

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第11期

Vol.36 No.11

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

北京市大气气溶胶中糖类化合物的组成及来源	梁林林, Guenter Engling, 段凤魁, 马永亮, 程远, 杜祯宇, 贺克斌 (3935)
北京大气 PM _{2.5} 与惰性 SiO ₂ 的生物毒性比较	刘梦娇, 黄艺, 文航, 邱国玉 (3943)
APEC 期间北京及周边城市 AQI 区域特征及天气背景分析	高庆先, 刘俊蓉, 王宁, 李文涛, 高文康, 苏布达 (3952)
2000~2014 年北京市 SO ₂ 时空分布及一次污染过程分析	程念亮, 张大伟, 李云婷, 陈添, 李金香, 董欣, 孙瑞雯, 孟凡 (3961)
利用 SPAMS 研究石家庄市冬季连续灰霾天气的污染特征及成因	周静博, 任毅斌, 洪纲, 路娜, 李治国, 李雷, 李会来, 靳伟 (3972)
长江三角洲夏季一次典型臭氧污染过程的模拟	张亮, 朱彬, 高晋徽, 康汉青, 杨鹏, 王红磊, 李月娥, 邵平 (3981)
珠江三角洲区域污染分布及其垂直风场特征	刘建, 吴兑, 范绍佳 (3989)
春季黄渤海海水中尿素分布特征及溶解态氮的组成	李志林, 石晓勇, 张传松 (3999)
洱海流域农业用地与入湖河流水质的关系研究	庞燕, 项颂, 储昭升, 薛力强, 叶碧碧 (4005)
大辽河主要污染源营养盐输入特征	马迎群, 张雷, 赵艳民, 秦延文, 潘晓雪, 曹伟, 刘志超, 杨晨晨 (4013)
三峡库区大宁河沉积物营养盐时空分布及其与叶绿素的相关性分析	张永生, 李海英, 任家盈, 卢佳 (4021)
不同地质背景水库区夏季水-气界面温室气体交换通量研究	李建鸿, 蒲俊兵, 孙平安, 袁道先, 刘文, 张陶, 莫雪 (4032)
周丛生物存在下不同水层氧化还原带的分布及其与微生物的关联	王逢武, 刘玮, 万娟娟, 杨嘉利, 刘雪梅, 向速林, 吴永红 (4043)
华北低平原区地下水中氟分布特征及形成原因: 以南皮县为例	孔晓乐, 王仕琴, 赵焕, 袁瑞强 (4051)
某市典型地段地表水及地下水中氟喹诺酮类抗生素分布特征	崔亚丰, 何江涛, 苏思慧, 杨蕾, 乔肖刚 (4060)
乳山湾邻近海域沉积物中好氧氨氧化微生物分布特征	贺惠, 甄毓, 米铁柱, 张玉, 付璐璐, 于志刚 (4068)
青木关地下河中溶解态甾醇来源及迁移、转化特征	梁作兵, 沈立成, 孙玉川, 王尊波, 江泽利, 张媚, 廖昱, 谢正兰, 张远瞩 (4074)
多环芳烃在岩溶地下表层沉积物-水相的分配	蓝家程, 孙玉川, 肖时珍 (4081)
降雨期间岩溶地下河溶解态多环芳烃变化特征及来源解析	江泽利, 孙玉川, 王尊波, 梁作兵, 任坤, 谢正兰, 张媚, 廖昱 (4088)
重庆南山老龙洞地下河系统重金属分布、迁移及自净能力	任坤, 梁作兵, 于正良, 张宇, 王蓉, 袁道先 (4095)
三峡水库消落带植物汞的分布特征	梁丽, 王永敏, 李先源, 唐振亚, 张翔, 张成, 王定勇 (4103)
物理和生物组合扰动对底泥微界面过程的影响	王忍, 李大鹏, 黄勇, 刘焱见, 陈俊 (4112)
超声、过硫酸钾协同去除水中诺氟沙星的效果	魏红, 史京转, 李佳霖, 李克斌, 赵琳, 韩凯 (4121)
载银活性炭活化过硫酸钠降解酸性橙 7	王忠明, 黄天寅, 陈家斌, 李文卫, 张黎明 (4127)
TiO ₂ 降解迪美唑的动力学及活性物质分析	陈冬梅, 喻泽斌, 孙蕾, 黄俊, 高丽红, 李明洁 (4135)
单宁酸铁吸附去除水中无机氮的性能与机制研究	张瑞娜, 李琳, 刘俊新 (4141)
间歇曝气式膜生物反应器对养猪沼液中兽用抗生素的去除特性	丁佳丽, 刘锐, 郑炜, 宋小燕, 余卫娟, 叶朝霞, 陈吕军, 张永明 (4148)
单级和两级串联臭氧-生物活性炭深度处理垃圾渗滤液比较研究	杜安静, 范举红, 刘锐, 邱松凯, 文晓刚, 陈吕军 (4154)
水力停留时间和溶解氧对陶粒 CANON 反应器的影响	王会芳, 付昆明, 左早荣, 仇付国 (4161)
氨氮对 AOB 抑制的形态及规律	崔剑虹, 李祥, 黄勇, 朱亮, 杨朋兵 (4168)
厌氧氨氧化与反硝化协同脱氮处理城市污水	张诗颖, 吴鹏, 宋吟玲, 沈耀良, 张婷 (4174)
同步硝化反硝化耦合除磷工艺的快速启动及其运行特征	冷璐, 信欣, 鲁航, 唐雅男, 万利华, 郭俊元, 程庆锋 (4180)
HCO ₃ ⁻ 对部分亚硝化-厌氧氨氧化联合工艺脱氮效能的影响	李祥, 陈宗姮, 黄勇, 袁怡, 刘忻, 张大林 (4189)
ABR 耦合 CSTR 一体化工艺好氧颗粒污泥亚硝化性能调控及稳态研究	巫恺澄, 吴鹏, 沈耀良, 李月寒, 王建芳, 徐乐中 (4195)
活化过硫酸盐对市政污泥调理效果的影响	徐鑫, 濮文虹, 时亚飞, 虞文波, 张诗楠, 宋健, 张昊, 何姝, 杨昌柱, 杨家宽 (4202)
温度分化对 APBR 反应器性能及产甲烷菌群落的影响	谢海迎, 汪鑫, 李牧原, 阎叙西, 五十岚泰夫, 罗锋 (4208)
污染场地修复技术筛选方法及应用	白利平, 罗云, 刘俐, 周友亚, 颜增光, 李发生 (4218)
基于 Monte Carlo 模拟的土壤重金属综合风险评价与案例分析	杨阳, 代丹, 蔡怡敏, 陈卫平, 侯瑜, 杨锋 (4225)
大港工业区土壤重金属污染及生态风险评价	张倩, 陈宗娟, 彭昌盛, 李发生, 谷庆宝 (4232)
缙云山不同土地利用方式对土壤团聚体微生物量碳氮的影响	李增全, 江长胜, 郝庆菊 (4241)
不同秸秆翻埋还田对旱地和水田土壤微生物群落结构的影响	兰木岭, 高明 (4252)
生草果园土壤微生物群落的碳源利用特征	杜毅飞, 方凯凯, 王志康, 李会科, 毛鹏娟, 张向旭, 王婧 (4260)
不同有机物料对东南景天修复重金属污染土壤效率的影响	姚桂华, 徐海舟, 朱林刚, 马嘉伟, 柳丹, 叶正钱 (4268)
组配改良剂对土壤-蔬菜系统铅镉转运调控的场地研究	朱维, 刘丽, 吴燕明, 周航, 邓贵友, 杨文骏, 彭佩钦, 曾敏, 廖柏寒 (4277)
水稻品种及典型土壤改良措施对稻米吸收镉的影响	王美娥, 彭驰, 陈卫平 (4283)
大庆湖泊群水体和淡水鱼中多环芳烃污染特征及生态风险评估	王晓迪, 臧淑英, 张玉红, 王凡, 杨兴, 左一龙 (4291)
覆盖层甲烷氧化动力学和甲烷氧化菌群落结构	邢志林, 赵天涛, 高艳辉, 何芝, 杨旭, 彭绪亚 (4302)
阳极内添加阳离子交换树脂提升铝压“三合一”膜电极 MFC 性能	梅卓, 张哲, 王鑫 (4311)
应用基于单克隆抗体的免疫传感器检测环境中的茚和苯并茚	李鑫, 乔璇, 钟国祯 (4319)
《环境科学》征订启事 (4224) 《环境科学》征稿简则 (4318) 信息 (4080, 4173, 4290, 4301)	

北京市大气气溶胶中糖类化合物的组成及来源

梁林林^{1,2}, Guenter Engling^{3,4}, 段凤魁¹, 马永亮¹, 程远¹, 杜祯宇¹, 贺克斌^{1*}

(1. 清华大学环境学院, 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 北京 100084; 2. 中国气象科学研究院中国气象局大气成分观测与服务分中心, 大气化学重点开放实验室, 北京 100081; 3. 台湾“清华大学”生物医学工程与环境科学系, 新竹 300; 4. Division of Atmospheric Sciences, Desert Research Institute, Reno, NV, USA)

摘要: 采用高效阴离子交换色谱-脉冲安培检测(HPAEC-PAD)分析方法, 对北京城区 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中糖类化合物进行定量分析. 在北京大气气溶胶中共检出 14 种糖类化合物, 分为脱水糖、糖和糖醇共 3 大类. 脱水糖包括左旋葡聚糖、甘露聚糖和半乳聚糖; 糖包括葡萄糖、果糖和海藻糖; 糖醇包括阿拉伯糖醇、甘露糖醇、丙三醇、苏糖醇、2-甲基丁四醇(2-甲基苏糖醇和 2-甲基赤藓糖醇)、木糖醇和肌醇. 脱水糖来源于生物质燃烧, 秋冬季节的浓度水平明显高于春夏; 而来源于生物源排放的糖和糖醇, 冬季浓度水平明显低于其它季节. PMF 源解析结果表明, 北京大气气溶胶中糖类化合物的来源主要可以分为 6 类, 包括生物质燃烧、异戊二烯 SOA、土壤悬浮、真菌孢子、花粉及丙三醇富集源.

关键词: 糖类化合物; 气溶胶; 左旋葡聚糖; 分子示踪; 来源解析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)11-3935-08 DOI: 10.13227/j.hj.kx.2015.11.001

Composition and Source Apportionments of Saccharides in Atmospheric Particulate Matter in Beijing

LIANG Lin-lin^{1,2}, Guenter Engling^{3,4}, DUAN Feng-kui¹, MA Yong-liang¹, CHENG Yuan¹, DU Zhen-yu¹, HE Ke-bin^{1*}

(1. State Key Joint Laboratory of Environment Simulation and Pollution Control, School of Environment, Tsinghua University, Beijing 100084, China; 2. Key Laboratory for Atmospheric Chemistry, Center for Atmosphere Watch and Services, Chinese Academy of Meteorological Sciences, China Meteorological Administration, Beijing 100081, China; 3. Department of Biomedical Engineering and Environmental Sciences, Taiwan Tsing Hua University, Hsinchu 300, China; 4. Division of Atmospheric Sciences, Desert Research Institute, Reno, NV, USA)

Abstract: Based on the newly established high-performance anion exchange chromatography with pulsed amperometric detection (HPAEC-PAD), the saccharides in PM_{2.5} and PM₁₀ in Beijing from 2011-2012 were quantified. Fourteen saccharides were synchronously detected in the aerosols samples in Beijing, which can be divided into three categories, i. e. anhydrosugar, sugar and sugar alcohol. Anhydrosugar, coming from biomass burning, include levoglucosan, mannosan and galactosan. Sugar and sugar alcohol, emitted by the primary biogenic emission, include glucose, fructose, trehalose, arabinol, mannitol, glycerol, threitol, 2-methyltritos (2-methylthreitol and 2-methylerythritol), xylitol and inositol. The concentrations of monosaccharide anhydrides in summer and autumn were obviously higher than those in spring and winter, while the concentrations of sugar and sugar alcohol in winter were significantly lower than those in other seasons. The results of positive matrix factorization analysis suggested that saccharides compounds in atmospheric PM in Beijing can be derived from biomass burning, suspended soil or dust, isoprene SOA, as well as direct release of airborne fungal spores and pollen.

Key words: saccharides; aerosol; levoglucosan; molecular marker; source apportionment

糖类化合物(Saccharide)广泛存在于生物界,是大气颗粒物的重要组成部分,科学研究已经证明^[1,2],生物质燃烧、植被、农田耕作、土壤悬浮等排放源都可以向大气气溶胶中释放糖类化合物. 糖类化合物质量占大陆性气溶胶质量的 13% ~ 26%, 占海洋性气溶胶质量最高能达到 63%, 是气溶胶中水溶性有机物的重要组成部分之一,对局地甚至是全球气候变化有着重要的影响^[1].

我国城市大气颗粒物污染严重,颗粒物中有机物含量高^[3]. 大气气溶胶有机组分的种类繁多,但

是目前国内对单体有机物的研究和报道还局限在正构烷烃、多环芳烃和部分有机酸,对水溶性有机化合物,尤其是糖类化合物的分析报道还相对较少,主要集中在森林地区,而且一般都侧重于气溶胶短期

收稿日期: 2015-04-24; 修订日期: 2015-06-15

基金项目: 国家自然科学基金项目(21307067, 21190054, 21107061); 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2010CB951803); 中国气象科学研究院基本科研业务费专项(2015Y001)

作者简介: 梁林林(1982~),女,博士,助理研究员,主要大气颗粒物观测与区域复合污染, E-mail: liang_linlin@126.com

* 通讯联系人, E-mail: hekb@tsinghua.edu.cn

采样^[4,5]. 此外,由于糖类化合物极性大、挥发性小,难以直接进行气相色谱分析,目前文献中关于大气气溶胶中糖类化合物分析方法的报道多为衍生化-气相色谱法,该方法不仅操作复杂,而且需要使用大量有毒衍生试剂^[6~8]. 传统的脉冲安培阴离子交换色谱(HPAEC)法常用于食品、饲料、植物提取物等样品中糖类化合物测定,但很少用于大气颗粒物的分析^[9,10]. Engling 等^[11]首次将优化和改进后的高效阴离子交换色谱-脉冲安培检测法用于大气颗粒物中左旋葡聚糖的测定,而且该方法测定的左旋葡聚糖浓度结果和 GC-MS 和 HPLC-MS 测试结果具有很高的一致性. HPAEC-PAD 色谱法具有灵敏度高、操作简单以及无需衍生等优势,近些年来,已经被广泛地应用于大气颗粒物样品中糖类化合物检测^[12~16]. 本研究选择采用 HPAEC-PAD 方法对采集的 PM_{2.5}和 PM₁₀进行糖类化合物分析,样品覆盖北京春、夏、秋、冬这4个季节,探讨大气气溶胶中糖类化合物的理化特性和来源.

1 材料与方法

1.1 样品采集

采样点设置在清华大学校园内,观测点位于环境系实验室北二层屋顶,采样高度距离地面约 5 m. 本研究采用美国热电公司(Thermo Fisher Scientific Inc., USA)生产的安德森大流量采样器(High-volume Sampler),该仪器分别配备 PM₁₀切割器(GUV-15HBL1)和 PM_{2.5}切割器(G1200-41),可以分别对大气中的 PM₁₀或者 PM_{2.5}进行采样,采样流量为 1.13 L·min⁻¹. 本实验采用两台安德森大流量采样器,分别配备 PM₁₀和 PM_{2.5}切割器,同时进行 PM₁₀和 PM_{2.5}对比采集,采样时间为 2010 年 11 月 10 日~2011 年 10 月 20 日,共采集 592 个滤膜样品样品覆盖了北京春、夏、秋、冬这4个季节. 所有样品均采集一天(~24 h). 采用的均为石英纤维滤膜(Tissuequartz 2500QAT-UP, 8×10 IN, Pall, USA),使用前于 600℃ 灼烧 24 h,除去所有可能吸附的有机污染物. 所采集的气溶胶滤膜样品均用铝箔包裹后用密封袋密封于 -20℃ 下冷冻储存,直到分析测试.

1.2 样品预处理

用不锈钢冲子切割面积为 2.20 cm²的气溶胶滤膜样品,放入棕色瓶中,加入 2 mL 超纯水,用盖子密封(并用生料带缠紧以免超声时盖子脱落),超声萃取 60 min(放置冰袋避免水温升高). 超声后,将萃取溶液经过微孔滤膜(0.45 μm, Pall Corporation,

NY, USA),去除萃取液中难以溶解的杂质. 过滤后,将萃取溶液移至棕色瓶中. 所有得到的萃取溶液样品保存于 4℃ 冰箱内,直到分析测试. 实验所用玻璃仪器均在自来水中用洗涤剂浸泡并超声清洗,然后依次用自来水、超纯水各冲洗 3 遍,在通风处中瓶口朝下,晾干后用锡纸封住瓶口放置于马弗炉中 600℃ 下烘烤 8 h,自然冷却后备用.

1.3 糖类化合物的测定

在北京大气气溶胶中共检出 14 种糖类化合物,包括左旋葡聚糖、甘露聚糖、半乳聚糖、葡萄糖、果糖、海藻糖、阿拉伯糖醇、甘露糖醇、丙三醇、蔗糖醇、2-甲基丁四醇(2-甲基蔗糖醇和 2-甲基赤藓糖醇)、木糖醇和肌醇.

本研究实验使用的分析仪器为 Dionex ICS-3000 型离子色谱,分离系统采用的是 Dionex Carbopac MA1 分析柱(4×250 mm)和 Dionex Carbopac MA1 保护柱(4×50 mm). 柱温: 30℃; 进样体积: 25 μL; 以 1 mol·L⁻¹ NaOH 和水为淋洗液进行二元梯度淋洗,流速 0.4 mL·min⁻¹. 总运行时间为 60 min,包括: 15 min 的平衡期; 30 min 的 480 mmol·L⁻¹ NaOH 糖分离期; 15 min 480 mmol·L⁻¹ NaOH 到 650 mmol·L⁻¹ NaOH 的线性梯度淋洗期. 该方法峰面积相对标准偏差均低于 4%,回收率为 96%~103%,主要糖类化合物的检测限与相对标准偏差见表 1^[17]. 本研究采用对糖醇类分离效果最好的 Dionex Carbopac MA1 分析柱. 以峰面积响应值与各种糖类化合物组分浓度绘制的标准曲线如表 2 所示. 从中可见,各糖类化合物组分峰面积与浓度值呈良好线性关系,绝大多数组分相关系数大于 99.9%. 此外,空白样品中各种糖类化合物测定结果均低于检出限. 对 14 种糖类标准溶液能够实现很好的分离和测试,如图 1 所示.

表 1 主要糖类化合物的检测限与相对标准偏差

Table 1 Detection limit and relative standard deviation of main measured saccharides

糖类	检测限 /ng·mL ⁻¹	保留时间 相对偏差/%	峰面积 相对偏差/%
肌醇	0.002	0.2	1.9
赤藓糖醇	0.002	0.3	2.1
左旋葡聚糖	0.006	0.5	2.8
阿拉伯糖醇	0.002	0.4	3.3
甘露聚糖	0.004	0.5	3.5
甘露糖醇	0.005	0.5	3.2
甘露糖	0.005	0.7	4.0
半乳聚糖	0.01	0.7	3.9
葡萄糖	0.003	0.8	2.2
半乳糖	0.003	0.8	1.4
果糖	0.08	0.8	3.4

表 2 糖类化合物组分标准曲线的线性回归方程

Table 2 Linear regression equations for standard curves of saccharides					
化合物	拟合类型	点数	斜率	截距	相关系数/%
肌醇	线性	8	11.915 7	0.000 0	99.997 5
2-甲基苏糖醇	线性	8	4.429 4	0.000 0	99.948 6
2-甲基赤藓糖醇	线性	8	3.221 3	0.000 0	99.965 7
苏糖醇	线性	8	10.715 5	0.000 0	99.988 4
木糖醇	线性	8	5.596 0	0.000 0	99.922 7
左旋葡聚糖	线性	8	3.265 5	0.000 0	99.946 3
阿拉伯糖醇	线性	8	7.367 9	0.000 0	99.945 7
甘露聚糖	线性	8	4.454 9	0.000 0	99.870 3
海藻糖	线性	8	9.243 2	0.000 0	99.952 1
甘露糖醇	线性	8	6.326 5	0.000 0	99.901 9
阿拉伯聚糖	线性	8	2.196 4	0.000 0	99.617 0
半乳聚糖	线性	8	3.298 0	0.000 0	99.903 0
葡萄糖	线性	8	3.502 4	0.000 0	99.743 3
果糖	线性	8	6.377 9	0.000 0	99.900 8

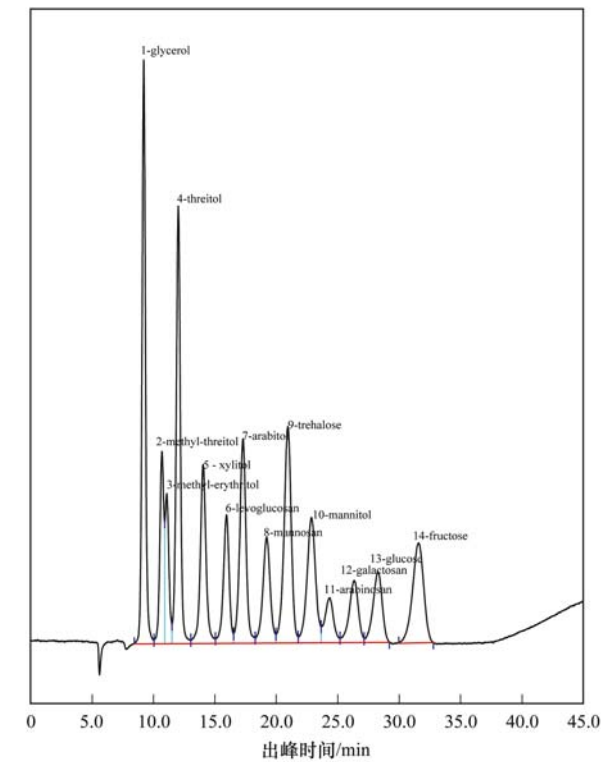


图 1 糖类化合物标准样品的色谱
Fig. 1 Chromatogram of the saccharides standard samples

2 结果与讨论

2.1 糖类化合物总浓度

北京市城区 PM_{2.5}和 PM₁₀中糖类化合物总浓度的年平均值分别为 (600.02 ± 399.13) ng·m⁻³和 (792.34 ± 510.10) ng·m⁻³,浓度范围分别是 66.12 ~ 3 389.08 ng·m⁻³和 116.52 ~ 4 302.30 ng·m⁻³,见表 3. 其中左旋葡聚糖是含量最高的糖类化合物,年

均质量浓度和浓度范围分别为 (369.21 ± 242.34) ng·m⁻³、23.65 ~ 2 428.93 ng·m⁻³和 (428.32 ± 271.09) ng·m⁻³、24.41 ~ 3 061.91 ng·m⁻³,与 Zhang 等^[16]应用 GC-MS 分析方法测得的北京城区 PM_{2.5}和 PM₁₀中左旋葡聚糖年均浓度结果相近 [(307 ± 345) ng·m⁻³和 (397 ± 432) ng·m⁻³]. 糖类化合物总浓度的月变化特征见图 2. 从中可以看出糖类化合物总浓度的高值均集中出现在秋季,而夏季的浓度水平明显低于其它季节. 但是糖类化合物总浓度在 6 月出现了短期的异常高值区. 这主要是因为 6 月是中国华北地区的麦收季节,麦收秸秆燃烧导致左旋葡聚糖等脱水糖生物质燃烧产物的浓度显著上升,从而导致了糖类化合物总浓度水平显著增加.

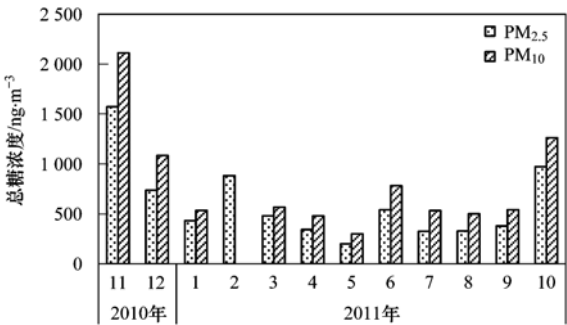


图 2 PM_{2.5}和 PM₁₀中糖类化合物总浓度的月均变化
Fig. 2 Monthly variation of total measured saccharides concentrations in PM_{2.5} and PM₁₀

北京城市地区总糖类化合物的含量均高于其它地区报道的结果,如挪威^[18]、巴西亚马逊^[19]、美国德州和缅因州^[20 21]、广州^[7]以及上海^[8],但是与香

港^[21] 秋季的总糖浓度范围相似 (70 ~ 1 316 ng·m⁻³), 见表 4. 3 大类糖类化合物在 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的年平均含量从高到低的顺序为: 脱水糖类化合物[(439 ± 308) ng·m⁻³和(498 ± 323) ng·m⁻³]、糖[(90.2 ± 77.3) ng·m⁻³和(162 ± 115) ng·m⁻³]和糖醇[(61.2 ± 47.7) ng·m⁻³和(117 ± 80.1) ng·m⁻³], 其中脱水糖类在 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 占总糖的比

例分别为 73% 和 62%. 左旋葡聚糖是最主要的一种脱水糖类化合物, 在 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中, 它占到脱水糖含量的 85% 左右, 说明生物质燃烧源对北京大气气溶胶有着较大的影响, 是颗粒物的重要来源. 丙三醇是 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中含量最丰富的糖醇化合物, 其次高的糖醇化合物为甘露糖醇. 葡萄糖是含量最高的糖类化合物, 其次为海藻糖.

表 3 北京城区 PM_{2.5}/PM₁₀ 各种糖类化合物的年平均浓度/ng·m⁻³

Table 3 Annual average concentrations of the saccharides in PM_{2.5}/PM₁₀ in Beijing/ng·m⁻³

糖类化合物 ¹⁾	PM _{2.5}	PM _{2.5} 浓度范围	PM ₁₀	PM ₁₀ 浓度范围
左旋葡聚糖	369.21 ± 242.34	23.65 ~ 2 428.93	428.32 ± 271.09	24.41 ~ 3 061.91
甘露聚糖	22.52 ± 14.51	0.00 ~ 143.3	27.43 ± 16.81	2.13 ~ 265.92
半乳聚糖	14.82 ± 10.61	0.00 ~ 226.83	19.92 ± 14.31	0.00 ~ 213.44
脱水糖	439.01 ± 308.23	23.65 ~ 2 653.31	498.09 ± 323.29	26.66 ~ 3 297.01
丙三醇	26.62 ± 21.91	0.12 ~ 185.62	41.81 ± 31.13	1.13 ~ 246.52
苏糖醇	4.13 ± 5.02	0.00 ~ 331.44	8.00 ± 6.16	0.00 ~ 58.00
木糖醇	2.01 ± 1.87	0.00 ~ 22.52	2.84 ± 2.39	0.00 ~ 67.01
2-甲基丁四醇	13.80 ± 12.23	0.00 ~ 72.53	17.54 ± 15.42	0.00 ~ 81.47
甘露糖醇	10.33 ± 9.51	0.85 ~ 95.30	31.91 ± 26.90	2.19 ~ 137.42
阿拉伯糖醇	7.44 ± 9.41	0.67 ~ 74.22	21.07 ± 20.42	0.85 ~ 133.11
肌醇	3.86 ± 2.11	0.00 ~ 18.13	5.51 ± 2.86	0.00 ~ 31.22
糖醇	61.21 ± 47.72	3.37 ~ 444.81	117.03 ± 80.14	10.32 ~ 544.74
海藻糖	22.14 ± 15.73	7.12 ~ 202.80	46.24 ± 27.52	3.09 ~ 343.60
葡萄糖	62.01 ± 58.64	4.76 ~ 399.76	95.39 ± 91.43	11.97 ~ 567.58
果糖	7.41 ± 4.73	1.92 ~ 58.12	21.73 ± 10.04	4.38 ~ 77.84
糖	90.21 ± 77.33	9.85 ~ 459.82	162.09 ± 115.23	34.71 ~ 881.93
总糖	600.02 ± 399.13	66.12 ~ 3 389.08	792.34 ± 510.10	116.52 ~ 4 302.30

1) 正体表示单体化合物, 斜体表示化合物类别

表 4 不同地区糖类化合物总质量浓度的比较

Table 4 Comparison of total measured saccharides in different regions

采样地点	类型	采样时间	颗粒物类型	浓度范围/ng·m ⁻³	文献
中国北京清华园	城区	11 月 ~ 次年 10 月	PM _{2.5} PM ₁₀	600.02 (66.12 ~ 3 389.08) 792.34 (116.52 ~ 4 302.30)	本研究
巴西亚马逊	森林	7 月	PM _{2.5}	61 (32 ~ 115)	[19]
美国德州 San Augustine	乡村	11 月 ~ 次年 7 月	PM _{2.5}	70.4 (15.4 ~ 355.1)	[20]
美国德州 Clarksville	乡村	1 ~ 7 月	PM _{2.5}	128.4 (7.5 ~ 372.2)	
美国德州 Dallas	城区	1 ~ 7 月	PM _{2.5}	52.4 (15.8 ~ 196.0)	
美国亚利桑那州 Higley	农业地区	1 ~ 4 月	PM _{2.5}	24.1 (1.1 ~ 83.0)	
中国香港大学校园	郊区	春季	PM _{2.5}	84 (38 ~ 129)	[21]
		夏季		133 (83 ~ 175)	
		秋季		375 (70 ~ 1316)	
		冬季		292 (88 ~ 683)	
美国缅因州 Howland forest	森林	5 ~ 10 月	PM _{2.5}	10 ~ 180	[22]
挪威	道路边	9 ~ 10 月	PM _{2.5}	17 ~ 134	[18]
	城市	11 ~ 12 月		10 ~ 537	
	郊区	1 ~ 6 月		14 ~ 1 085	
	乡村	1 ~ 12 月		1 ~ 43	
中国广州	城区	春季	TSP	399.7	[7]
中国上海	城区	/	PM _{2.5}	268	[8]
	郊区	/	PM _{2.5}	340	

2.2 脱水糖

脱水糖, 主要包括左旋葡聚糖以及少量的甘露

聚糖和阿拉伯聚糖. PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中脱水糖质量浓度的月均变化分别见图 3. 脱水糖集中分布在细颗

颗粒物($\text{PM}_{2.5}$)中, $\text{PM}_{2.5}$ 中的含量占到了 PM_{10} 中的85%左右.这种现象也验证了左旋葡聚糖等生物质燃烧排放的颗粒物都以细颗粒物为主^[18, 20, 23, 24].从图3中可以看出脱水糖在秋季11月浓度最高,在 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中浓度分别为 $(1\,349.42 \pm 798.80) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(1\,804.09 \pm 839.93) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$;最低脱水糖的月均浓度出现在5月,在 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中浓度分别为 $(128.93 \pm 70.15) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(161.59 \pm 102.22) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$.在 $\text{PM}_{2.5}$ 中,脱水糖最高的月平均浓度(11月)是最低月平均浓度(5月)的10.5倍, PM_{10} 中的为11.2倍.北京地区生物质燃烧的季节主要为3个阶段:麦收(6月)、秋收(9~10月)和秋季落叶(11月),本研究脱水糖浓度在这些生物质燃烧的月份均呈现了高值特征,其中以6月麦收秸秆燃烧的现象最为明显(见图3).

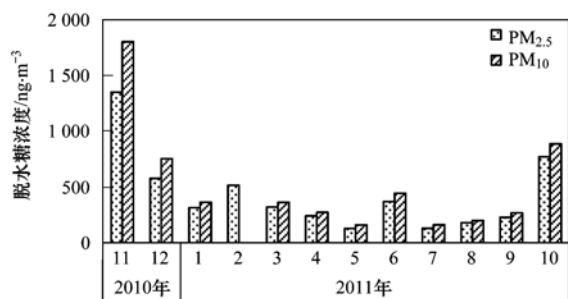


图3 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中脱水糖质量浓度的月均变化

Fig. 3 Monthly variation of anhydrosugar concentrations in $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10}

2.3 糖

糖是植物储藏、积累和运输糖分的主要形式,主要包括葡萄糖、海藻糖以及果糖,在粗、细颗粒物中均有分布. $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中糖质量浓度的月均变化见图4.从中可以看出糖在夏、秋季节高于冬、春季节.北京大气气溶胶中糖的浓度水平最高出现在7月,在 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中浓度分别为 $(129.85 \pm 91.01) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(241.36 \pm 138.76) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,最低的浓度出现在5月,在 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中浓度分别为 $(46.58 \pm 24.64) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(96.02 \pm 40.93) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$.秋季糖浓度偏高,可能与植物生长规律和农业活动相关.秋天是农作物和水果成熟的季节,农作物收割、水果采摘和农田耕作都可能对大气气溶胶中葡萄糖浓度增加产生重要的影响.相比较而言, PM_{10} 中的3种糖含量的月变化特征比 $\text{PM}_{2.5}$ 的显著, $\text{PM}_{2.5}$ 中的3种糖含量在全年不同月份基本保持在一定的浓度范围,这可能是与粗、细颗粒物中不

同的主要糖的来源相关.细颗粒物中糖主要来自土壤的再悬浮作用,而粗颗粒物在不同季节的主要来源会不同,如在夏季的植被排放,秋季的落叶腐烂、农作物收割都会对粗颗粒物中的糖产生明显的贡献作用^[25].

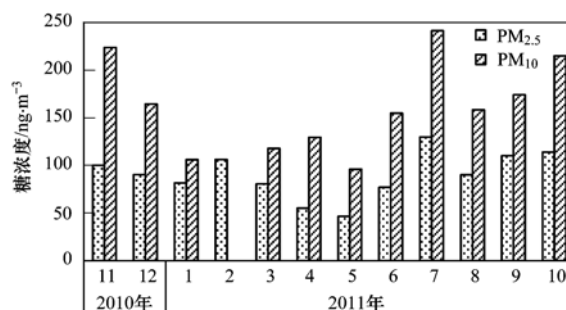


图4 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中糖质量浓度的月均变化

Fig. 4 Monthly variation of sugar concentrations in $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10}

2.4 糖醇

糖醇类化合物是由生物源一次排放的,包括甘露糖醇、阿拉伯糖醇、丙三醇、2-甲基丁四醇和少量的木糖醇、苏糖醇、肌醇等.除2-甲基丁四醇之外,其余的糖醇类化合物在粗、细颗粒物中均有分布.2-甲基丁四醇,是前体物异戊二烯的光化学反应产物,常被用作生物源二次有机气溶胶异戊二烯SOA的分子示踪物,主要分布在细颗粒物中^[8].糖醇在真菌体内起存储或转移糖类化合物和调节渗透压的作用,尤其以甘露糖醇和阿拉伯糖醇为主,是真菌干重的主要成分,常被看作是真菌气溶胶的分子示踪物^[16, 25~29]. $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中糖醇质量浓度的月均变化见图5.从中可以看出糖醇的浓度水平在夏、秋季节明显高于冬、春季节.6~12月的糖醇类化合物总量的浓度均保持在较高的范围,其中最高月份出现11月,在 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中的浓度分别为 $(124.74 \pm 89.81) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(221.74 \pm 144.20) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$

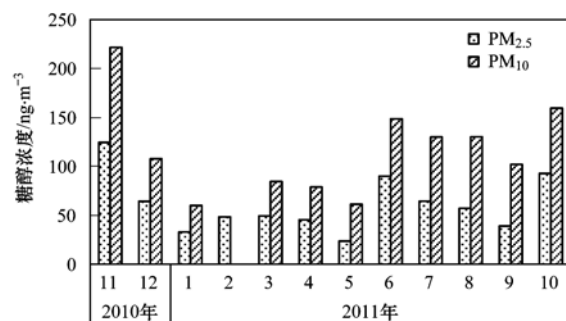


图5 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中糖醇质量浓度的月均变化

Fig. 5 Monthly variation of sugar-alcohol concentrations in $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10}

$\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$; 最低浓度出现在5月,在 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 中的浓度分别为 $(23.79 \pm 17.19) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(61.46 \pm 42.86) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$.

2.5 糖类化合物的来源分析

大气气溶胶中糖类化合物组分的来源十分广泛:既包括城、郊裸露地表土壤的悬浮,沙尘传输活动,也包括动、植物碎屑以及农田翻耕活动^[20, 30, 31];此外,真菌、花粉以及生物质燃烧等均对城市颗粒物中的糖类化合物组分均会产生显著贡献^[28, 30]. Fu等^[30]应用PMF源解析模型研究发现,韩国济州岛大气气溶胶中的糖类化合物主要分为5类,包括生物质燃烧、真菌孢子、沙尘、花粉和果糖/葡萄糖富集源. 本研究应用PMF源解析模型对北京城区采集的 PM_{10} 中糖类化合物的进行来源分析,共274个样品. 在PMF模型分析中,确定各种组分的检测限,设定3~7因子分别运行PMF,每种因子各计算30次. 根据PMF模型分析结果的稳定性^[28],得出6因子是北京大气气溶胶中糖类化合物最优化的来源解析,结果如图6所示. 从中可以看出左旋葡聚糖和甘露聚糖主要集中在因子1中,因

子1包含左旋葡聚糖和甘露聚糖的量分别占到了其总量82.24%和92.61%. 因为这两种化合物主要来自与生物质中纤维素和半纤维素的高温燃烧产物,说明因子1主要来自于生物质燃烧排放源的贡献. 因子2是以2-甲基丁四醇为特征,2-甲基丁四醇占到了其总量90.71%. 2-甲基丁四醇,是全球排放量最大的生物源VOC——异戊二烯光化学氧化产物,所以因子2主要来自于异戊二烯SOA排放源的贡献. 甘露糖醇和阿拉伯糖醇主要集中在因子3中,分别占到了因子3总量80.90%和74.81%. 这两种糖醇为真菌气溶胶的分子示踪物,说明因子3主要来源于真菌气溶胶的贡献. 海藻糖主要集中在因子4(77.09%),而海藻糖广泛存在于真菌、海藻以及无脊椎动物中,常被作为土壤再悬浮和沙尘传输的重要分子示踪物用于大气气溶胶的源解析^[1]. 因此说明因子4主要来源于土壤再悬浮和沙尘的贡献. 因子5主要以丙三醇为特征,因子5包含丙三醇的量占到了其总量的93.57%. 丙三醇在自然环境中的来源非常广泛,微生物、植物以及生物燃烧都会产生丙三醇,但是主要来源于植物,说明因子5

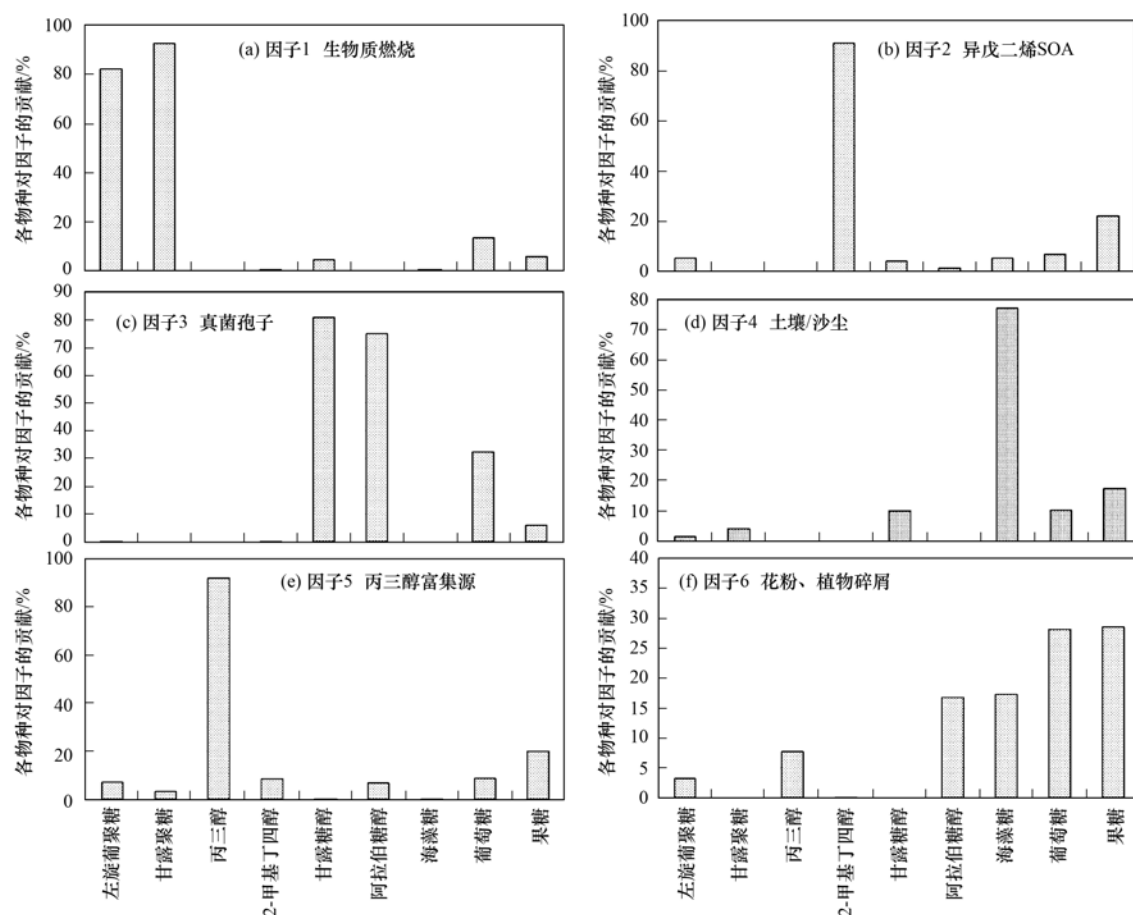


图6 北京大气气溶胶中糖类化合物的来源解析

Fig. 6 Source apportionments of saccharides in the aerosol in Beijing

来源于一些丙三醇富集的排放源,如植被等.葡萄糖和果糖主要集中在因子6中,因子6中葡萄糖和果糖分别占到总量的28.04%和28.44%.葡萄糖和果糖都是植物体内最常见糖类化合物,广泛地存在于植物的果实、种子、叶、花、根中. Fu 等^[30]发现果糖是多种花粉中含量最高的化合物,并将其作为花粉的分子示踪物,因此说明因子6主要来自于花粉和植物碎屑的排放源.而且因子3中葡萄糖占其总量的32.20%,说明真菌气溶胶对大气气溶胶中糖产生一定的贡献,这与 Elbert 等^[29]对亚马逊真菌气溶胶的研究结果一致.

3 结论

(1)北京市大气气溶胶中检出了14种糖类化合物,包括:3种脱水糖,即左旋葡聚糖、甘露聚糖和半乳聚糖;3种糖,即葡萄糖、果糖和海藻糖;8种糖醇,即甘露糖醇、阿拉伯糖醇、2-甲基丁四醇(2-甲基苏糖醇和2-甲基赤藓糖醇)、丙三醇、苏糖醇、木糖醇和肌醇.

(2)北京城区(清华园采样点)PM_{2.5}和PM₁₀中糖类化合物总浓度的范围分别为66.12~3388.08 ng·m⁻³和116.52~4302.30 ng·m⁻³,年均值为分别为(600.02±399.13) ng·m⁻³和(792.34±510.10) ng·m⁻³.

(3)北京市大气气溶胶中脱水糖、糖和糖醇三类化合物存在明显季节变化特征:来源于生物质燃烧的脱水糖,秋冬季节明显高于春夏;而来源于生物源排放的糖和糖醇,冬季明显低于其他季节.

(4)应用PMF源解析模型对北京城区全年PM₁₀中糖类化合物进行来源分析.结果表明,北京大气气溶胶中的糖类化合物可以分为6种来源,包括生物质燃烧、异戊二烯SOA、沙尘、真菌孢子、花粉及丙三醇富集源.

致谢:本实验在中国台湾“清华大学”Guenter Engling教授的实验室完成,感谢实验室工作人员对仪器分析使用方面提供的帮助.

参考文献:

- [1] Simoneit B, Elias V O, Kobayashi M, *et al.* Sugars-dominant water-soluble organic compounds in soils and characterization as tracers in atmospheric particulate matter [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(22): 5939-5949.
- [2] Després V R, Huffman J A, Borrows S, *et al.* Primary biological aerosol particles in the atmosphere: a review [J]. *Tellus B*, 2012, **64**: 15598, doi: 10.3402/tellusb.v64i0.15598.
- [3] He K B, Yang F M, Ma Y L, *et al.* The characteristics of PM_{2.5} in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(29): 4959-4970.
- [4] Wang W, Wu M H, Li L, *et al.* Polar organic tracers in PM_{2.5} aerosols from forests in eastern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, **8**(24): 7507-7518.
- [5] Fu P Q, Kawamura K, Chen J, *et al.* Diurnal variations of organic molecular tracers and stable carbon isotopic compositions in atmospheric aerosols over Mt. Tai in the North China Plain: an influence of biomass burning [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(4): 8359-8375.
- [6] Zhang T, Claeys M, Cachier H, *et al.* Identification and estimation of the biomass burning contribution to Beijing aerosol using levoglucosan as a molecular marker [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(29): 7013-7021.
- [7] 马社霞,王真真,毕新慧,等.广州大气气溶胶中糖类化合物的组成及主要来源[J].*科学通报*, 2009, **54**(17): 2562-2567.
- [8] 李曼,仲勉,荆亮,等.上海PM_{2.5}中糖类化合物的组成及来源分析[J].*上海大学学报(自然科学版)*, 2013, **19**(4): 387-392.
- [9] 王静,王晴,向文胜.色谱法在糖类化合物分析中的应用[J].*分析化学*, 2001, **29**(2): 222-227.
- [10] 潘媛媛,梁立娜,蔡亚岐,等.高效阴离子交换色谱-脉冲安培检测法分析啤酒和麦汁中的糖[J].*色谱*, 2008, **26**(5): 626-630.
- [11] Engling G, Carrico C M, Kreidenweis S M, *et al.* Determination of levoglucosan in biomass combustion aerosol by high-performance anion-exchange chromatography with pulsed amperometric detection [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(Supplement 2): 299-311.
- [12] Liang L L, Engling G, Duan F K, *et al.* Characteristics of 2-Methyltetrols in Ambient Aerosol in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **59**: 376-381.
- [13] Burshtein N, Lang-Yona N, Rudich Y. Ergosterol, arabitol and mannitol as tracers for biogenic aerosols in the eastern Mediterranean [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(2): 829-839.
- [14] Ho F K, Engling G, Ho S S H, *et al.* Seasonal variations of anhydrosugars in PM_{2.5} in the Pearl River Delta Region, China [J]. *Tellus B*, 2014, **66**: 22577, doi: 10.3402/tellusb.v66.22577.
- [15] Yang Y H, Chan C Y, Tao J, *et al.* Observation of elevated fungal tracers due to biomass burning in the Sichuan Basin at Chengdu City, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, **431**: 68-77.
- [16] Zhang T, Engling G, Chan C Y, *et al.* Contribution of fungal spores to particulate matter in a tropical rainforest [J]. *Environmental Research Letters*, 2010, **5**(2): 024010, doi: 10.1088/1748-9326/5/2/024010.
- [17] Iinuma Y, Engling G, Puxbaum H, *et al.* A highly resolved anion-exchange chromatographic method for determination of saccharidic tracers for biomass combustion and primary bio-

- particles in atmospheric aerosol [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(6): 1367-1371.
- [18] Yttri K E, Dye C, Kiss G. Ambient aerosol concentrations of sugars and sugar-alcohols at four different sites in Norway [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2007, **7**(16): 4267-4269.
- [19] Graham B, Guyon P, Taylor P E, *et al.* Organic compounds present in the natural Amazonian aerosol: characterization by gas chromatography-mass spectrometry [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2003, **108** (D24): 4766, doi: 10.1029/2003JD003990.
- [20] Jia Y L, Clements A L, Fraser M P. Saccharide composition in atmospheric particulate matter in the southwest US and estimates of source contributions [J]. *Journal of Aerosol Science*, 2010, **41**(1): 62-73.
- [21] Wan E C H, Yu J Z. Analysis of sugars and sugar polyols in atmospheric aerosols by chloride attachment in liquid chromatography/negative ion electrospray mass spectrometry [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41** (7): 2459-2466.
- [22] Medeiros P M, Conte M H, Weber J C, *et al.* Sugars as source indicators of biogenic organic carbon in aerosols collected above the Howland Experimental Forest, Maine [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(9): 1694-1705.
- [23] Simoneit B R T, Schauer J J, Nolte C G, *et al.* Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(2): 173-182.
- [24] Fuzzi S, Decesari S, Facchini M C, *et al.* Overview of the inorganic and organic composition of size-segregated aerosol in Rondônia, Brazil, from the biomass-burning period to the onset of the wet season [J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2007, **112** (D1): D01201, doi: 10.1029/2005JD006741.
- [25] Liang L L, Engling G, He K B, *et al.* Evaluation of fungal spore characteristics in Beijing, China, based on molecular tracer measurements [J]. *Environmental Research Letter*, 2013, **8** (1): 014005, doi: 10.1088/1748-9326/8/1/014005.
- [26] Claeys M, Graham B, Vas G, *et al.* Formation of secondary organic aerosols through photooxidation of isoprene [J]. *Science*, 2004, **303**(5661): 1173-1176.
- [27] Bauer H, Claeys M, Vermeylen R, *et al.* Arabitol and mannitol as tracers for the quantification of airborne fungal spores [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(3): 588-593.
- [28] Bauer H, Schueller E, Weinke G, *et al.* Significant contributions of fungal spores to the organic carbon and to the aerosol mass balance of the urban atmospheric aerosol [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(22): 5542-5549.
- [29] Elbert W, Taylor P E, Andreae M O, *et al.* Contribution of fungi to primary biogenic aerosols in the atmosphere: wet and dry discharged spores, carbohydrates, and inorganic ions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2007, **7** (17): 4569-4588.
- [30] Fu P Q, Kawamura K, Kobayashi M, *et al.* Seasonal variations of sugars in atmospheric particulate matter from Gosan, Jeju Island: Significant contributions of airborne pollen and Asian dust in spring [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **55**: 234-239.
- [31] 梁林林. 北京生物源气溶胶理化特征及其对有机气溶胶贡献的研究[D]. 北京: 清华大学, 2014.
- [32] Paatero P, Tapper U. Positive matrix factorization: a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values [J]. *Environmetrics*, 1994, **5**(2): 111-126.

CONTENTS

Composition and Source Apportionments of Saccharides in Atmospheric Particulate Matter in Beijing	LIANG Lin-lin, Guenter Engling, DUAN Feng-kui, <i>et al.</i> (3935)
Comparing Cell Toxicity of <i>Schizosaccharomyces pombe</i> Exposure to Airborne PM _{2.5} from Beijing and Inert Particle SiO ₂	LIU Meng-jiao, HUANG Yi, WEN Hang, <i>et al.</i> (3943)
Analysis on Regional Characteristics of Air Quality Index and Weather Situation in Beijing and Its Surrounding Cities During the APEC ...	GAO Qing-xian, LIU Jun-rong, WANG Ning, <i>et al.</i> (3952)
Analysis About Spatial and Temporal Distribution of SO ₂ and An Ambient SO ₂ Pollution Process in Beijing During 2000-2014	CHENG Nian-liang, ZHANG Da-wei, LI Yun-ting, <i>et al.</i> (3961)
Characteristics and Formation Mechanism of a Multi-Day Haze in the Winter of Shijiazhuang Using a Single Particle Aerosol Mass Spectrometer(SPAMS)	 ZHOU Jing-bo, REN Yi-bin, HONG Gang, <i>et al.</i> (3972)
Modeling Study of A Typical Summer Ozone Pollution Event over Yangtze River Delta	ZHANG Liang, ZHU Bin, GAO Jin-hui, <i>et al.</i> (3981)
Distribution of Regional Pollution and the Characteristics of Vertical Wind Field in the Pearl River Delta	LIU Jian, WU Dui, FAN Shao-jia (3989)
Distribution Characteristics of Urea and Constitution of Dissolved Nitrogen in the Bohai Sea and the Huanghai Sea in Spring	LI Zhi-lin, SHI Xiao-yong, ZHANG Chuang-song (3999)
Relationship Between Agricultural Land and Water Quality of Inflow River in Erhai Lake Basin	PANG Yan, XIANG Song, CHU Zhao-sheng, <i>et al.</i> (4005)
Input Characteristics and Pollution Assessment of Nutrients Pollution in the Primary Pollution Source of the Daliao River	MA Ying-qun, ZHANG Lei, ZHAO Yan-min, <i>et al.</i> (4013)
Temporal and Spatial Distribution of Nutrients in Daning River Sediments and Their Correlations with Chlorophyll in the Three Gorges Reservoir Area	 ZHANG Yong-sheng, LI Hai-ying, REN Jia-ying, <i>et al.</i> (4021)
Summer Greenhouse Gases Exchange Flux across Water-air Interface in Three Water Reservoirs Located in Different Geologic Setting in Guangxi, China	 LI Jian-hong, PU Jun-bing, SUN Ping-an, <i>et al.</i> (4032)
Distribution of Redox Zone at Different Water Layers in the Presence of Periphyton and the Responsible Microorganisms	WANG Feng-wu, LIU Wei, WAN Juan-juan, <i>et al.</i> (4043)
Distribution Characteristics and Source of Fluoride in Groundwater in Lower Plain Area of North China Plain: A Case Study in Nanpi County	 KONG Xiao-le, WANG Shi-qin, ZHAO Huan, <i>et al.</i> (4051)
Distribution Characteristics of Fluoroquinolones Antibiotics in Surface Water and Groundwater from Typical Areas in A City	CUI Ya-feng, HE Jiang-tao, SU Shi-hui, <i>et al.</i> (4060)
Distribution of Aerobic Ammonia-Oxidizing Microorganisms in Sediments from Adjacent Waters of Rushan Bay	HE Hui, ZHEN Yu, MI Tie-zhu, <i>et al.</i> (4068)
Sources, Migration and Conversion of Dissolved Sterols in Qingmuguan Underground River	LIANG Zuo-bing, SHEN Li-cheng, SUN Yu-chuan, <i>et al.</i> (4074)
Water-Sediment Partition of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Karst Underground River	LAN Jia-cheng, SUN Yu-chuan, XIAO Shi-zhen (4081)
Variation Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Karst Subterranean River During Rainfall Events	JIANG Ze-li, SUN Yu-chuan, WANG Zun-bo, <i>et al.</i> (4088)
Distribution and Transportation Characteristics of Heavy Metals in Nanshan Laolongdong Subterranean River System and Its Capacity of Self-Purification in Chongqing	 REN Kun, LIANG Zuo-bing, YU Zheng-liang, <i>et al.</i> (4095)
Distribution of Mercury in Plants at Water-Level-Fluctuating Zone in the Three Gorges Reservoir	LIANG Li, WANG Yong-min, LI Xian-yuan, <i>et al.</i> (4103)
Development of Sediment Micro-Interface Under Physical and <i>Chironomus plumosus</i> Combination Disturbance	WANG Ren, LI Da-peng, HUANG Yong, <i>et al.</i> (4112)
Norfloxacin Solution Degradation Under Ultrasound, Potassium Persulfate Collaborative System	WEI Hong, SHI Jing-zhuan, LI Jia-lin, <i>et al.</i> (4121)
Degradation of Acid Orange 7 with Persulfate Activated by Silver Loaded Granular Activated Carbon	WANG Zhong-ming, HUANG Tian-yin, CHEN Jia-bin, <i>et al.</i> (4127)
Kinetics and Reactive Species Analysis of Dimetridazole Degradation by TiO ₂	CHEN Dong-mei, YU Ze-bin, SUN Lei, <i>et al.</i> (4135)
Performance and Mechanism of Ferric Tannate in the Removal of Inorganic Nitrogen from Wastewater	ZHANG Rui-na, LI Lin, LIU Jun-xin (4141)
Performance of an Intermittent Aeration Membrane Bioreactor for Removal of Veterinary Antibiotics from Piggery Wastewater	DING Jia-li, LIU Rui, ZHENG Wei, <i>et al.</i> (4148)
Advanced Treatment of Incineration Leachate with O ₃ -BAC and Double O ₃ -BAC	DU An-jing, FAN Ju-hong, LIU Rui, <i>et al.</i> (4154)
Effects of Hydraulic Retention Time and Dissolved Oxygen on a CANON Reactor with Haydite as Carrier	WANG Hui-fang, FU Kun-ming, ZUO Zao-rong, <i>et al.</i> (4161)
Inhibiting Form of Ammonium to AOB and Inhibiting Rule	CUI Jian-hong, LI Xiang, HUANG Yong, <i>et al.</i> (4168)
Nitrogen Removal Using ANAMMOX and Denitrification for Treatment of Municipal Sewage	ZHANG Shi-ying, WU Peng, SONG Yin-ling, <i>et al.</i> (4174)
Rapid Start-up of Simultaneous Nitrification and Denitrification Coupled Phosphorus Removal Process and Its Performing Characteristics	LENG Lu, XIN Xin, LU Hang, <i>et al.</i> (4180)
Effect of HCO ₃ ⁻ on Nitrogen Removal Efficiency in Partial Nitritation-ANAMMOX Process	LI Xiang, CHENG Zong-heng, HUANG Yong, <i>et al.</i> (4189)
Research on Cultivation and Stability of Nitritation Granular Sludge in Integrated ABR-CSTR Reactor	WU Kai-cheng, WU Peng, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (4195)
Influence of the Application of Activated Persulfate on Municipal Sludge Conditioning	XU Xin, PU Wen-hong, SHI Ya-fei, <i>et al.</i> (4202)
Influence of Temperature on the Anaerobic Packed Bed Reactor Performance and Methanogenic Community	XIE Hai-ying, WANG Xin, LI Mu-yuan, <i>et al.</i> (4208)
Research on the Screening Method of Soil Remediation Technology at Contaminated Sites and Its Application	BAI Li-ping, LUO Yun, LIU Li, <i>et al.</i> (4218)
Comprehensive Risk Assessment of Soil Heavy Metals Based on Monte Carlo Simulation and Case Study	YANG Yang, DAI Dan, CAI Yi-min, <i>et al.</i> (4225)
Heavy Metals Pollution in Topsoil from Dagang Industry Area and Its Ecological Risk Assessment	ZHANG Qian, CHEN Zong-juan, PENG Chang-sheng, <i>et al.</i> (4232)
Effects of Land Use Type on Soil Microbial Biomass Carbon and Nitrogen in Water-Stable Aggregates in Jinyun Mountain	LI Zeng-quan, JIANG Chang-sheng, HAO Qing-ju (4241)
Influence of Different Straws Returning with Landfill on Soil Microbial Community Structure Under Dry and Water Farming	LAN Mu-ling, GAO Ming (4252)
Carbon Source Utilization Characteristics of Soil Microbial Community for Apple Orchard with Interplanting Herbage	DU Yi-fei, FANG Kai-kai, WANG Zhi-kang, <i>et al.</i> (4260)
Effects of Different Kinds of Organic Materials on Soil Heavy Metal Phytoremediation Efficiency by <i>Sedum alfredii</i> Hance	YAO Gui-hua, XU Hai-zhou, ZHU Lin-gang, <i>et al.</i> (4268)
<i>In-situ</i> Study on Effects of Combined Amendment on Translocation Control of Pb and Cd in Soil-Vegetable System	ZHU Wei, LIU Li, WU Yan-ming, <i>et al.</i> (4277)
Effects of Rice Cultivar and Typical Soil Improvement Measures on the Uptake of Cd in Rice Grains	WANG Mei-e, PENG Chi, CHEN Wei-ping (4283)
Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of PAHs in Water and Fishes from Daqing Lakes	WANG Xiao-di, ZANG Shu-ying, ZHANG Yu-hong, <i>et al.</i> (4291)
Depth Profiles of Methane Oxidation Kinetics and the Related Methanotrophic Community in a Simulated Landfill Cover	XING Zhi-lin, ZHAO Tian-tao, GAO Yan-hui, <i>et al.</i> (4302)
Enhanced Performance of Rolled Membrane Electrode Assembly by Adding Cation Exchange Resin to Anode in Microbial Fuel Cells	MEI Zhuo, ZHANG Zhe, WANG Xin (4311)
Development of a Monoclonal Antibody-Based Sensor for Environmental Pyrene and Benzo(a)pyrene Detection	LI Xin, QIAO Yan, ZHONG Guo-zhen (4319)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2015年11月15日 第36卷 第11期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 11 Nov. 15, 2015

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧 阳 自 远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行