品的前处理和分析方法参考文献[21]。QFF和PUF均使用加速溶剂萃取仪(DIONEX, ASE-300)提取,前者使用甲苯作为萃取溶剂,后者使用二氯甲烷/正己烷(体积比为1:1)作为萃取溶剂。抽提物浓缩后依次进行硫酸处理、多层硅胶柱和活性炭硅胶柱等净化过程,得到待测组分后使用高分辨气相色谱-高分辨质谱进行分析(Agilent 6890N/Waters Autospec Ultimate NT,美国)。样品进多层硅胶柱净化前加入5 μL 净化内标(EPA 1613 LCS, Wellington Laboratories Inc.,加拿大);进仪器前加入5 μL 进样内标(EPA 1613 ISS, Wellington Laboratories Inc.,加拿大)。有机溶剂丙酮、二氯甲烷、甲苯、正己烷、癸烷均为农残级(J. T. Baker, 美国)。多层硅胶柱为日本Wako公司进口成品柱,活性炭,浓硫酸为国产优级纯,其他辅助材料如无水硫酸钠、玻璃棉等均为进口产品(日本Wako)。色谱柱为DB-5MS(60 m×0.25 mm×0.25 μm),采用不分流进样,进样量为1μL。进样口温度280℃,载气流量1.0 mL·min⁻¹,仪器初始温度设定为140℃,而后遵循以下升温程序140℃(1 min)→20℃·min⁻¹→200℃(1 min)→5℃·min⁻¹→220℃(16 min)→5℃·min⁻¹→235℃(7 min)→5℃·min⁻¹→310℃(10 min)。气相色谱-质谱接口温度290℃,离子源温度280℃,离子化电流650 μA,离子加速电压8 kV,采用选择离子模式检测,分析过程中动态分辨率大于10 000。

实验过程严格遵守HJ 77-2008标准方法进行

质量保证/质量控制(QA/QC),每一组样品(7个)做一个实验室全程序空白。空白加标的检出结果均低于检出限,所有样品在分析过程添加的¹³C内标物各异构体的回收率均处于33%~113%之间,符合HJ 77.2-2008的质量控制要求。在数据处理过程中,低于检出限的目标污染物质量浓度以0计算。

2 结果与讨论

2.1 大气二噁英浓度水平与空间分布

本研究7个采样点五期监测得到的大气PCDD/Fs浓度如表1所示,其4~8氯代PCDD/Fs同族体总浓度范围为8.9~140 pg·m⁻³,各采样点季平均值为28.1~46.8 pg·m⁻³,17种2,3,7,8位取代的PCDD/Fs毒性当量浓度范围为0.11~1.8 pg·m⁻³,季平均值为0.32~0.61 pg·m⁻³。除冬季和秋季雾-霾天气监测数据外,其余各采样点监测结果基本与之前报道的城市环境空气PCDD/Fs的TEQ浓度水平相当:北京市区(2006年0.27 pg·m⁻³;2011~2012年0.25 pg·m⁻³)^[22,23]、广州市区(0.36 pg·m⁻³)^[24]及上海市区(0.27 pg·m⁻³)^[25],均在Lohmann等^[17]提出的城市环境空气中二噁英标准浓度范围0.10~0.40 pg·m⁻³之内。而冬季和秋季雾-霾天气监测结果达到被Fielder等^[26]定义为受点源污染的标准范围(0.35~1.6 pg·m⁻³),与日本规定的空气PCDD/Fs的年均值标准(0.6 pg·m⁻³)^[27]相比较,冬季各采样点和秋季雾-霾天除S5~S7外的监测结果均高于此排放限值,超出该标准限值6.7%~200%。

表1 各采样点大气中PCDD/Fs总质量浓度及毒性当量浓度

Table 1 Mass and TEQ concentrations of PCDD/Fs in the samples at each sampling site

采样点位	春季 /pg·m ⁻³	夏季 /pg·m ⁻³	秋季(雾-霾) /pg·m ⁻³	秋季(良好) /pg·m ⁻³	冬季 /pg·m ⁻³	季节平均值 ³⁾ /pg·m ⁻³
S1	21.1 ¹⁾ /0.27 ²⁾	16.0/0.18	95.5/1.0	44.1/0.54	106/1.1	46.8/0.52
S2	33.7/0.36	13.3/0.17	91.1/0.98	39.7/0.46	80.6/0.78	41.8/0.44
S3	11.9/0.16	13.7/0.14	65.6/0.84	30.1/0.32	56.7/0.64	28.1/0.32
S4	25.0/0.27	13.9/0.16	112/1.3	18.8/0.19	79.6/0.80	34.3/0.36
S5	14.8/0.20	11.7/0.15	50.0/0.60	11.3/0.15	95.1/1.1	33.2/0.40
S6	22.7/0.33	13.1/0.15	35.9/0.49	16.0/0.21	82.9/0.91	33.7/0.40
S7	25.0/0.38	12.7/0.15	39.6/0.53	8.9/0.11	140/1.8	46.6/0.61
点位平均值/pg·m ⁻³	22.0/0.28	13.5/0.16	70.0/0.82	24.1/0.28	91.6/1.0	/

1)4~8氯代PCDD/Fs同族体总质量浓度;2)17种2,3,7,8位取代的异构体毒性当量浓度;3)秋季选取良好天气数值

从分布情况可知,近源采样点S2(<1 000 m)在各采样期二噁英浓度水平与其他采样点相当,各采样点整体浓度水平与距污染源距离远近没有显著相关性。风向是影响排放源二噁英扩散的最基本因

素。本研究中,由于采样时段涵盖一年四季,北京冬季主导风向为西北方向;夏季主导风向为东南方向;春秋季节多为西北风,各期采样期间气象条件:风力小于三级,风向为无持续风向天气,天气以晴或晴间多

云为主(www.bjmb.gov.cn). 因此,各采样点在主导风向上、下风向的浓度差异不明显. 张振全等^[28]对华南某工业区垃圾焚烧设施周边环境空气中 PCDD/Fs 含量研究发现点源烟气的影响存在“灯下黑”的特点,即下风向最大落地浓度点位置(距离源一般 1 km 左右)附近浓度较高. 本研究中 S1 采样点夏季位于主导风向的下风向且与污染源距离接近最大落地浓度点位置,但其在夏季浓度却略高于其他采样点. 另外,冬季西北风主导风向的下风向 S4 采样点的空气样品中二噁英毒性当量略低于上风向 S1 采样点,进一步说明该焚烧设施烟气排放通过扩散迁移对环境空气中的二噁英贡献较小;冬季较高浓度的二噁英来源较为复杂,并非受该生活垃圾焚烧设施烟气排放的主导影响.

PCDD/Fs 气-粒分配行为研究表明其主要分布在颗粒相上^[22,29],为了解环境空气中 PCDD/Fs 浓度水平与大气颗粒物浓度的相关性,将各个采样点每期监测结果与该监测时段内 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 的平均浓度水平及各个采样点每期二噁英监测结果的平均值占颗粒物的百分比进行比较如图 2 所示,显示二者有较好的相关性,说明环境空气中二噁英的排放源与颗粒物排放源可能具有一致性. 二噁英在颗粒物中的占比变化除夏季气温较高,二噁英在气相中分配比例较高而在颗粒相中分配比例较低外,整体较稳定未显示出明显的季节变化趋势,说明重污染天气出现的二噁英浓度的变化并非由于二噁英排放显著增加,而是由于颗粒物浓度的变化所导致.

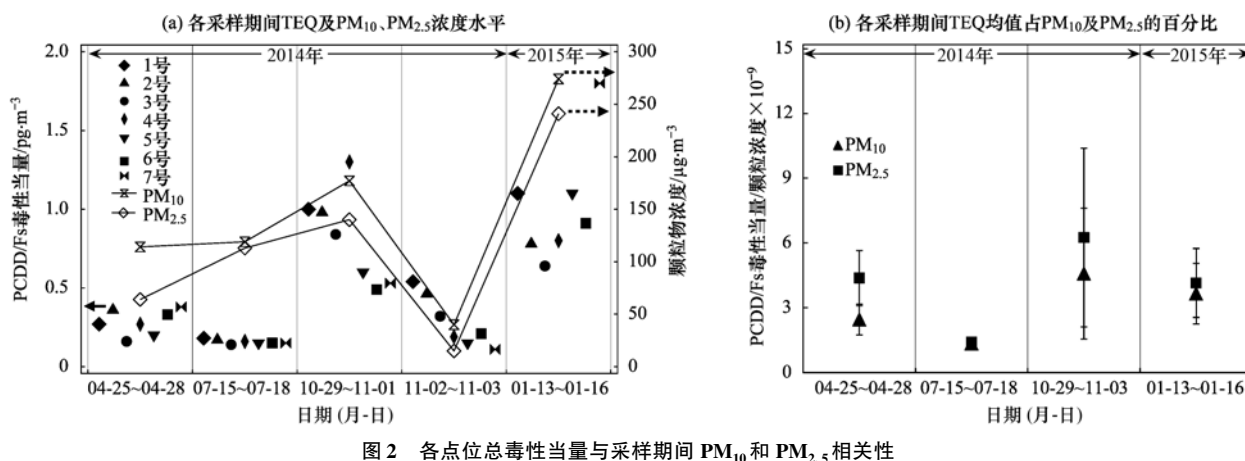


Fig. 2 Correlation between I-TEQ in the samples at each sampling site and average PM_{10} and $PM_{2.5}$ concentrations in the atmosphere

2.2 大气二噁英浓度的年季变化

从表 1 可见,4 个采样点最高值出现在冬季,3 个采样点最高值出现在秋季雾-霾天气. 最低值基本出现在夏季,其次是春季和秋季晴好天气. 各点位不同季节 PCDD/Fs 平均浓度高低顺序为冬季 ($91.6 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) > 秋季雾-霾 ($70.0 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) > 秋季晴好 ($24.1 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) > 春季 ($22.0 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) > 夏季 ($13.5 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$); 二噁英毒性当量浓度的季节变化也遵循相同的规律,即冬季 ($1.0 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) > 秋季雾-霾 ($0.82 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) > 秋季晴好 ($0.28 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) = 春季 ($0.28 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) > 夏季 ($0.16 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$). 与天津、香港等城市冬季大气二噁英浓度水平最高相似^[30,31],而与广州地区春季大气二噁英明显高于秋、冬、夏三季不同^[32].

由于本地排放源相对稳定,所以该区域大气中二噁英浓度季节性变化可能与冬季燃煤取暖、气团运动和大气边界层高度的季节变化、大陆性季风气

候影响等有关^[17]. 北京属于典型温带大陆性季风气候,夏季炎热多雨,大气中二噁英湿沉降通量较大,同时气温较高,日照充足,大气氧化性增强促进二噁英的光降解. 春季干燥多风,大气扩散条件好,对污染物起到很好的稀释作用. 由于这些因素的影响,春夏季是该区域大气中 PCDD/Fs 浓度最低的季节. 冬季寒冷干燥,供暖造成燃煤量激增,同时大气对流层逆温现象增多,大气扩散条件差,导致排放到大气中的颗粒物增加且不易扩散和传输,在大气中累积形成较高浓度,因此大气中 PCDD/Fs 的浓度相应较高.

比较该研究区域 2013 ~ 2014 年监测结果平均值^[33]与本文报道的结果(2014 ~ 2015 年)如图 3 所示. 大气中 PCDD/Fs 浓度水平的年际间季节分布特征相似,即采暖季浓度水平显著高于非采暖季. 春夏秋三季浓度水平年际间基本持平,而冬季浓度水平有所下降.

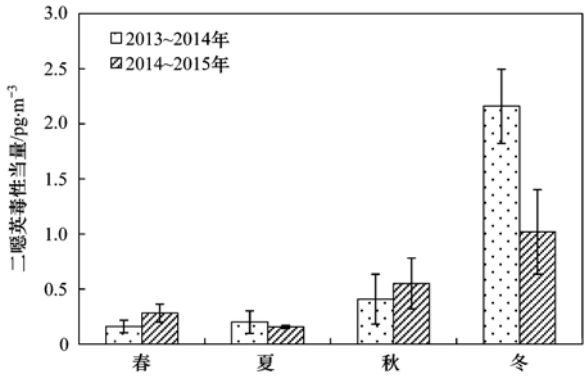


图3 不同季节监测区域大气平均 PCDD/Fs 浓度水平年际对比
Fig. 3 Annual comparison of average atmospheric concentrations of PCDD/Fs in different seasons in the studied area

2.3 PCDD/Fs 毒性异构体分布特征

PCDD/Fs 的 17 种毒性异构体分布特征是重要的指纹特性之一,常用作最基本的溯源分析,可以采用单体对总质量浓度的贡献率和单体对总毒性当量浓度的贡献率进行表述。

图 4 为各采样点四季二噁英毒性异构体对质量浓度的平均贡献率,显示出一个非常相似的分布特征即四季中 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF 和 OCDD 均是 PCDD/Fs 的主要贡献单体,平均贡献率分别为 22.2% (春季)、20.4% (夏季)、21.0% (秋季)、17.9% (冬季) 和 9.0% (春季)、13.8% (夏季)、14.4% (秋季)、18.1% (冬季)。各采样点四季二噁英毒性异构体对毒性当量浓度 (TEQ) 的分布特征 (见图 5) 表现为 PCDFs 的 TEQ 值显著高于 PCDDs,

其中 2,3,4,7,8-PeCDF 是所有单体中对总 TEQ 贡献最大的单体 (四季平均贡献率分别达到 39.2%、42.4%、45.3% 和 44.2%),这与文献 [28,34~36] 的研究结论基本一致。对比分析该垃圾焚烧发电厂排放源烟气中二噁英 (见图 6) 与环境空气二噁英的组成特征显示,各个采样点四季环境空气中起主要贡献的呋喃异构体与烟气均有较为不同的分布特征,具体表现为:环境空气样品中 2,3,4,7,8-PeCDF、1,2,3,6,7,8-HxCDD 和 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD 的质量浓度百分比低于烟气样品;1,2,3,4,6,7,8-HpCDF、OCDF 和 OCDD 高于烟气样品。有研究表明 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF、OCDF 和 OCDD 主要来源为无铅汽油机动车或柴油车排放^[37],表明除焚烧设施外该监测区域可能同时受到交通源的影响。S5、S6 和 S7 采样点在春季和秋季晴好天气的异构体分布特征表现为 OCDF 相对丰度变化较大,尤其是秋季晴好天气监测期间正值北京举行 APEC 会议开始实施机动车限行措施,各采样点 OCDF 的相对丰度 (均值:3.7%) 较其他监测时段均有显著下降 (春季:28.4%;夏季:11.7%;秋季雾-霾:13.0%;冬季:10.4%) 且 S5、S6 和 S7 采样点下降更显著 (均未检出)。这 3 个采样点毗邻机场二高速和东五环主路,与其他采样点相比受交通源影响更大,因此特征单体的变化趋势进一步佐证上文提及的该监测区域可能同时受到交通源影响的推断。

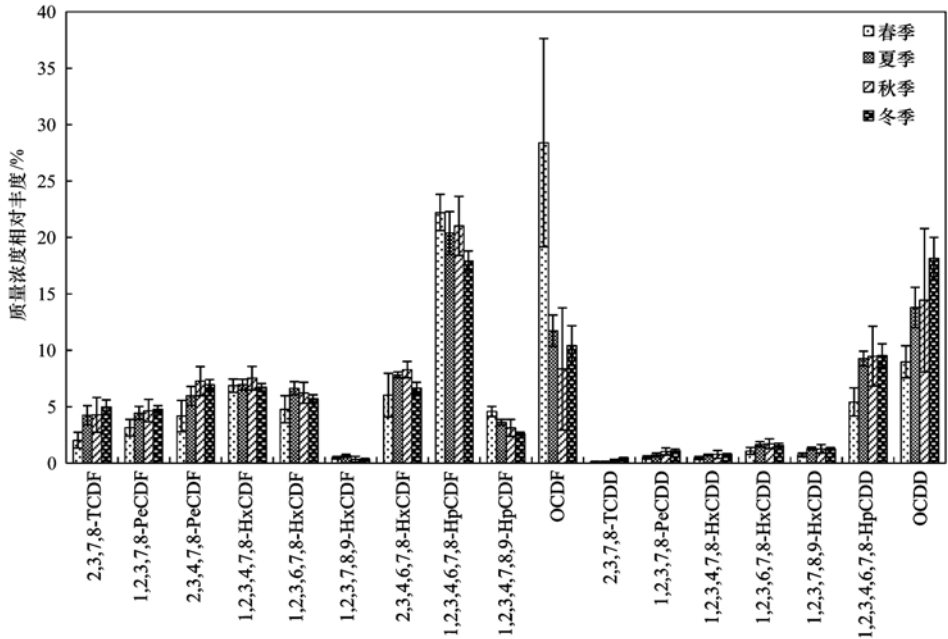


图4 四季 17 种 2,3,7,8-位取代 PCDD/Fs 单体占总质量浓度的相对丰度平均值

Fig. 4 Average relative abundance of 2,3,7,8-substituted PCDD/Fs congeners in the samples from all sampling sites in each season

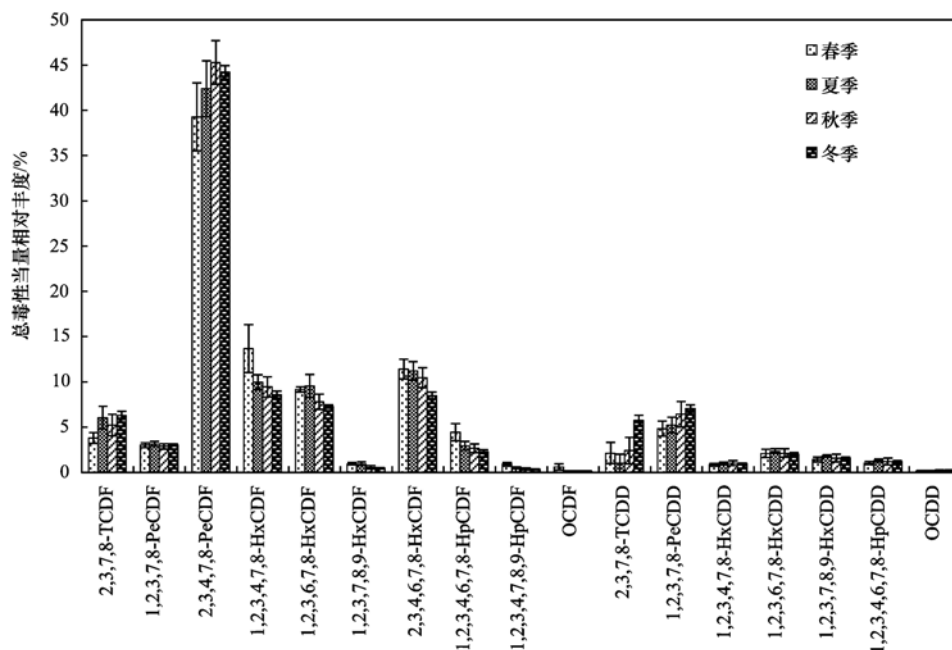


图5 四季17种2,3,7,8-位取代PCDD/Fs单体占总毒性当量的相对丰度平均值

Fig. 5 Average relative I-TEQ abundance of 2,3,7,8-substituted PCDD/Fs congeners in the samples from all sampling sites in each season

2.4 PCDD/Fs 同族体分布特征

同族体包括4~8氯代所有二噁英的浓度信息,其分布规律更具有指纹特征性.本研究用各同族体占总质量浓度的百分比来指示其分布特征.由图7可知:在每个季节所有采样点的同族体分布特征相似,均以低氯代(4、5、6氯代)的呋喃为主要的贡献因子,呈现出受潜在热源影响的特征^[38],但是不同季节间同族体分布特征存在一定差异.对于春季,各采样点PCDDs的同族体分布特征与烟气相似,而PCDFs同族体的分布特征呈现出与源不同的特点:TCDFs下降成为第二浓度贡献因子(平均贡献率:20.7%),取而代之的PeCDFs成为第一的浓度贡献因子(平均贡献率:24.2%),OCDFs的贡献率显著上升(平均贡献率:8.4%);对于夏季和秋季,PCDFs同族体的分布特征差异主要为TCDFs的贡献率低于烟气,而PeCDFs的贡献率高于烟气,且TCDFs_{夏季}>TCDFs_{秋季},PeCDF_{夏季}<PeCDF_{秋季};对于冬季,6、7、8氯代呋喃的贡献率均低于其他季节,而TCDD的贡献率升高(13.0%).从PCDD/Fs的热力学特征来分析,随着氯取代数的减少,其热稳定性不断下降,即TCDD/Fs热稳定性最差,其发生大气环境累积的可能性非常小,表明这些点位可能受到其他TCDD/Fs排放率较高的污染源的影响更大.一般来说,由于热源过程形成的PCDFs多于PCDDs,通常可用 $\sum PCDDs / \sum PCDFs$ 比值来判断其是否受热

源影响,当 $\sum PCDDs / \sum PCDFs < 1.0$ 时,表明可能受到热源排放的影响^[38].分析监测结果可知,所有采样点 $\sum PCDDs / \sum PCDFs$ 平均值分别为:春季0.31,夏季0.42,秋季0.48,冬季0.51,低于烟气值(0.56),均具有热源影响的特征.

2.5 多变量来源分析

为进一步了解焚烧设施周边环境空气中PCDD/Fs与垃圾焚烧源的关系,应用主成分分析方法(PCA)对典型排放源烟气和空气样品之间PCDD/Fs的17种2,3,7,8-位取代二噁英异构体特征相似度进行了分析.调研发现周边除垃圾焚烧设施外重要的热排放源还有无组织燃煤锅炉、殡葬焚烧厂和交通源等.为了分辨多种源对环境空气的影响,对采集样品和典型城市大气二噁英排放源17种异构体相对丰度进行主成分分析(PCA),主要包括生活垃圾焚烧厂烟气、燃煤锅炉烟气、殡仪馆火化机烟气、汽油机动车尾气和柴油机动车尾气等(注:由于缺乏本地数据,燃煤锅炉及汽(柴)油车参考U. S. EPA二噁英排放源数据库^[39],殡仪馆及生活垃圾焚烧烟气二噁英数据为排放源实测数据).

图8显示了以不同季节采样点样品为变量的主成分分析结果,提取2个主成分因子,因子1和因子2分别解释42.1%和21.9%的总方差.二噁英异构体谱图类似的相距较近,反之较远.从图8可知,除S5、S6和S7采样点在春季和秋季良好天气外,7个

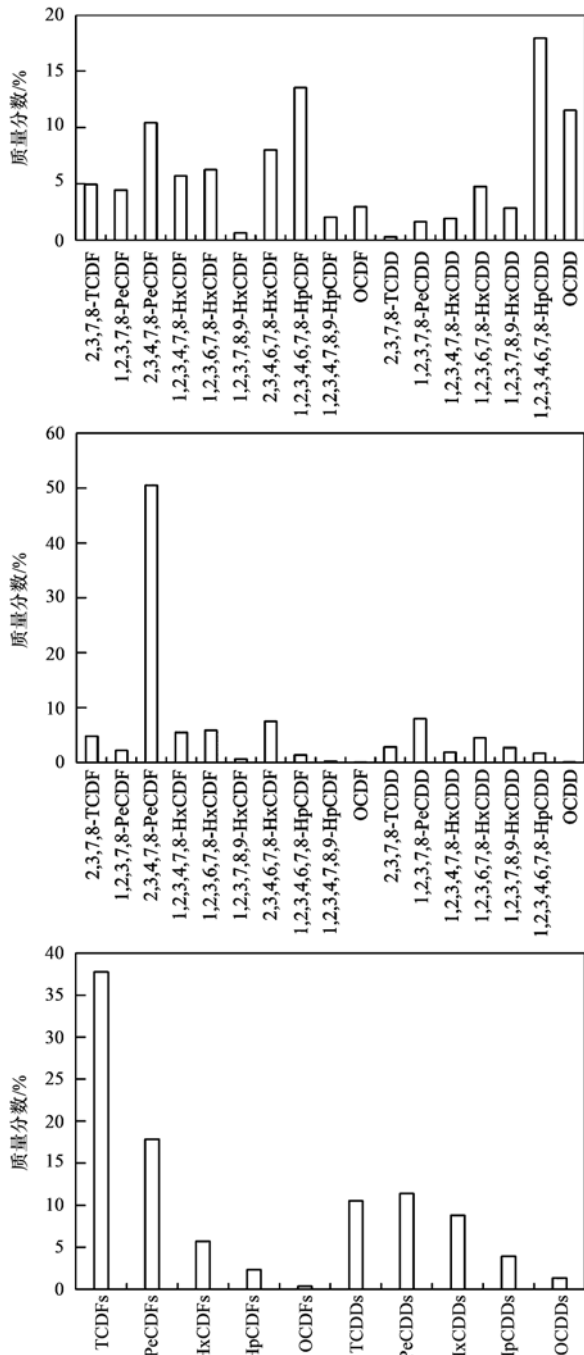


图6 焚烧厂烟气2,3,7,8-PCDD/Fs异构体质量浓度、毒性当量浓度及4~8氯代同族体质量浓度百分比

Fig. 6 Relative contributions of individual congener and homologue to the total mass and TEQ of PCDD/Fs

采样点在春、夏、秋季雾-霾的结果分布较集中,说明研究区域大气中的二噁英异构体分布特征相似。S5~S7采样点在春季和秋季良好天气的分布与其他采样点相距较远,可能由这些采样点周边存在其他排放源或主要排放源的影响程度不同所致。所有采样点在冬季的分布集中,且与无组织燃煤锅炉特征谱图最为相似,表明该研究区域在冬季可能主要

受到此排放源的影响。环境空气中的二噁英来源较广,所有采样点特征谱图整体表现为与燃煤锅炉和汽油机动车相距更近,表明研究区域可能主要受到这2种源共同作用。PCA的分析结果与上文提及的各采样点异构体和同族体分布特征指纹谱图与生活垃圾焚烧烟气二噁英谱图存在一定差异的分析结果一致。燃煤锅炉、机动车及该焚烧设施排放对研究区域环境空气中PCDD/Fs的贡献率和影响途径尚需进一步研究。

2.6 二噁英经呼吸暴露水平

二噁英类持久性有机污染物具有低水溶性和高亲脂性,进入环境介质后可通过食物链途径产生生物放大作用,最终进入人体,对人体健康产生潜在危害风险。目前关于环境多介质中PCDD/Fs的人体健康风险评估的报道较少,这些污染物可通过呼吸、皮肤暴露和食物摄取等途径进入到人体内,其中经呼吸途径是大气二噁英进入到人体的主要途径^[24,25,40,41]。本研究采用VLIER-HUMAAN模型对周边居民经呼吸途径的二噁英暴露量进行估算如下:

$$IP_{ad/ch} = V_{r_{ad/ch}} c_{air} f_r (N_{so,ad/ch} + N_{wo,ad/ch} + N_{sl,ad/ch} + N_{wi,ad/ch} + N_{si,ad/ch}) / W_{ad/ch}$$

式中, $IP_{ad/ch}$ 指经呼吸二噁英暴露量 [$pg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$]; c_{air} 为空气中PCDD/Fs毒性当量浓度水平 ($pg \cdot m^{-3}$),取每个采样点四季采样监测的浓度均值; $V_{r_{ad/ch}}$ 指吸入速率 ($m^3 \cdot d^{-1}$),成人取 $15.7 m^3 \cdot d^{-1}$ ^[42],儿童取值 $7.0 m^3 \cdot d^{-1}$ ^[43]; f_r 指肺中停留系数,成人和儿童取均值 0.75 ^[40], $W_{ad/ch}$ 指人体体重,成人取我国居民成人平均体重 $60.6 kg$ ^[42],儿童取 $14 kg$ ^[43]; $(N_{so,ad/ch} + N_{wo,ad/ch} + N_{sl,ad/ch} + N_{wi,ad/ch} + N_{si,ad/ch})$ 指暴露时间系数,根据我国成人^[42]和儿童^[43]室内外活动时间参数估算得到成人 0.987 ,儿童 0.994 。

经计算,研究区域的成人对二噁英的潜在呼吸暴露剂量估算为 $0.060 \sim 0.115 pg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$,儿童为 $0.117 \sim 0.224 pg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$ 。略高于文献^[25]报道的上海市人群的呼吸暴露水平,与广州市人群呼吸暴露水平^[24]大致相当。以WHO推荐的PCDD/Fs每日最大容许摄入量(TDI) $4.0 pg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$ 为参考依据,计算该区域成人和儿童的呼吸暴露贡献率分别为 $1.50\% \sim 2.88\%$ 和 $2.92\% \sim 5.60\%$,符合文献^[44]建议的经呼吸进入人体的二噁英允许摄入量按最大容许摄入量10%执行的评价标准。

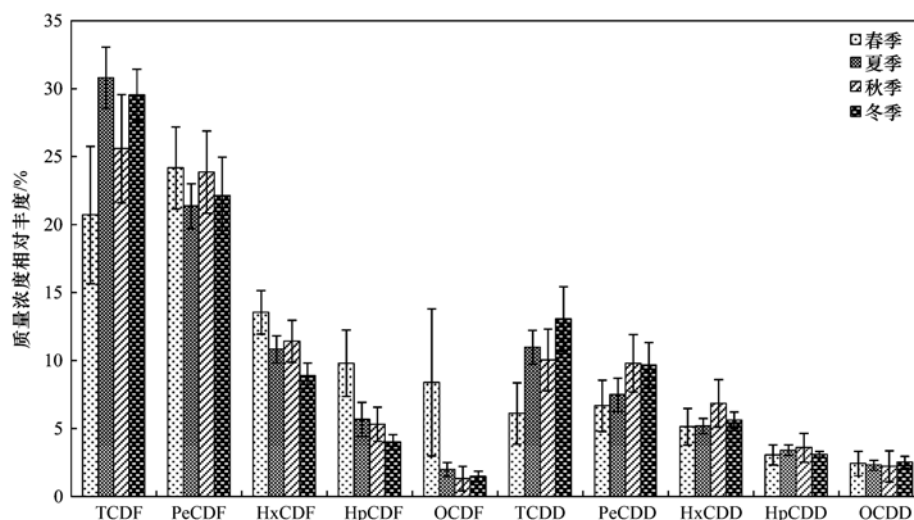
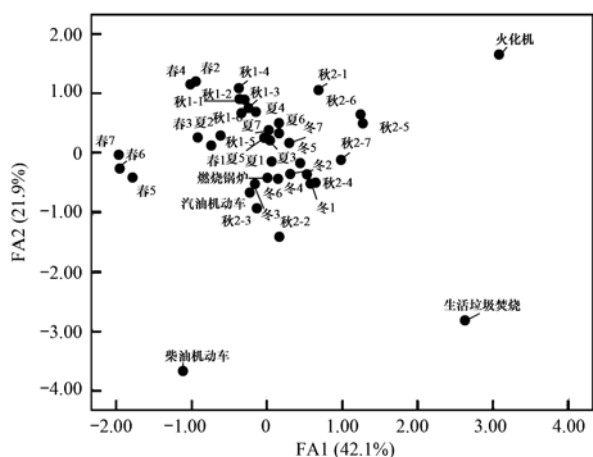


图7 各点位 PCDD/Fs 同族体分布特征谱图

Fig. 7 PCDD/Fs homologue profiles of the samples from all sampling sites



采样点名称指代季节+点位

图8 排放源与环境空气中 PCDD/Fs 相关性分析

Fig. 8 Correlation of PCDD/Fs profiles in emission sources and air samples

需要强调的是,由于冬季采暖期大气中颗粒物浓度水平较高,因此二噁英浓度水平亦显著高于其他非采暖期,与笔者研究室发表的北京市大气二噁英季节变化相一致,分析原因主要与采暖期集中供暖和大气扩散条件差所导致的冬季大气颗粒物整体污染较重有关^[23]。因此就冬季采暖期单独估算研究区域人群二噁英潜在呼吸暴露剂量为成人 $0.123 \sim 0.345 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$, 儿童 $0.238 \sim 0.671 \text{ pg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ 。部分采样点冬季采暖期儿童承受的呼吸暴露剂量高出上述评价标准^[44],而儿童的生理耐受能力较成人来说更弱,因此儿童的污染暴露尤其是大气颗粒物重污染季节的暴露应该得到重视。

3 结论

(1)生活垃圾焚烧厂周边大气中 PCDD/Fs 质

量浓度和毒性当量浓度的变化范围分别为 $8.9 \sim 140 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $0.11 \sim 1.8 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$,其中 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF 和 OCDD 是四季环境空气中 PCDD/Fs 质量浓度的主要贡献单体,2,3,4,7,8-PeCDF 是总 TEQ 贡献最大的单体。

(2)各采样点浓度水平在焚烧设施不同主导风向上下风向的空间分布差异性不明显且与其距离远近没有显著相关性。

(3)PCDD/Fs 在大气颗粒物中所占的百分比比较稳定且未呈现出明显的季节变化,表明大气颗粒物浓度水平越高则 PCDD/Fs 的污染状况越重。

(4)各采样点四季环境空气 PCDD/Fs 的组成呈现出热源影响的特征,但与焚烧源烟气分布特征不同,且可能受交通源影响较大的采样点在 APEC 限行期间特征单体贡献率下降幅度更显著,与 PCA 分析的结论较为一致即研究区域可能主要受到无组织燃煤和机动车等典型排放源共同影响,而非该焚烧设施烟气排放的主导影响。

(5)对焚烧厂周边区域人群的 PCDD/Fs 呼吸暴露剂量的估算结果表明其处于较为安全的水平,但大气颗粒物重污染季节颗粒物浓度水平不降低则二噁英的呼吸暴露风险较高,应该得到足够的重视。

参考文献:

- [1] Booth S, Hui J, Alojado Z, *et al.* Global deposition of airborne dioxin[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2013, **75** (1-2): 182-186.
- [2] Hageman K J, Bogdal C, Scheringer M. Long-range and regional atmospheric transport of POPs and implications for global cycling [J]. *Comprehensive Analytical Chemistry*, 2015, **57**: 363-387.
- [3] Sycheva L P, Umnova N V, Kovalenko M A, *et al.* Dioxins and cytogenetic status of villagers after 40 years of agent Orange

- application in Vietnam[J]. *Chemosphere*, 2016, **144**: 1415-1420.
- [4] Quaß U, Fernann M, Bröker G, *et al.* The European dioxin air emission inventory project-final results[J]. *Chemosphere*, 2004, **54**(9): 1319-1327.
- [5] Huang T, Tian C G, Zhang K, *et al.* Gridded atmospheric emission inventory of 2,3,7,8-TCDD in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **108**: 41-48.
- [6] Dwyer H, Themelis N J. Inventory of U. S. 2012 dioxin emissions to atmosphere[J]. *Waste Management*, 2015, **46**: 242-246.
- [7] 田亚静, 姜晨, 吴广龙, 等. 再生铜冶炼过程多氯萘与二噁英类排放特征分析与控制技术评估[J]. *环境科学*, 2015, **36**(12): 4682-4689.
- Tian Y J, Jiang C, Wu G L, *et al.* Assessment of emission and co-reduction of PCDD/Fs and PCNs in the secondary copper production sector[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(12): 4682-4689.
- [8] Olie K, Vermeulen P L, Hutzinger O. Chlorodibenzo-*p*-dioxins and chlorodibenzofurans are trace components of fly ash and flue gas of some municipal incinerators in the Netherlands [J]. *Chemosphere*, 1977, **6**(8): 455-459.
- [9] Tian H H, Ou Y N. Preliminary investigation on dioxins emission from MSW incinerators[J]. *Environmental Chemistry*, 2003, **22**(3): 255-258.
- [10] Shih T S, Chen H, Wu Y L, *et al.* Exposure assessment of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans (PCDD/Fs) in temporary municipal-waste-incinerator maintenance workers before and after annual maintenance[J]. *Chemosphere*, 2006, **64**(9): 1444-1449.
- [11] Kim K S, Shin S K, Kim K S, *et al.* National monitoring of PCDD/DFs in environmental media around incinerators in Korea [J]. *Environment International*, 2008, **34**(2): 202-209.
- [12] Colombo A, Benfenati E, Mariani G, *et al.* PCDD/Fs in ambient air in north-east Italy: the role of a MSWI inside an industrial area[J]. *Chemosphere*, 2009, **77**(9): 1224-1229.
- [13] Gao L R, Zhang Q, Liu L D, *et al.* Spatial and seasonal distributions of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans and polychlorinated biphenyls around a municipal solid waste incinerator, determined using polyurethane foam passive air samplers[J]. *Chemosphere*, 2014, **114**: 317-326.
- [14] Zhang M W, Zhang S K, Zhang Z Q, *et al.* Influence of a municipal solid waste incinerator on ambient air PCDD/F levels: a comparison of running and non-running periods[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **491-492**: 34-41.
- [15] Abad E, Caiaach J, Rivers J. PCDD/PCDF from emission sources and ambient air in Northeast Spain[J]. *Chemosphere*, 1997, **35**(3): 453-463.
- [16] Oh J E, Choi S D, Lee S J, *et al.* Influence of a municipal solid waste incinerator on ambient air and soil PCDD/Fs levels[J]. *Chemosphere*, 2006, **64**(4): 579-587.
- [17] Lohmann R, Jones K C. Dioxins and furans in air and deposition: a review of levels, behaviour and processes [J]. *Science of the Total Environment*, 1998, **219**(1): 53-81.
- [18] Min Y, Lee M, Kim D, *et al.* Annual and seasonal variations in atmospheric PCDDs/PCDFs and dioxin-like PCBs levels in satellite cities of Seoul, Korea during 2003- 2009 [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **77**: 222-230.
- [19] Gunes G, Saral A, Celikten H, *et al.* Investigation of temporal and spatial variations in atmospheric concentrations of PCDDs and PCDFs in Istanbul[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **488-489**: 469-474.
- [20] Rovira J, Vilavert L, Nadal M, *et al.* Temporal trends in the levels of metals, PCDD/Fs and PCBs in the vicinity of a municipal solid waste incinerator. Preliminary assessment of human health risks[J]. *Waste Management*, 2015, **43**: 168-175.
- [21] HJ 77.2-2008, 环境空气和废气二噁英类的测定 同位素稀释高分辨气相色谱-高分辨质谱法[S].
- [22] Li Y M, Jiang G B, Wang Y W, *et al.* Concentrations, profiles and gas-particle partitioning of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans in the ambient air of Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(9): 2037-2047.
- [23] Zhou Z G, Zhao B, Qi L, *et al.* Distribution of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans in the atmosphere of Beijing, China[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2014, **14**(4): 1269-1278.
- [24] Yu L P, Mai B X, Meng X Z, *et al.* Particle-bound polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans in the atmosphere of Guangzhou, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(1): 96-108.
- [25] Li H R, Feng J L, Sheng G Y, *et al.* The PCDD/F and PBDD/F pollution in the ambient atmosphere of Shanghai, China[J]. *Chemosphere*, 2008, **70**(4): 576-583.
- [26] Fiedler H. Sources of PCDD/PCDF and impact on the environment[J]. *Chemosphere*, 1996, **32**(1): 55-64.
- [27] Environmental quality standards in Japan: air quality[EB/OL]. [http://www. env. go. jp/en/air/aq/aq. html](http://www.env.go.jp/en/air/aq/aq.html).
- [28] 张振全, 张漫雯, 赵保卫, 等. 生活垃圾焚烧厂周边环境空气中 PCDD/Fs 含量及分布特征[J]. *中国环境科学*, 2013, **33**(7): 1207-1214.
- Zhang Z Q, Zhang M W, Zhao B W, *et al.* Concentrations and profiles of PCDD/Fs in ambient air around a municipal solid waste incinerator[J]. *China Environmental Science*, 2013, **33**(7): 1207-1214.
- [29] 孙俊玲. 北京市大气环境中二噁英和多氯联苯的污染特征和气-粒分配行为研究[D]. 北京: 中国地质大学(北京), 2009.
- Sun J L. Atmospheric pollution profiles, gas-particle partitioning of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzo-furans (PCDD/Fs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) in Beijing [D]. Beijing: China University of Geosciences (Beijing), 2009.
- [30] Ding L, Li Y M, Wang P, *et al.* Seasonal trend of ambient PCDD/Fs in Tianjin City, northern China using active sampling strategy[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2012, **24**(11): 1966-1971.
- [31] Sin D W M, Choi J Y J, Louie P K K. A study of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans in the atmosphere of Hong Kong[J]. *Chemosphere*, 2002, **47**(6): 647-653.
- [32] 苏原, 张素坤, 任明忠, 等. 广州大气二噁英污染水平及其季节变化特征[J]. *环境科学研究*, 2014, **27**(8): 813-819.
- Su Y, Zhang S K, Ren M Z, *et al.* Pollution levels and seasonal variability of atmospheric PCDD/Fs in Guangzhou[J]. *Research*

- of Environmental Sciences, 2014, **27**(8): 813-819.
- [33] 齐丽, 任玥, 李楠, 等. 垃圾焚烧厂周边大气二噁英含量及变化特征——以北京某生活垃圾焚烧发电厂为例[J]. 中国环境科学, 2016, **36**(4): 1000-1008.
- Qi L, Ren Y, Li N, *et al.* Concentrations, spatial and seasonal variations of PCDD/Fs in ambient air around a municipal solid waste incinerator—a case study in Beijing [J]. China Environmental Science, 2016, **36**(4): 1000-1008.
- [34] Caserini S, Cernuschi S, Giugliano M, *et al.* Air and soil dioxin levels at three sites in Italy in proximity to MSW incineration plants[J]. Chemosphere, 2004, **54**(9): 1279-1287.
- [35] Wang J B, Wang M S, Wu E M Y, *et al.* Approaches adopted to assess environmental impacts of PCDD/F emissions from a municipal solid waste incinerator [J]. Journal of Hazardous Materials, 2008, **152**(3): 968-975.
- [36] Chen T, Li X D, Yan J H, *et al.* Distribution of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans in ambient air of different regions in China [J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**(36): 6567-6575.
- [37] Lee W S, Chang-Chien G P, Wang L C, *et al.* Source identification of PCDD/Fs for various atmospheric environments in a highly industrialized city [J]. Environmental Science & Technology, 2004, **38**(19): 4937-4944.
- [38] Wagrowski D M, Hites R A. Insights into the global distribution of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans [J]. Environmental Science & Technology, 2000, **34**(14): 2952-2958.
- [39] US EPA. Database of sources of environmental releases of dioxin-like compounds in the United States[R]. EPA/600/C-01/012. Washington, DC: US EPA, 2001.
- [40] Nouwen J, Cornelis C, Fré R D, *et al.* Health risk assessment of dioxin emissions from municipal waste incinerators: the Neerlandquarter (Wilrijk, Belgium) [J]. Chemosphere, 2001, **43**(4-7): 909-923.
- [41] 胡习邦, 许振成, 王俊能, 等. 环境多介质中 PCDD/Fs 人群健康风险评价——以珠江三角洲为例[J]. 生态环境学报, 2011, **20**(2): 311-316.
- Hu X B, Xu Z C, Wang J N, *et al.* Human health potential impacts of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins and dibenzofurans pollution in Pearl River Delta [J]. Ecology and Environmental Sciences, 2011, **20**(2): 311-316.
- [42] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册(成人卷)[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2013.
- [43] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册(儿童卷: 0~5岁)[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2016.
- [44] 环境保护部, 国家发展和改革委员会, 国家能源局. 关于进一步加强生物质发电项目环境影响评价管理工作的通知(环发 2008[82]号)[Z]. 2008.

CONTENTS

Dry and Bulk Nitrogen Deposition in Suburbs of Xining City	XU Wen, JIN Xin, LUO Shao-hui, <i>et al.</i> (1279)
Day-Night Variation and Source Apportionment of Carbonaceous Aerosols in PM ₁₀ During Spring and Summer of Lanzhou	MA Li, YU Ye, WANG Bo, <i>et al.</i> (1289)
Characteristics of the Size Distribution of Water Soluble Inorganic Ions in Sanya, Hainan	WANG Lu, LIU Zi-rui, WEN Tian-xue, <i>et al.</i> (1298)
Pollution Characteristics of NH ₄ ⁺ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ in PM _{2.5} and Their Precursor Gases During 2015 in an Urban Area of Beijing	DING Meng-meng, ZHOU Jian-nan, LIU Bao-xian, <i>et al.</i> (1307)
Pollution Characteristics of PCDD/Fs in Ambient Air and Exposure Risk Assessment Around a Municipal Solid Waste Incinerator in Beijing	QI Li, REN Yue, LIU Ai-min, <i>et al.</i> (1317)
Community Characteristics of Cultivable Bacteria in Fine Particles (PM _{2.5}) of Beijing and Baoding	HU Ya-dong, MA An-zhou, LÜ Peng-yi, <i>et al.</i> (1327)
Emission Characteristics of Vehicle Exhaust in Artery and Collector Roads in Nanjing Based on Real-time Traffic Data	LI Xiao-yu, WU Lin, ZOU Chao, <i>et al.</i> (1340)
Catalytic Combustion of Soot Particulates over Rare Earth Pyrochlore Oxides Doped with Transition Metals	LI Xi-feng, SUN Yu-qi, WANG Zhong-peng, <i>et al.</i> (1348)
Water Quality Analysis of Beijing Segment of South-to-North Water Diversion Middle Route Project	XU Hua-shan, ZHAO Lei, SUN Hao-su, <i>et al.</i> (1357)
Hanfeng Pre-reservoir Commissioning Time Variation Feature of the Hydrology and Water Quality in Three Gorges Reservoir	YANG Bing, HE Bing-hui, WANG De-bao (1366)
Modeling of Water Quality Response to Land-use Patterns in Taizi River Basin Based on Partial Least Squares	LI Lin-lin, ZHANG Yi-zhang, TANG Chang-yuan, <i>et al.</i> (1376)
Distribution Characteristics of Water Temperature and Water Quality of Fuxian Lake During Thermal Stratification Period in Summer	WANG Lin-jie, YU Hui, NIU Yong, <i>et al.</i> (1384)
Vertical Stratification Characteristics of Dissolved Oxygen and Phytoplankton in Thousand-Island Lake and Their Influencing Factors	YU Yan, LIU De-fu, YANG Zheng-jian, <i>et al.</i> (1393)
Community Structure Characteristics of Eukaryotic Planktonic Algae in Liaoh River Through High-throughput Sequencing	WANG Jing-qi, WANG Shu-ping, ZHANG Yuan, <i>et al.</i> (1403)
Effects of Coastal Organic Pollution on Bacterioplankton Community in Sanmen Bay	DAI Wen-fang, GUO Yong-hao, YU Wei-na, <i>et al.</i> (1414)
Nitrate Source Identification and Nitrification-denitrification at the Sediment-water Interface	JIN Zan-fang, GONG Jia-lin, SHI Yi-li, <i>et al.</i> (1423)
Residues of Organochlorine Pesticides (OCPs) in Water and Sediments from Nansha Mangrove Wetland	DING Yang, HUANG Huan-fang, LI Hui, <i>et al.</i> (1431)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals from River Network Sediment in Western Area of Taihu Lake	BIAN Bo, ZHOU Yan, ZHANG Qin (1442)
Efficacy of Phoslock® on the Reduction of Sediment Phosphorus Release in West Lake, Hangzhou, China	ZHU Guang-wei, LI Jing, ZHU Meng-yuan, <i>et al.</i> (1451)
Identification and PAC Adsorption of Fouling Responsible for Irreversible Fouling During Ultrafiltration of Dongjiang River Water	YANG Hai-yan, WANG Can, YAN Zhong-sen, <i>et al.</i> (1460)
Efficiency and Kinetics of Triclosan Degradation in Aqueous Solution by UV/Sodium Persulfate	LI Qing-song, LI Xue-yan, YAO Ning-bo, <i>et al.</i> (1467)
Influencing Factors on the Degradation of PFOS Through VUV-SO ₃ ²⁻	HAN Hui-li, WANG Hong-jie, DONG Wen-yi (1477)
Simultaneous Photocatalytic Reduction of Cr(VI) and Oxidation of SSA by Carbon Nitride	LI Li-li, CHEN Cui-hai, LAN Hua-chun, <i>et al.</i> (1483)
Modification of Diatomite by Zirconium and Its Performance in Phosphate Removal from Water	FAN Yi, WANG Zhe, ZHAO Lian-qin, <i>et al.</i> (1490)
Reducing Effect of Three Disinfection Technologies for Sulfonamides Resistance Genes	ZHENG Ji, ZHOU Zhen-chao, CHEN Fang, <i>et al.</i> (1497)
Removal of Estrogenic Effect by Typical Domestic Wastewater Treatment Processes	ZHANG Qiu-ya, MA Xiao-yan, WANG Xiao-chang, <i>et al.</i> (1506)
Effect of SRT on Stability of Yeast-SBR in Treating Oil-containing Wastewater	LÜ Wen-zhou, ZHANG Shu-lin, QIAO Yu-xiang, <i>et al.</i> (1513)
Degradation of the Disperse Dye Neocron Black(NB) by Biological Treatment	YANG Bo, DING Feng-you, XU Hui, <i>et al.</i> (1520)
Function of Polyphosphate Kinase Gene in Biological Phosphate Removal During the Wastewater Treatment Process	NAN Ya-ping, ZHOU Guo-biao, YUAN Lin-jiang (1529)
Short-cut Nitrification Recovery and Its Transformation into CANON Process in a Biofilm Reactor	FU Kun-ming, ZHOU Hou-tian, SU Xue-ying, <i>et al.</i> (1536)
Nitrogen Removal Characteristics and Diversity of Microbial Community in ANAMMOX Reactor	CAO Yan, WANG Tong-yu, QIN Yu-jie, <i>et al.</i> (1544)
Effect of Environment Adjustment Layers on Nitrogen Transformation in Anaerobic Bioreactor Landfills	HE Zheng-kun, SONG Bo-yu, ZHU Nan-wen, <i>et al.</i> (1551)
Characteristics of Anaerobic Methane Removal Coupled to Fe(III) Reduction in Aged Refuse	WANG Li-li, HE Ting, LONG Yan, <i>et al.</i> (1558)
Assessment of Heavy Metal Pollution and Tracing Sources by Pb & Sr Isotope in the Soil Profile of Woodland in Quanzhou	SUN Jing-wei, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (1566)
Accumulation and Migration Characteristics in Soil Profiles and Bioavailability of Heavy Metals from Livestock Manure	HE Meng-yuan, DONG Tong-xi, RU Shu-hua, <i>et al.</i> (1576)
Pollution Characteristics and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Agricultural Soils from Shandong	GE Wei, CHENG Qi-qi, CHAI Chao, <i>et al.</i> (1587)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Organophosphorus Pesticides in Typical Soil Environment of Jiangnan Plain	WANG Jian-wei, ZHANG Cai-xiang, PAN Zhen-zhen, <i>et al.</i> (1597)
Characteristics and Influencing Factors of Biologically-based Phosphorus Fractions in the Farmland Soil	CAI Guan, HU Ya-jun, WANG Ting-ting, <i>et al.</i> (1606)
Effect of Straw Application on the Dynamics of Exogenous Nitrogen and Microbial Activity in Paddy Soil	CHEN Shan, DING Xian-qing, ZHU Zhen-ke, <i>et al.</i> (1613)
Effects of Biochar on Surface Albedo and Soil Respiration in Suburban Agricultural Soil	ZHANG Yang-yang, HU Xue-yu, ZOU Juan, <i>et al.</i> (1622)
N ₂ O Consumption Ability of Submerged Paddy Soil and the Regulatory Mechanism	WANG Ling, XING Xiao-yi, QIN Hong-ling, <i>et al.</i> (1633)
Non-CO ₂ Greenhouse Gas Release from Different Biological Wastewater Treatment Processes	LI Hui-juan, PENG Dang-cong, LIU Wen-bo, <i>et al.</i> (1640)
Effect of Application of Sewage Sludge Composts on Greenhouse Gas Emissions in Soil	YANG Yu-han, YI Jian-ting, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (1647)
Effect of Nano Zeolites on pH, CEC in Soil and Cd Fractions in Plant and Soil at Different Cadmium Levels	CHI Sun-lin, XU Wei-hong, XIONG Shi-juan, <i>et al.</i> (1654)
Dynamic Differences of Uptake and Translocation of Exogenous Selenium by Different Crops and Its Mechanism	PENG Qin, LI Zhe, LIANG Dong-li, <i>et al.</i> (1667)
Alleviation Effects of Exogenous Melatonin on Ni Toxicity in Rice Seedlings	LIU Shi-xiang, HUANG Yi-zong, LUO Ze-jiao, <i>et al.</i> (1675)
Forms Distribution and Ecotoxicity of Three Forms of Sulfonamides in Root-Soil Interface of Maize	JIN Cai-xia, SI Xiao-wei, WANG Wan-feng, <i>et al.</i> (1683)
Effect of Sediments on Bioaccumulation of Mercury in Fish Body in the Water-Level-Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir Area	SUN Song, LI Chu-xian, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (1689)
Bioaccumulation and Correlation of Heavy Metals in Human Hairs From Urban and Rural Areas of Chongqing	HE Ming-jing, LI Qi, WANG Deng-xiang, <i>et al.</i> (1697)
Microbial Community Structure and Diversity in Cellar Water by 16S rRNA High-throughput Sequencing	YANG Hao, ZHANG Guo-zhen, YANG Xiao-ni, <i>et al.</i> (1704)
Performance Improvement of Microbial Fuel Cell with Polyaniline Doped Graphene Anode	HUANG Li-hua, LI Xiu-fen, REN Yue-ping, <i>et al.</i> (1717)
Brief Introduction of Pollution Sites Remediation and Risk Assessment and Its Policy Making in United States	RONG Yue (1726)