

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第33卷 第9期

Vol.33 No.9

**2012**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

我国4个WMO/GAW本底站大气CH<sub>4</sub>浓度及变化特征 ..... 方双喜,周凌晔,许林,姚波,刘立新,夏玲君,王红阳(2917)

我国东北地区大气降水稳定同位素特征及其水汽来源 ..... 李小飞,张明军,马潜,李亚举,王圣杰,汪宝龙(2924)

2010年广州亚运期间空气质量与污染气象条件分析 ..... 李婷苑,邓雪娇,范绍佳,吴兑,李菲,邓涛,谭浩波,蒋德海(2932)

厦门市冬春季灰霾期间大气PM<sub>10</sub>中多环芳烃的污染特征及来源分析 ..... 钱冉冉,闫景明,吴水平,王新红(2939)

气溶胶OCEC切割点确定方法改进及应用 ..... 王莉华,董华斌,闫才青,曾立民,郑玫,张延君,刘久萌,Weber R J(2946)

松花江上游夹皮沟金矿土壤与大气汞污染特征 ..... 张刚,王宁,王媛,刘特,艾建超(2953)

河北农居环境颗粒态汞污染特征及健康评估研究 ..... 赵亚娟,龚巍巍,栾胜基(2960)

印刷电路板(PCB)厂挥发性有机物(VOCs)排放指示物筛选 ..... 马英歌(2967)

烹调油烟中挥发性有机物的排放初探 ..... 何万清,田刚,聂磊,曲松,李靖,周爱佳(2973)

生物滴滤塔降解甲苯废气长期运行生物膜相特性研究 ..... 胡俊,郑江玲,吴越新,张丽丽,陈建孟(2979)

分期布液生物滴滤床净化H<sub>2</sub>S废气性能研究 ..... 刘春敬,李坚,刘佳,彭淑婧,李超,陈英,何洪(2987)

粉煤灰综合利用过程中汞的二次释放规律研究 ..... 孟阳,王书肖(2993)

太湖、巢湖水体总悬浮物浓度半分析反演模型构建及其适用性评价 ..... 刘忠华,李云梅,檀静,郭宇龙,周莉,刘阁(3000)

巢湖水质与流域农业投入的关联性研究 ..... 张燕,高翔,张洪(3009)

巢湖十五里河水花生生长区沉积物及间隙水中营养盐的基本特性 ..... 李如忠,李峰,周爱佳(3014)

巢湖沉积物中磷蓄积时空变化及人为污染定量评价 ..... 刘恩峰,杜臣昌,羊向东,沈吉(3024)

巢湖周边表土中有机质、全氮和全磷空间分布及其相关性 ..... 陈书琴,储昭升,胡社荣,刘俊,王长春,王曼(3031)

丹江口水库典型入库支流氮磷动态特征研究 ..... 雷沛,张洪,单保庆(3038)

水温分层对三峡水库香溪河库湾春季水华的影响 ..... 刘流,刘德富,肖尚斌,孔松,陈媛媛,方小凤(3046)

平水期和丰水期殷村港污染物浓度时空变异比较研究 ..... 杨晓英,罗兴章,郑正,方淑波(3051)

江苏西部湖泊沉积物营养盐赋存形态和释放潜力差异性分析 ..... 刘涛,胡志新,杨柳燕,肖琳,席北斗,许其功(3057)

太湖西岸湖滨带沉积物氮磷有机质分布及评价 ..... 甘树,卢少勇,秦普丰,金相灿,焦伟,王佩(3064)

南四湖流域种植业面源污染氮磷源解析研究 ..... 刘静,路风,杨延钊,徐娜,王田妮(3070)

珠江水体中有机物分布、组成及与消毒副产物生成的关系 ..... 何洪威,周达诚,王保强,梁艳红(3076)

东江流域典型乡镇饮用水源地重金属污染健康风险评价 ..... 王若师,许秋瑾,张娴,魏群山,颜昌宙(3083)

深圳茅洲河表层沉积物卤代多环芳烃污染研究 ..... 孙建林,倪宏刚,丁超,曾辉(3089)

福建罗源湾潮间带沉积物重金属含量空间分布及其环境质量影响 ..... 高文华,杜永芬,王丹丹,高抒(3097)

渤海湾大型底栖生物群落结构变化及原因探讨 ..... 蔡文倩,刘录三,乔飞,林尚璇,周娟(3104)

地下水污染防治区划体系构建研究 ..... 王俊杰,何江涛,陆燕,刘丽雅,张小亮(3110)

北京市平原区地下水污染防治区划不确定性分析 ..... 陆燕,何江涛,王俊杰,刘丽雅,张小亮(3117)

川东平行岭谷区典型岩溶含水系统中NO<sub>3</sub><sup>-</sup>的存储和运移 ..... 杨平恒,袁道先,任幼蓉,谢世友,贺秋芳,胡晓风(3124)

改性活性炭对水中PFOS的吸附去除研究 ..... 董锡臻,石宝友,解岳,王东升(3132)

水溶液中臭氧和溴离子的反应研究 ..... 俞潇婷,张家辉,潘循哲,张仁熙,侯惠奇(3139)

HPSEC-UV-TOC联用技术测定有机物相对分子质量分布 ..... 张晗,董秉直(3144)

不同有机基质诱发的水体黑臭及主要致臭物(VOSC<sub>s</sub>)产生机制研究 ..... 卢信,冯紫艳,商景阁,范成新,邓建才(3152)

不同pH下纳米铁镍颗粒对生物降解苯酚的影响 ..... 况焯,周琰,王清萍,陈祖亮(3160)

多级微氧生物流化床预处理高浓度丙烯酸废水 ..... 李莎,郑盛之,宋玉栋,周岳溪,朱长军,刘淑玲,潘玲,蒲文晶(3167)

三级生物膜深度处理腈纶废水生化出水中的脱氮研究 ..... 徐少阳,蒋进元,周岳溪,崔俊涛,段妮妮(3172)

改性花生壳对水中镉的动态吸附研究 ..... 龙腾,易筱筠,党志(3177)

硫氰酸根在粒状镁铝复合氧化物上的吸附性能 ..... 王秀娟,王海增,孙宝维,韩文军(3182)

海水生物滤器氨氮沿程转化规律模型 ..... 罗荣强,侯沙沙,沈加正,陈珠,刘鹰(3189)

营养物质缺乏引起的好氧颗粒污泥膨胀及其恢复 ..... 张著,高大文,袁向娟,勾倩倩(3197)

生物表面活性剂强化污泥水解的研究 ..... 易欣,罗琨,杨麒,李小明,邓伟光,张植平(3202)

厌氧氨氧化菌的富集培养与分子鉴定 ..... 刘冬英,邱艳玲,袁宪正,师晓爽,郭荣波(3208)

阿特拉津降解菌株的分离、鉴定及降解特性研究 ..... 李绍峰,朱静,李铁晶(3214)

农业废物堆肥中高产漆酶新菌株的分离鉴定及酶学性质研究 ..... 任秀娟,范长征,鲁伦慧,王聪,曾光明(3220)

糖蜜酒精废水脱色微生物的筛选及鉴定 ..... 李必金,刘幽燕,贺锴,滕芳明,何熙璞,李青云(3228)

餐厨垃圾乳酸发酵过程中的微生物多样性分析 ..... 刘建国,汪群慧,王爽,孙晓红,仇天雷,李焕(3236)

共价功能化对单壁碳纳米管产生DNA损伤和活性氧的影响研究 ..... 吴仁人,陶雪琴,党志,李开明,蔡美芳(3241)

*Geobacter sulfurreducens*对汞的甲基化及其影响因素研究 ..... 邹嫣,司友斌,颜雪,陈艳(3247)

单一与复合胁迫下油菜对镉、铅的吸收效应 ..... 武文飞,南忠仁,王胜利,赵转军,周婷(3253)

金铜矿下游农户家养番鸭体内重金属分布特征及其评价 ..... 杭小帅,梁斌,王文林,王霞,李维新(3261)

环境激素氧氟菊酯对萼花臂尾轮虫繁殖的影响 ..... 董学兴,杨家新,吕林兰,赵卫红,於叶兵(3266)

地聚物固化生活垃圾焚烧飞灰固化体抗氧化硫杆菌腐蚀性能的研究 ..... 金漫彤,孙鑫,董海丽,金赞芳(3272)

焚烧飞灰高温过程中重金属的挥发及其氯化特征 ..... 刘敬勇,孙水裕(3279)

城市废弃物处理温室气体排放研究:以厦门市为例 ..... 于洋,崔胜辉,林剑艺,李飞(3288)

NPEOs及其代谢产物在城市污水处理厂中的归趋分析 ..... 连静,刘俊新(3295)

《环境科学》征订启事(3037) 《环境科学》征稿简则(3151) 信息(2999,3030,3096,3227)

# 深圳茅洲河表层沉积物卤代多环芳烃污染研究

孙建林<sup>1</sup>, 倪宏刚<sup>1</sup>, 丁超<sup>1</sup>, 曾辉<sup>1,2\*</sup>

(1. 北京大学深圳研究生院城市规划与设计学院, 深圳 518055; 2. 北京大学城市与环境学院生态学系, 北京 100871)

**摘要:** 利用 GC-MS 方法分析了卤代多环芳烃 (halogenated polycyclic aromatic hydrocarbons, HPAHs) 在深圳茅洲河流域表层沉积物中的含量水平以及空间分布特征. 所关注的 3 种氯代多环芳烃 (chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons, ClPAHs) 和 6 种溴代多环芳烃 (brominated polycyclic aromatic hydrocarbons, BrPAHs) 的含量范围分别是 3.00 ~ 301 ng·g<sup>-1</sup> 和 7.52 ~ 285 ng·g<sup>-1</sup>. 表层沉积物中 HPAHs 的主要污染源包括垃圾焚烧、化石燃料的燃烧、汽车尾气以及农作物秸秆焚烧, 它们所占的比例分别是 40%、20.5%、11.9% 和 11.7%. 此外, 表层沉积物中 ClPAHs 和 BrPAHs 的毒性当量 (toxic equivalency quotients, TEQs) 范围分别是 7.95 ~ 38.1 pg·g<sup>-1</sup> 和 38.1 ~ 105 pg·g<sup>-1</sup>. 研究发现, HPAHs 的含量与采样点周边土地利用类型有关. 随着工业用地密度的增大, 表层沉积物中 HPAHs 的含量呈现出一个先增后减的趋势; 而表层沉积物中 HPAHs 的含量与农业用地密度呈反比关系.

**关键词:** 卤代多环芳烃; 表层沉积物; 来源解析; 土地利用类型; 深圳市

中图分类号: X522 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2012)09-3089-08

## Halogenated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Sediments of Maozhou River, Shenzhen

SUN Jian-lin<sup>1</sup>, NI Hong-gang<sup>1</sup>, DING Chao<sup>1</sup>, ZENG Hui<sup>1,2</sup>

(1. School of Urban Planning and Design, Shenzhen Graduate School, Peking University, Shenzhen 518055, China; 2. Department of Ecology, College of Urban and Environmental Sciences, Peking University, Beijing 100871, China)

**Abstract:** Surface sediments collected from the Maozhou River watershed in Shenzhen were analyzed for the concentration levels and spatial distribution characteristics of halogenated polycyclic aromatic hydrocarbons (HPAHs) using GC-MS. Total concentrations of three chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons (ClPAHs) and six brominated polycyclic aromatic hydrocarbons (BrPAHs) of concern ranged from 3.00 to 301 ng·g<sup>-1</sup> and 7.52 to 285 ng·g<sup>-1</sup>, respectively. Source appointments indicated that the HPAHs in these surface sediments were mainly derived from waste incineration, fossil fuel combustion, vehicle emission, and burning of crop straw, accounting for 40%, 20.5%, 11.9%, and 11.7% of the total loading, respectively. Additionally, the toxic equivalency quotients (TEQ) of total ClPAHs and BrPAHs ranged from 7.95 to 38.1 pg·g<sup>-1</sup> and 38.1 to 105 pg·g<sup>-1</sup> respectively. Finally, the relationships between the HPAHs levels and different land use types were examined. Results indicated that the levels of HPAHs in surface sediments showed a decreasing trend after the first increase to the peak with the density of industrial land, but inversely proportional to the density of agricultural land.

**Key words:** halogenated polycyclic aromatic hydrocarbons (HPAHs); surface sediment; source identification; land use types; Shenzhen

卤代多环芳烃 (halogenated polycyclic aromatic hydrocarbons, HPAHs) 具有类似二噁英的生物毒性<sup>[1,2]</sup>, 已经开始引起环境研究者的关注. HPAHs 是由氯原子或溴原子取代 PAHs 碳骨架上的氢原子而形成的一类新兴有机污染物<sup>[3]</sup>, 包括氯代多环芳烃 (chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons, ClPAHs) 和溴代多环芳烃 (brominated polycyclic aromatic hydrocarbons, BrPAHs). ClPAHs 在大气、土壤、飞灰、自来水和沉积物中均被检测到, 大量研究表明 ClPAHs 已经成为一类环境中广泛存在的污染物<sup>[2~9]</sup>. 然而对于 BrPAHs 的研究却相对较少, 已有研究主要集中于 BrPAHs 在城市大气颗粒物中的环境行为<sup>[2]</sup>. 此外, 在垃圾焚烧产生的飞灰以及汽车尾气中也发现了 BrPAHs<sup>[5,6]</sup>. 虽然垃圾焚烧

和汽车尾气排放被认为是 HPAHs 的主要来源<sup>[6]</sup>, 但对于该类物质的形成机制和污染来源, 目前尚无定论. 有研究认为城市自来水生产供应过程中使用的氯气消毒工艺可以产生 ClPAHs<sup>[4]</sup>. 也有研究表明煤燃烧过程中可以产生 ClPAHs<sup>[10]</sup>. 还有研究表明造纸厂在漂白硬木和软木牛皮纸浆时也可以产生 ClPAHs<sup>[11,12]</sup>. 迄今为止, 关于 HPAHs 的报道主要是国外学者的研究<sup>[2,6,8,13~22]</sup>, 国内对于 HPAHs 的研究工作较少<sup>[9,23~28]</sup>, 特别是关于水生

收稿日期: 2011-11-28; 修订日期: 2012-02-10

基金项目: 有机地球化学国家重点实验室开放基金课题项目 (OGL-200902); 国家自然科学基金项目 (40830747, 40871229); 深圳市科技局“双百人才计划”项目

作者简介: 孙建林 (1985 ~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为有机地球化学, E-mail: jianlinsun0701@gmail.com

\* 通讯联系人, E-mail: zengh@pku.edu.cn

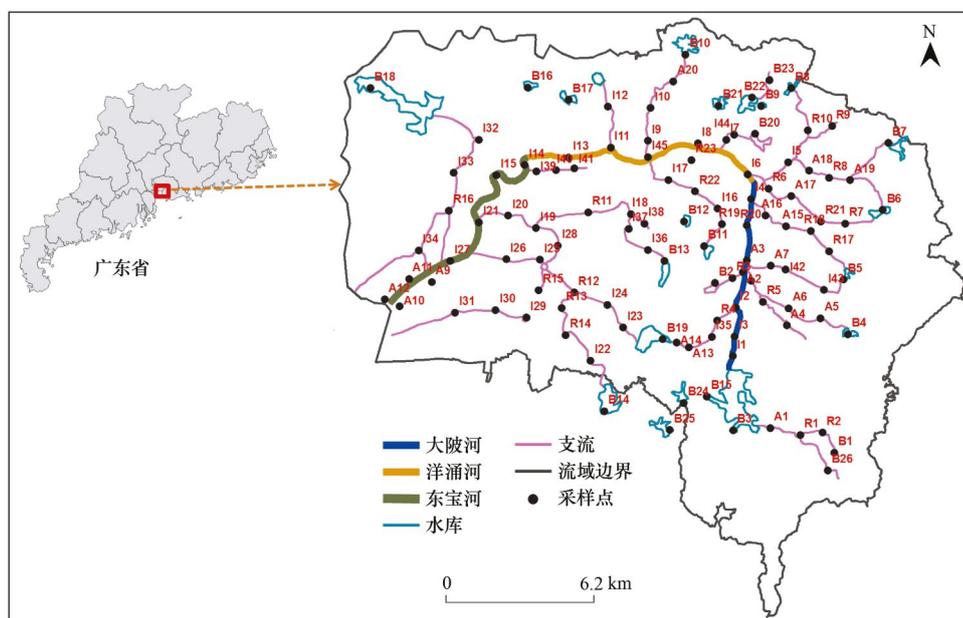
环境中 HPAHs 的相关研究尤其匮乏. 因此, 本研究选择位于珠三角地区工业化、城市化发展迅速的深圳市境内的茅洲河流域作为实验区, 采集水体表层沉积物样品, 分析 HPAHs 的含量水平以及空间分布特征, 利用 SPSS 统计工具初步分析污染源, 并估算 HPAHs 的毒性当量, 最后探讨了不同用地类型的人类活动对表层沉积物中 HPAHs 含量的影响.

## 1 材料与方法

### 1.1 样品采集

茅洲河是深圳市境内最长的河流, 全长 42.6

km. 发源于深圳市宝安区的羊台山, 由大陂河、洋涌河和东宝河组成, 其中东宝河是深圳与东莞两市的界河(见图 1). 根据不同的土地利用类型、河流的不同区段以及空间均匀布点的原则, 本研究在茅洲河流域范围内选取 114 个采样点(图 1), 其中工业区采样点 45 个, 居住区采样点 23 个, 农业区采样点 20 个, 背景值(在水库和山间小溪采集的沉积物样品)采样点 26 个. 于 2009 年 12 月~2010 年 1 月期间, 采集表层沉积物样品 114 个, 采样点详细地理坐标利用 GPS (global position system) 现场定位. 样品采集后立即加冰冷藏运回实验室, 保存于  $-20^{\circ}\text{C}$  的冰柜中, 直至后续分析.



$B_i$  表示背景值采样点(26),  $A_i$  表示农业用地采样点(20),  $R_i$  表示居住用地采样点(23),  $I_i$  表示工业用地采样点(45)

图 1 表层沉积物采样点具体位置分布示意

Fig. 1 Map showing the general locality of the sampling sites of surface sediments

### 1.2 试剂与标准品

内标(2-fluorobiphenyl 和 *p*-terphenyl- $d_{14}$ ) 和回收率指示物(acenaphthene- $d_{10}$ , phenanthrene- $d_{10}$ , chrysene- $d_{12}$  和 perylene- $d_{12}$ ) 购于 Dr. Ehrenstorfer GmbH (Augsburg, Germany). HPAHs 标准品中的 9-氯菲(9-chlorophenanthrene, 9-ClPhe)、2-氯蒽(2-chloroanthracene, 2-ClAnt) 和 9,10-二氯蒽(9,10-dichloroanthracene, 9,10-Cl<sub>2</sub>Ant) 购于 Aldrich (St. Louis, MO). 1-溴芘(1-bromopyrene, 1-BrPyr)、2-溴芴(2-bromofluorene, 2-BrFle)、9-溴菲(9-bromophenanthrene, 9-BrPhe)、9-溴蒽(9-bromoanthracene, 9-BrAnt) 和 9,10-二溴蒽(9,10-dibromoanthracene, 9,10-Br<sub>2</sub>Ant) 购于 Acros

Organics (Geel, Belgium). 7-溴苯并(a)蒽(7-bromobenz(a)anthracene, 7-BrBaA) 购于 Tokyo Kasei Kogyo Co., Ltd. (Tokyo, Japan). 硅胶(100~200目)先用甲醇(methanol)索氏抽提 24 h, 再用二氯甲烷(dichloromethane)索氏抽提 24 h, 然后于通风厨内晾干备用. 在使用以前, 硅胶先在马弗炉内  $180^{\circ}\text{C}$  焙烧 12 h 活化, 再用质量分数为 3% 的蒸馏水去活化, 摇匀后装在平底烧瓶中, 加正己烷密封置于干燥器中平衡 12 h 备用. 实验过程中所有用到的溶剂(二氯甲烷和正己烷)都于其沸经过二次重蒸.

### 1.3 样品预处理

将冷冻干燥后的表层沉积物样品研磨, 过筛后(80目), 取 20 g 沉积物样品, 用 200 mL 二氯甲烷

与正己烷体积比 3:1 的混合溶液索氏抽提 24 h, 抽提前样品中加入已知量的回收率指示物 (acenaphthene-d<sub>10</sub>, phenanthrene-d<sub>10</sub>, chrysene-d<sub>12</sub> 和 perylene-d<sub>12</sub>). 24 h 后将提取液浓缩至约 2 mL, 然后用硅胶柱 (填充 3 g 中性硅胶) 净化. 先用 6 mL 的正己烷淋洗硅胶柱, 淋洗液弃去. 然后用 70 mL 二氯甲烷与正己烷体积比 1:4 的混合溶液淋洗硅胶柱, 收集淋洗液, 浓缩定容至 500 μL 置于色谱进样瓶内. 上机测试之前, 加入内标.

#### 1.4 仪器分析

实验测试中使用的仪器是安捷伦气相色谱 (Agilent 7890A) 质谱 (Agilent 5795C) 联用仪. 气相色谱使用的是 30 m 的 DB-5MS 色谱柱 (内径 0.25 mm, 涂层 0.25 μm; J&W Scientific, Folsom, CA). 色谱柱的升温程序为: 初始温度是 80°C (保持 2 min), 然后以 10°C·min<sup>-1</sup> 的速率升温至 180°C, 接着以 4°C·min<sup>-1</sup> 升温至 300°C (保持 8 min). 进样时采用不分流模式, 载气为高纯氦气.

#### 1.5 质量保证与质量控制

在实验过程中, 每 12 个样品做一次方法空白,

空白加标, 基质空白和基质加标等质量保证与控制实验, 目标物的含量采用内标法进行定量, 报道检测限设定为标准曲线的最低浓度. 所有样品中的回收率数据分别是: acenaphthene-d<sub>10</sub> 84% ± 18%、phenanthrene-d<sub>10</sub> 96% ± 14%、chrysene-d<sub>12</sub> 88% ± 26% 和 perylene-d<sub>12</sub> 90% ± 16%. 目标物在方法空白样品中有少量检出, 目标物在空白加标实验中的回收率为 75.1% ~ 136.2%, 基质加标实验中目标物的回收率为 105.3% ~ 157.6%. 本研究报道的 HPAHs 含量以干重为标准, 未经回收率校正.

## 2 结果与讨论

### 2.1 HPAHs 的含量水平及空间分布特征

按照不同的土地利用类型, 把表层沉积物采样点分为 4 种类型: ①背景值采样点, 主要包括水库和山间小溪; ②农业用地采样点, 主要包括林地、果园和菜地; ③居住用地采样点, 主要包括城镇居民用地和农村居民点; ④工业用地采样点, 主要包括工业园区和工矿仓储用地. C1PAHs 和 BrPAHs 在 4 种类型采样点中的含量分布见表 1.

表 1 表层沉积物中卤代多环芳烃的含量水平/ng·g<sup>-1</sup>

化合物	背景值采样点				农业区采样点				居住区采样点				工业区采样点			
	平均值	中值	最小值	最大值												
9,10-Cl <sub>2</sub> Ant	0.98	1.01	0.71	1.61	1.24	1.02	0.71	2.54	2.07	1.45	0.76	5.69	2.82	1.81	0.75	20.6
9-ClPhe	1.01	1.08	0.51	1.75	3.75	1.51	0.56	36.2	18.3	1.54	0.54	282	30.1	6.42	0.51	289
2-ClAnt	2.51	2.19	1.10	5.04	15.6	7.81	2.16	97.0	12.8	10.0	1.78	58.4	8.16	6.25	1.37	23.9
9-BrPhe	0.97	1.00	0.78	1.27	1.59	1.34	0.90	4.36	1.94	1.46	0.82	4.43	2.30	1.73	0.80	7.51
9-BrAnt	1.34	1.51	0.95	2.10	2.15	1.94	0.96	6.57	2.64	1.82	0.96	9.17	2.99	2.28	0.95	10.1
2-BrFle	2.64	1.72	0.40	10.7	16.4	7.40	1.58	75.5	38.6	14.0	0.53	214	60.6	43.2	0.31	266
9,10-Br <sub>2</sub> Ant	1.34	1.35	1.17	2.10	2.52	1.58	1.22	7.63	5.27	2.65	1.26	39.3	4.04	2.50	1.21	25.0
1-BrPyr	1.85	1.83	1.24	2.79	3.67	2.75	1.26	11.5	5.62	3.39	1.26	43.7	8.76	2.79	1.24	101
7-BrBaA	2.53	2.31	1.51	5.53	3.41	2.27	1.52	11.6	5.07	3.61	1.62	34.5	5.56	3.62	1.54	37.6
∑ <sub>3</sub> C1PAH <sup>1)</sup>	4.50	4.35	3.07	7.77	20.6	12.4	4.17	108	33.2	17.0	3.70	290	41.1	21.5	3.00	301
∑ <sub>6</sub> BrPAH <sup>2)</sup>	10.7	9.93	7.52	19.4	29.7	18.3	9.31	85.1	59.1	39.5	9.66	249	84.3	70.4	8.00	285

1) ∑<sub>3</sub>C1PAH 是指 3 种 C1PAHs 的总含量; 2) ∑<sub>6</sub>BrPAH 是指 6 种 BrPAHs 的总含量

由表 1 可知, 在表层沉积物中, 3 种 C1PAHs 的含量水平不同, 9-ClPhe 含量最高, 2-ClAnt 次之, 9, 10-Cl<sub>2</sub>Ant 最低, 它们的平均值分别是 16.5、9.11 和 1.98 ng·g<sup>-1</sup>, 浓度范围分别是 0.51 ~ 289、1.10 ~ 97.0 和 0.71 ~ 20.6 ng·g<sup>-1</sup>. 并且, C1PAHs 的空间分布特征也不相同. 其中, 9, 10-Cl<sub>2</sub>Ant 和 9-ClPhe 表现出相同的分布趋势, 即: 工业用地 > 居住用地 > 农业用地 > 背景值. 但是 2-ClAnt 却不同于以上 2 种污染物, 其分布趋势为: 农业用地 > 居住用地 > 工业用地 > 背景值. 本研究认为出现这

种结果的原因可能是 9, 10-Cl<sub>2</sub>Ant 和 9-ClPhe 具有相同的污染源 (例如: 工业和生活废弃物以及汽车尾气排放), 而 2-ClAnt 具有不同的排放源 (例如: 农业收获以后的露天秸秆焚烧). 但是, 研究区内 C1PAHs 的具体污染源尚需要进一步研究. 此外, 与国外城市化地区相关研究相比, 如美国 Saginaw 河流域表层沉积物中 C1PAHs 的含量 (0.049 ~ 2.49 ng·g<sup>-1</sup>) 和日本东京湾的沉积柱中 C1PAHs 的含量 (0.036 ~ 1.21 ng·g<sup>-1</sup>)<sup>[8]</sup>, 本研究区的 C1PAHs 含量水平 (3.00 ~ 301 ng·g<sup>-1</sup>) 比美

国和日本高 2~4 个数量级。由此可知,深圳市经历的 30 a 快速城市化过程对城市周围环境产生了相当大的负面影响。

表层沉积物中 6 种 BrPAHs 的含量水平也不同,它们的平均值分别是 2-BrFle ( $35.3 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ) > 1-BrPyr ( $5.66 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ) > 7-BrBaA ( $4.39 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ) > 9, 10-Br<sub>2</sub>Ant ( $3.41 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ) > 9-BrAnt ( $2.40 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ) > 9-BrPhe ( $1.80 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ )。因此,2-BrFle 为主要的 BrPAHs 同系物,其次是 1-BrPyr。在不同的土地利用类型分布趋势,除了 9,10-Br<sub>2</sub>Ant 之外,其它的 BrPAHs 都表现出相同的分布特征,即:工业用地 > 居住用地 > 农业用地 > 背景值。因此,本研究认为 BrPAHs 各同系物之间可能具有同源性,工业生产活动可能是 BrPAHs 主要的污染源。但是高含量的 2-BrFle(含量水平比其他同系物高 1 个数量

级)的污染来源需要进一步研究。目前,尚无 HPAHs 相关的环境标准可以参考,因而进一步的 HPAHs 环境生态风险评价以及环境管理策略的制定等工作尚无法开展。

## 2.2 HPAHs 的来源解析

### 2.2.1 相关性分析

为了研究表层沉积物中 HPAHs 同系物之间是否具有同源性,笔者进行了 Pearson 相关分析,各个同系物之间的相关系数矩阵见表 2。结果表明:在 0.01 或 0.05 水平上,大多数同系物之间表现出良好的相关性,例如:9, 10-Cl<sub>2</sub>Ant 与 9-ClPhe、9-BrPhe、9-BrAnt、9, 10-Br<sub>2</sub>Ant、1-BrPyr、7-BrBaA 在 0.01 水平上都具有显著的相关性。因此,相关性分析表明 HPAHs 各个同系物可能具有相同的污染源和环境行为。

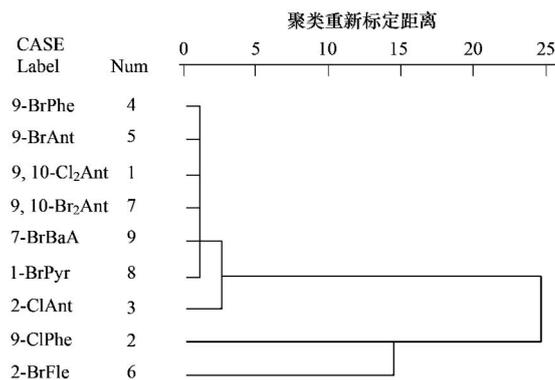
表 2 表层沉积物中卤代多环芳烃各个同系物之间的 Pearson 相关系数<sup>1)</sup>

	9,10-Cl <sub>2</sub> Ant	9-ClPhe	2-ClAnt	9-BrPhe	9-BrAnt	2-BrFle	9,10-Br <sub>2</sub> Ant	1-BrPyr	7-BrBaA
9,10-Cl <sub>2</sub> Ant	1.000								
9-ClPhe	0.252 **	1.000							
2-ClAnt	0.008	-0.093	1.000						
9-BrPhe	0.668 **	0.239 *	0.180	1.000					
9-BrAnt	0.615 **	0.360 **	0.103	0.686 **	1.000				
2-BrFle	0.235 *	0.714 **	-0.070	0.197 *	0.334 **	1.000			
9,10-Br <sub>2</sub> Ant	0.444 **	0.207 *	0.059	0.451 **	0.419 **	0.206 *	1.000		
1-BrPyr	0.801 **	0.107	0.068	0.548 **	0.588 **	0.033	0.412 **	1.000	
7-BrBaA	0.758 **	0.271 *	0.000	0.683 **	0.592 **	0.128	0.584 **	0.767 **	1.000

1) \* 为  $P < 0.05$ , \*\* 为  $P < 0.01$

### 2.2.2 聚类分析

在相关性分析的基础上,对表层沉积物中 HPAHs 同系物进行了分层聚类分析(R 型变量聚类),聚类方法采用组间连接(average linkage between groups),变量不相似性测度的方法选择欧式距离平方(squared Euclidean distance)。以进一步研究哪些同系物可能具有相同的来源,聚类分析的结果如图 2 所示。结果表明 9 种 HPAHs 同系物被分成了 4 类。第 1 类包括了 6 种物质:9-BrPhe、9-BrAnt、9, 10-Cl<sub>2</sub>Ant、9, 10-Br<sub>2</sub>Ant、7-BrBaA 和 1-BrPyr; 其他 3 类都只有 1 种物质,分别是 2-ClAnt、9-ClPhe 和 2-BrFle。根据报道,除了 2-BrFle 之外,其他 HPAHs 在垃圾焚烧产生的飞灰和底灰中都有检出<sup>[6]</sup>。所以,笔者推断垃圾焚烧是 HPAHs 的一个重要来源<sup>[23]</sup>。此外,9-ClPhe 被证明在聚氯乙烯(polyvinyl chloride)燃烧过程中也可以产生<sup>[25]</sup>,溴代芘(brominated pyrenes)在汽车尾气中也被检测到<sup>[5]</sup>。以上这些途径产生的 HPAHs 经过大气传输,



采用组间平均数联结法所得树状图

图 2 表层沉积物中 9 种卤代多环芳烃分层聚类分析结果的树状图

Fig. 2 Dendrogram of hierarchical cluster analysis for 9 HPAHs in surface sediments, using average linkage between groups and squared Euclidean distance as measure intervals

沉降在水体和土壤中,土壤中的污染物再由水土流失过程运输到水体最终沉降吸附到沉积物中。但是,HPAHs 的具体环境迁移行为与归趋,以及沉积

物中 2-BrFle 的污染来源还需要进一步研究。

### 2.2.3 主成分分析

为了解析 HPAHs 各种污染来源的贡献比例, 笔者又进行了主成分分析, 结果见表 3。主成分提取方法设定特征根 (eigenvalues) > 0.9, 旋转方法选择最大方差法 (varimax), 最终旋转的迭代次数收敛在 4 次, 共提取出 4 个主成分, 它们的累计贡献率达到 84.1%。第 1 个主成分的贡献率为 40.0%, 权重主要加权于 9,10-Cl<sub>2</sub>Ant、9-BrPhe、9-BrAnt、1-BrPyr 和 7-BrBaA。根据报道, 在垃圾焚烧产生的飞灰和底灰中, 以上 5 种 CIPAHs 和 BrPAHs 都有检出<sup>[6,10,29]</sup>。因此, 本研究把这个主成分定义为垃圾焚烧。第 2 个主成分的贡献率为 20.5%, 主要加权于 9-ClPhe 和 2-BrFle, 结果表明,

9-ClPhe 和 2-BrFle 在工业用地的表层沉积物中含量水平最高, 因此, 本研究认为这个主成分与工业生产活动中的废弃物排放有关, 例如: 煤和石油等化石燃料的燃烧。第 3 个主成分的贡献率为 11.9%, 主要加权于 9,10-Br<sub>2</sub>Ant, 结果显示, 9,10-Br<sub>2</sub>Ant 在居住用地的表层沉积物中含量水平最高, 因此, 本研究认为这个主成分与居民日常生活有关, 例如: 高密度的汽车流产生的尾气排放, 以及餐饮业用煤和天然气等。第 4 个主成分的贡献率为 11.7%, 主要加权于 2-ClAnt, 结果表明, 2-ClAnt 在农业用地的表层沉积物中含量水平最高, 所以它的排放源与农业生产活动有关, 结合研究区实际情况, 本研究把这个主成分归结为农业生产收获以后进行的农作物秸秆焚烧。

表 3 利用最大方差法得到的表层沉积物中 HPAHs 的主成分因子载荷矩阵<sup>1)</sup>

Table 3 Rotated component matrix with rotation converged in four iterations of HPAHs in surface sediments by a varimax with Kaiser normalization

化合物	主成分 1	主成分 2	主成分 3	主成分 4
9,10-Cl <sub>2</sub> Ant	<b>0.893</b>	0.13	0.122	-0.065
9-ClPhe	0.156	<b>0.895</b>	0.065	-0.07
2-ClAnt	0.047	-0.075	0.023	<b>0.976</b>
9-BrPhe	<b>0.773</b>	0.174	0.188	0.238
9-BrAnt	<b>0.749</b>	0.347	0.087	0.162
2-BrFle	0.069	<b>0.921</b>	0.072	-0.016
9,10-Br <sub>2</sub> Ant	0.341	0.123	<b>0.922</b>	0.038
1-BrPyr	<b>0.896</b>	-0.083	0.113	-0.035
7-BrBaA	<b>0.83</b>	0.065	0.375	-0.076
可能来源	垃圾焚烧	化石燃料的燃烧	汽车尾气	农作物秸秆焚烧
贡献率/%	40	20.5	11.9	11.7

1) 表中的黑体字表示对于不同的化合物因子得分 > 0.7 的主成分

### 2.3 HPAHs 的毒性当量 (toxic equivalency quotients, TEQs)

根据以下方程, 估算了不同用地类型表层沉积物中 HPAHs 的 TEQs。

$$TEQs = S[c_i] \times REP_{BaPi} / 60$$

式中,  $c_i$  表示每一种 HPAHs 单体的平均含量,  $REP_{BaPi}$  表示 HPAHs 单体相对于 Benzo[a]pyrene 的相对效应值 (relative potency values)<sup>[2,6,9,30]</sup>。TEQs 估算结果见表 4。CIPAHs 和 BrPAHs 的 TEQs 含量范围分别是 7.95 ~ 38.1  $\text{pg} \cdot \text{g}^{-1}$  和 38.1 ~ 105  $\text{pg} \cdot \text{g}^{-1}$ 。在 CIPAHs 同系物中, 2-ClAnt 在农业区采样点 TEQs 最大, 达到 26.0  $\text{pg} \cdot \text{g}^{-1}$ , 其次是居住区采样点 21.3  $\text{pg} \cdot \text{g}^{-1}$ 。BrPAHs 中, 7-BrBaA 在工业区采样点 TEQs 最大, 达到 77.8  $\text{pg} \cdot \text{g}^{-1}$ , 其次是居住区采样点 71.0  $\text{pg} \cdot \text{g}^{-1}$ 。总体来说, CIPAHs 和 BrPAHs 的 TEQs 含量均在工业区采样点达到最大值, 分别是 105  $\text{pg} \cdot \text{g}^{-1}$  和 38.1  $\text{pg} \cdot \text{g}^{-1}$ , 因此, 研究区内 BrPAHs

可能比 CIPAHs 具有更大的生态风险。根据报道<sup>[8]</sup>, 美国 Saginaw 河流域和日本东京湾沉积物中 CIPAHs 的 TEQs 含量分别是 0.08 ~ 6.0  $\text{fg} \cdot \text{g}^{-1}$  和 < 0.016 ~ 1.3  $\text{fg} \cdot \text{g}^{-1}$ , 比相同研究区内 PCDD/Fs (polychlorinated dibenzo-p-dioxin) 的 TEQs 含量低 5 个数量级、比 PCBs (polychlorinated biphenyl) 和 PCNs (polychlorinated naphthalenes) 的 TEQs 含量低 2 ~ 3 个数量级。本研究区内 CIPAHs 的 TEQs 含量比美国 Saginaw 河流域和日本东京湾高 3 ~ 4 个数量级。

### 2.4 HPAHs 含量水平与土地利用类型之间的关系

利用地理信息系统 (ArcGIS) 中的邻域统计分析功能 (neighborhood statistics), 把研究区内的工业用地、居住用地和农业用地划分成不同的密度梯度。然后研究 HPAHs 含量水平与不同土地利用类型密度梯度之间的关系, 结果如图 3 所示。总体而言, 随着工业用地密度的增大, 表层沉积物中

表 4 不同用地类型表层沉积物中卤代多环芳烃的毒性当量<sup>1)</sup>/pg·g<sup>-1</sup>Table 4 Toxic equivalency quotients (TEQs) of individual HPAHs in surface sediment from different land use types/pg·g<sup>-1</sup>

化合物	REP <sub>BaP</sub>	背景值采样点	农业区采样点	居住区采样点	工业区采样点
9-ClPhe	0.03	0.5	1.87	9.15	15.1
2-ClAnt	0.1	4.18	26.0	21.3	13.6
9,10-Cl <sub>2</sub> Ant	0.2	3.27	4.13	6.9	9.4
∑ CIPAHs		7.95	32.1	37.4	38.1
2-BrFle	0.02	0.88	5.45	12.9	20.2
9-BrPhe	0.02	0.32	0.53	0.65	0.77
9-BrAnt	0.01	0.22	0.36	0.44	0.5
1-BrPyr	0.04	1.24	2.45	3.75	5.84
7-BrBaA	0.84	35.4	47.8	71.0	77.8
∑ BrPAHs		38.1	56.6	88.6	105

1) ∑ CIPAHs 表示 3 种 CIPAHs 的 TEQ 含量之和; ∑ BrPAHs 表示 6 种 BrPAHs 的 TEQ 含量之和

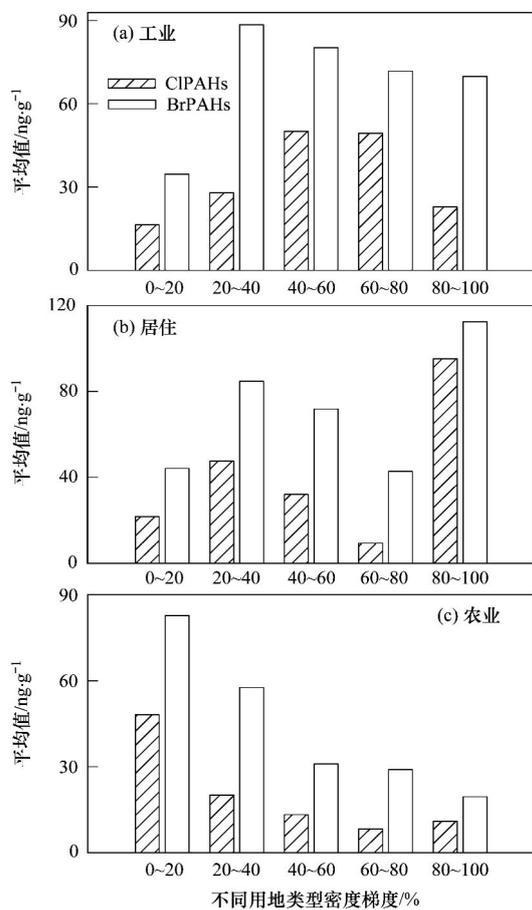


图 3 不同土地利用类型密度梯度与 CIPAHs 和 BrPAHs 含量水平之间的关系

Fig. 3 Relationship between levels of CIPAHs and BrPAHs and gradients of different land use types

HPAHs 的含量呈现出一个先增后减的趋势。这可能是因为工业化初期主要是一些高耗能高污染的生产方式,产生严重的环境污染,当工业化达到一定程度时,随着生产力的提高和先进技术的应用,工业生产活动产生的环境污染得到削减。对于居住用地

密度梯度,HPAHs 的含量呈现出先增后减再增的分布趋势。但是由于在居住用地密度梯度 60%~80% 和 80%~100% 这 2 个范围内的采样点分别只有 3 个和 4 个,所以笔者认为此分析结果可能无法代表研究区的真实情况。此外,表层沉积物中 HPAHs 的含量随着农业用地密度的增大而减小,这是因为研究区内农业用地主要包括林地、果园以及菜地,没有明显的点源污染。

## 2.5 展望

关于 HPAHs 环境行为的研究工作主要来自国外学者,国内关于 HPAHs 的相关研究较少,尤其是关于 BrPAHs。对于 HPAHs 的时空分布、来源解析、迁移转化等环境过程的关注较少。鉴于 HPAHs 具有类似二噁英的生物毒性,可能对人体健康产生影响。因此,中国亟需开展 HPAHs 的环境行为及人体暴露方面的基础研究工作。

## 3 结论

(1) 3 种 CIPAHs 和 6 种 BrPAHs 在深圳市茅洲河流域表层沉积物样品中均可检测到。研究表明表层沉积物中 HPAHs 主要来源包括垃圾焚烧、化石燃料的燃烧、汽车尾气排放以及农作物秸秆焚烧,并且 HPAHs 各种同系物之间具有同源性。

(2) HPAHs 在水体表层沉积物中的含量水平与采样点周边的土地利用类型有关。工业用地类型对环境产生的污染效应最为显著,而农业用地(主要包括林地和果园等)面积的增加可以有效减轻环境污染。表明深圳市经历的快速城市化和工业化过程对水生环境产生了比较大的负面效应。

(3) 表层沉积物中 HPAHs 的毒性当量(TEQs)估算结果显示 TEQs 的含量与采样点周边的土地利

用类型有关. CIPAHs 和 BrPAHs 的 TEQs 含量均在工业用地采样点达到最大值.

致谢: 感谢课题组王俊坚同学在样品采集工作中给予的大力支持, 感谢常文静老师在实验室预处理工作以及张宝忠老师和向同寿老师在仪器分析方面给予的无私帮助.

#### 参考文献:

- [ 1 ] Ohura T. Environmental behavior, sources, and effects of chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons[J]. *The Scientific World Journal*, 2007, **7**: 372-380.
- [ 2 ] Ohura T, Sawada K I, Amagai T, *et al.* Discovery of novel halogenated polycyclic aromatic hydrocarbons in urban particulate matters: occurrence, photostability, and AhR activity [J]. *Environmental Science and Technology*, 2009, **43**(7): 2269-2275.
- [ 3 ] Nilsson U L, Oestman C E. Chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons: method of analysis and their occurrence in urban air[J]. *Environmental Science and Technology*, 1993, **27**(9): 1826-1831.
- [ 4 ] Shiraishi H, Pilkington N H, Otsuki A, *et al.* Occurrence of chlorinated polynuclear aromatic hydrocarbons in tap water[J]. *Environmental Science and Technology*, 1985, **19**(7): 585-590.
- [ 5 ] Haglund P, Alsberg T, Bergman A, *et al.* Analysis of halogenated polycyclic aromatic hydrocarbons in urban air, snow and automobile exhaust[J]. *Chemosphere*, 1987, **16**(10-12): 2441-2450.
- [ 6 ] Horii Y, Ok G, Ohura T, *et al.* Occurrence and profiles of chlorinated and brominated polycyclic aromatic hydrocarbons in waste incinerators[J]. *Environmental Science and Technology*, 2008, **42**(6): 1904-1909.
- [ 7 ] Ohura T, Fujima S, Amagai T, *et al.* Chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmosphere: seasonal levels, gas-particle partitioning, and origin[J]. *Environmental Science and Technology*, 2008, **42**(9): 3296-3302.
- [ 8 ] Kannan K, Horii Y, Ohura T, *et al.* Chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from industrial areas in Japan and the United States [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2009, **57**(4): 651-660.
- [ 9 ] Ma J, Horii Y, Cheng J, *et al.* Chlorinated and parent polycyclic aromatic hydrocarbons in environmental samples from an electronic waste recycling facility and a chemical industrial complex in China[J]. *Environmental Science and Technology*, 2009, **43**(3): 643-649.
- [ 10 ] Eklund G, Stroemberg B. Detection of polychlorinated polynuclear aromatics in flue gases from coal combustion and refuse incinerators[J]. *Chemosphere*, 1983, **12**(4-5): 657-660.
- [ 11 ] Koistinen J, Paasivirta J, Nevalainen T, *et al.* Chlorinated fluorenes and alkylfluorenes in bleached kraft pulp and pulp mill discharges[J]. *Chemosphere*, 1994, **28**(12): 2139-2150.
- [ 12 ] Koistinen J, Paasivirta J, Nevalainen T, *et al.* Chlorophenanthrenes, alkylchlorophenanthrenes and alkylchloronaphthalenes in kraft pulp mill products and discharges [J]. *Chemosphere*, 1994, **28**(7): 1261-1277.
- [ 13 ] Ieda T, Ochiai N, Miyawaki T, *et al.* Environmental analysis of chlorinated and brominated polycyclic aromatic hydrocarbons by comprehensive two-dimensional gas chromatography coupled to high-resolution time-of-flight mass spectrometry [J]. *Journal of Chromatography A*, 2011, **1218**(21): 3224-3232.
- [ 14 ] Ohura T, Morita M, Kuruto-Niwa R, *et al.* Differential action of chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons on aryl hydrocarbon receptor-mediated signaling in breast cancer cells [J]. *Environmental Toxicology*, 2010, **25**(2): 180-187.
- [ 15 ] Horii Y, Khim J S, Higley E B, *et al.* Relative potencies of individual chlorinated and brominated polycyclic aromatic hydrocarbons for induction of aryl hydrocarbon receptor-mediated responses[J]. *Environmental Science and Technology*, 2009, **43**(6): 2159-2165.
- [ 16 ] Ohura T, Amagai T, Makino M. Behavior and prediction of photochemical degradation of chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons in cyclohexane[J]. *Chemosphere*, 2008, **70**(11): 2110-2117.
- [ 17 ] Kitazawa A, Amagai T, Ohura T. Temporal trends and relationships of particulate chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons and their parent compounds in urban air [J]. *Environmental Science and Technology*, 2006, **40**(15): 4592-4598.
- [ 18 ] Amagai T, Fujima S, Ohura T. Simultaneous determination of gaseous and particulate chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons in emissions from the scorching of polyvinylidene chloride film[J]. *Chemosphere*, 2006, **65**(11): 1983-1989.
- [ 19 ] Ohura T, Kitazawa A, Amagai T, *et al.* Occurrence, profiles, and photostabilities of chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons associated with particulates in urban air [J]. *Environmental Science and Technology*, 2005, **39**(1): 85-91.
- [ 20 ] Ohura T, Kitazawa A, Amagai T. Seasonal variability of 1-chloropyrene on atmospheric particles and photostability in toluene[J]. *Chemosphere*, 2004, **57**(8): 831-837.
- [ 21 ] Ishaq R, Näf C, Zebühr Y, *et al.* PCBs, PCNs, PCDD/Fs, PAHs and Cl-PAHs in air and water particulate samples-patterns and variations[J]. *Chemosphere*, 2003, **50**(9): 1131-1150.
- [ 22 ] Fu J, Suuberg E M. Thermochemical properties and phase behavior of halogenated polycyclic aromatic hydrocarbons [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2012, **31**(3): 486-493.
- [ 23 ] Sun J L, Ni H G, Zeng H. Occurrence of chlorinated and brominated polycyclic aromatic hydrocarbons in surface sediments in Shenzhen, South China and its relationship to urbanization [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2011, **13**(10): 2775-2781.
- [ 24 ] Wang D, Xu X, Chu S, *et al.* Analysis and structure prediction of chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons released from combustion of polyvinylchloride [J]. *Chemosphere*, 2003, **53**

- (5): 495-503.
- [25] Wang D, Piao M, Chu S, *et al.* Chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons from polyvinylchloride combustion[J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2001, **66**(3): 326-333.
- [26] Niu J F, Wang L L, Yang Z F. QSPRs on photodegradation half-lives of atmospheric chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons associated with particulates[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2007, **66**(2): 272-277.
- [27] 吴明红, 李刚, 马静, 等. 新型有机污染物氯代多环芳烃的研究进展[J]. *自然杂志*, 2010, **32**(4): 217-223.
- [28] 马静, 吴明红, 徐刚, 等. 结构-活性关系对氯代多环芳烃性质的预测[J]. *上海大学学报(自然科学版)*, 2010, **16**(5): 536-540.
- [29] Sovocool G W, Mitchum R K, Tondeur Y, *et al.* Bromo-and bromochloro-polynuclear aromatic hydrocarbons, dioxins and dibenzofurans in municipal incinerator fly ash[J]. *Biological Mass Spectrometry*, 1988, **15**(12): 669-676.
- [30] Ohura T, Morita M, Makino M, *et al.* Aryl hydrocarbon receptor-mediated effects of chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons[J]. *Chemical Research in Toxicology*, 2007, **20**(9): 1237-1241.

## 关于反对个别作者一稿两投行为的联合声明

为保证所发表论文的首创性和学术严谨性,《环境科学》、《中国环境科学》、《环境科学学报》编辑部和《Journal of Environmental Sciences》编辑部特发表如下联合声明。

我们明确反对个别作者的一稿两投或变相一稿两投行为.自即日起,我们各刊在接受作者投稿时,要求论文全体作者就所投稿件作出以下承诺(附在投稿上):

1) 来稿所报道的研究成果均系全体作者的原创性研究成果,文中报道的研究成果(含图、表中数据的全部或部分)未曾发表亦未曾投其它科技期刊.

2) 在接到所投期刊编辑部关于稿件处理结果之前,所投稿件的全部或部分内容不再投其它科技期刊.

我们将认真对待作者所作的上述承诺,并建立信息共享机制,对违背上述承诺的作者(包括在文中署名的全体作者)采取联合行动.

净化学术环境、促进学术繁荣是学术期刊作者和编者的共同责任.我们诚恳地希望广大作者能够了解我们的上述立场和做法,并积极宣传和配合.

《环境科学》编辑部  
《中国环境科学》编辑部  
《环境科学学报》编辑部  
《Journal of Environmental Sciences》编辑部

## CONTENTS

CH <sub>4</sub> Concentrations and the Variation Characteristics at the Four WMO/GAW Background Stations in China .....	FANG Shuang-xi, ZHOU Ling-xi, XU Lin, <i>et al.</i> (2917)
Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation over Northeast China and Its Water Vapor Sources .....	LI Xiao-fei, ZHANG Ming-jun, MA Qian, <i>et al.</i> (2924)
Study on Air Quality and Pollution Meteorology Conditions of Guangzhou During the 2010 Asian Games .....	LI Ting-yuan, DENG Xue-jiao, FAN Shao-jia, <i>et al.</i> (2932)
Characteristics and Sources of PM <sub>10</sub> -bound PAHs During Haze Period in Winter-Spring of Xiamen .....	QIAN Ran-ran, YAN Jing-ming, WU Shui-ping, <i>et al.</i> (2939)
Improvement and Application of the Method for Determination of OCEC Split .....	WANG Li-hua, DONG Hua-bin, YAN Cai-qing, <i>et al.</i> (2946)
Characteristics of Mercury Pollution in Soil and Atmosphere in Songhua River Upstream Jia-pi-gou Gold Mining Area .....	ZHANG Gang, WANG Ning, WANG Yuan, <i>et al.</i> (2953)
Pollution Characteristics and Health Assessment of Particulate Mercury in Hebei Rural Households .....	ZHAO Ya-juan, GONG Wei-wei, LUAN Sheng-ji (2960)
Composition and Characteristics of Volatile Organic Chemicals Emission from Printed Circuit Board Factories .....	MA Ying-ge (2967)
Preliminary Study Concerning Emissions of the Volatile Organic Compounds from Cooking Oils .....	HE Wan-qing, TIAN Gang, NIE Lei, <i>et al.</i> (2973)
Characteristics of Biofilm Phase During the Long-term Degradation of a Toluene-contaminated Gas Stream Using BTF .....	HU Jun, ZHENG Jiang-ling, WU Yue-xin, <i>et al.</i> (2979)
Performance of Cross Flow Trickling Filter for H <sub>2</sub> S Gas Treatment .....	LIU Chun-jing, LI Jian, LIU Jia, <i>et al.</i> (2987)
Study on Mercury Re-emissions During Fly Ash Utilization .....	MENG Yang, WANG Shu-xiao (2993)
Construction of Semi-analytical Model for Inversing Total Suspended Matter in Lake Taihu and Chaohu and Assessment of Its Applicability .....	LIU Zhong-hua, LI Yun-mei, TAN Jing, <i>et al.</i> (3000)
Association Study Between Water Quality of Chaohu Lake and Resources Input in Agriculture of Basin .....	ZHANG Yan, GAO Xiang, ZHANG Hong (3009)
Sediment and Pore Water Nutrient Characteristics in Growing Zones of <i>Alternanthera philoxeroides</i> in the Shiwuli River, Chaohu Lake .....	LI Ru-zhong, LI Feng, ZHOU Ai-jia (3014)
Enrichment Characteristic of Phosphorus in Surface and Core Sediments of Chaohu Lake and the Pollution Quantification .....	LIU En-feng, DU Chen-chang, YANG Xiang-dong, <i>et al.</i> (3024)
Spatial Distribution Characteristics and Correlation Analysis of Organic Matter, Total Nitrogen and Total Phosphorus in Topsoil Around Chaohu Lake .....	CHEN Shu-qin, CHU Zhao-sheng, HU She-rong, <i>et al.</i> (3031)
Dynamic Characteristics of Nitrogen and Phosphorus in the Representative Input Tributaries of Danjiangkou Reservoir .....	LEI Pei, ZHANG Hong, SHAN Bao-qing (3038)
Effects of Thermal Stratification on Spring Blooms in Xiangxi Bay of the Three Gorges Reservoir .....	LIU Liu, LIU De-fu, XIAO Shang-bin, <i>et al.</i> (3046)
Explore the Spatial and Temporal Patterns of Water Pollution in the Yincungang Canal of the Lake Taihu Basin, China .....	YANG Xiao-ying, LUO Xing-zhang, ZHENG Zheng, <i>et al.</i> (3051)
Analysis on the Forms and Release Potential of Nutrients in Sediments from Lakes in the West Jiangsu Province .....	LIU Tao, HU Zhi-xin, YANG Liu-yan, <i>et al.</i> (3057)
Spatial Distribution and Evaluation of Nitrogen, Phosphorus and Organic Matter in Surface Sediments from Western Lakeside Belt of Lake Taihu .....	GAN Shu, LU Shao-yong, QIN Pu-feng, <i>et al.</i> (3064)
Source Apportionment of Nitrogen and Phosphorus from Cropping Non-point Source Pollution in Nansi Lake Basin .....	LIU Jing, LU Feng, YANG Yan-zhao, <i>et al.</i> (3070)
Relationship Between Dissolved Organic Carbon and DBP in the Pearl River Water .....	HE Hong-wei, ZHOU Da-cheng, WANG Bao-qiang, <i>et al.</i> (3076)
Health Risk Assessment of Heavy Metals in Typical Township Water Sources in Dongjiang River Basin .....	WANG Ruo-shi, XU Qiu-jin, ZHANG Xian, <i>et al.</i> (3083)
Halogenated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Sediments of Maozhou River, Shenzhen .....	SUN Jian-lin, NI Hong-gang, DING Chao, <i>et al.</i> (3089)
Distribution Patterns of Heavy Metals in Surficial Sediment and Their Influence on the Environment Quality of the Intertidal Flat of Luoyuan Bay, Fujian Coast .....	GAO Wen-hua, DU Yong-fen, WANG Dan-dan, <i>et al.</i> (3097)
Study on the Changes of Macrobenthos Communities and Their Causes in Bohai Bay .....	CAI Wen-qian, LIU Lu-san, QIAO Fei, <i>et al.</i> (3104)
Construction of Groundwater Contamination Prevention Mapping System .....	WANG Jun-jie, HE Jiang-tao, LU Yan, <i>et al.</i> (3110)
Uncertainty Analysis of Groundwater Protection and Control Zoning in Beijing Plain .....	LU Yan, HE Jiang-tao, WANG Jun-jie, <i>et al.</i> (3117)
Nitrate Storage and Transport Within a Typical Karst Aquifer System in the Paralleled Ridge-valley of East Sichuan .....	YANG Ping-heng, YUAN Dao-xian, REN You-rong, <i>et al.</i> (3124)
Adsorption of Perfluorooctanesulfonate (PFOS) onto Modified Activated Carbons .....	TONG Xi-zhen, SHI Bao-you, XIE Yue, <i>et al.</i> (3132)
Investigation of the Oxidation Reaction of O <sub>3</sub> with Bromide Ion in Aqueous Solution .....	YU Xiao-ting, ZHANG Jia-hui, PAN Xun-xi, <i>et al.</i> (3139)
Determination of the Distribution of Relative Molecular Mass of Organic Matter by High Pressure Size Exclusion Chromatography with UV and TOC Detectors .....	ZHANG Han, DONG Bing-zhi (3144)
Black Water Bloom Induced by Different Types of Organic Matters and Forming Mechanisms of Major Odorous Compounds .....	LU Xin, FENG Zi-yan, SHANG Jing-ge, <i>et al.</i> (3152)
Effect of Fe and Fe/Ni Nanoparticles on the Biodegradation of Phenol by BFN at Different pH Values .....	KUANG Ye, ZHOU Yan, WANG Qing-ping, <i>et al.</i> (3160)
Pretreatment of High-Concentration Acrylic Acid Wastewater by the Multi-Stage Microaerobic Biological Fluidized Bed Reactor .....	LI Sha, ZHENG Sheng-zhi, SONG Yu-dong, <i>et al.</i> (3167)
Denitrification on Secondary Effluent of Acrylic Fiber Wastewater by Tri-Stage Biofilm Advanced Reactor .....	XU Shao-yang, JIANG Jin-yuan, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i> (3172)
Dynamic Adsorption of Cadmium (II) in Water on Modified Peanut Shells .....	LONG Teng, YI Xiao-yun, DANG Zhi (3177)
Adsorption Properties of Thiocyanate Anion on Granular Mg/Al Mixed Oxides .....	WANG Xiu-juan, WANG Hai-zeng, SUN Bao-wei, <i>et al.</i> (3182)
Model of Regularity of Ammonia Transformation Along Marine Biological Aerated Filter .....	LUO Rong-qiang, HOU Sha-sha, SHEN Jia-zheng, <i>et al.</i> (3189)
Aerobic Granular Sludge Bulking Due to the Lack of Nutrient and Its Recovery .....	ZHANG Zhu, GAO Da-wen, YUAN Xiang-juan, <i>et al.</i> (3197)
Enhanced Hydrolysis of Waste Activated Sludge by Biosurfactant .....	YI Xin, LUO Kun, YANG Qi, <i>et al.</i> (3202)
Enrichment and Identification of Anaerobic Ammonium Oxidation Bacteria .....	LIU Dong-ying, QIU Yan-ling, YUAN Xian-zheng, <i>et al.</i> (3208)
Isolation, Identification and Characterization of an Atrazine Degrading Bacterium .....	LI Shao-feng, ZHU Jing, LI Tie-jing (3214)
Isolation, Identification and Enzymological Characterization of a New Fungal with High Laccase Production from Agricultural Waste Composting .....	REN Xiu-juan, FAN Chang-zheng, LU Lun-hui, <i>et al.</i> (3220)
Screening and Identification of Microorganisms for Decolorization of Molasses Spent Wash .....	LI Bi-jin, LIU You-yan, HE Kai, <i>et al.</i> (3228)
Analysis of Microbial Community Structure in Lactic Acid Fermentation from Kitchen Waste .....	LIU Jian-guo, WANG Qun-hui, WANG Shuang, <i>et al.</i> (3236)
Effect of Covalent Functionalization on DNA Cleavage Activity and ROS Formation of Single-Walled Carbon Nanotubes .....	WU Ren-ren, TAO Xue-Qin, DANG Zhi, <i>et al.</i> (3241)
Research on Mercury Methylation by <i>Geobacter sulfurreducens</i> and Its Influencing Factors .....	ZOU Yan, SI You-bin, YAN Xue, <i>et al.</i> (3247)
Uptake Effect of Cd and Pb by Rape Under Single Cd/Pb and Cd-Pb Combined Stress .....	WU Wen-fei, NAN Zhong-ren, WANG Sheng-li, <i>et al.</i> (3253)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metals in Farming Domestic Muscovy Duck Originated from Au/Cu Mining and Smelting Activities .....	HANG Xiao-shuai, LIANG Bin, WANG Wen-lin, <i>et al.</i> (3261)
Effects of the Environmental Hormone Cypermethrin on the Reproduction of <i>Brachionus calyciflorus</i> .....	DONG Xue-xing, YANG Jia-xin, LÜ Lin-lan, <i>et al.</i> (3266)
Research on Anti-Corrosion of <i>Thiobacillus</i> for the Geopolymer Solidification MSWI Fly Ash .....	JIN Man-tong, SUN Xin, DONG Hai-li, <i>et al.</i> (3272)
Chlorination Transformation and Volatilization of Heavy Metals in Fly Ash from the Incineration During the Disposal Process with Higher Temperature .....	LIU Jing-yong, SUN Shui-yu (3279)
Study on Greenhouse Gas Emissions from Urban Waste Disposal System; A Case Study in Xiamen .....	YU Yang, CUI Sheng-hui, LIN Jian-yi, <i>et al.</i> (3288)
Fate Analysis of NPEOs and Their Metabolites in Municipal Wastewater Plants .....	LIAN Jing, LIU Jun-xin (3295)

# 《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 汤鸿霄 陈吉宁 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)

2012年9月15日 33卷 第9期

## ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 33 No. 9 Sep. 15, 2012

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. sciencecp. com	Distributed	by	Science Press Tel: 010-64017032 E-mail: journal@mail. sciencecp. com
订 购 处	全国各地邮局	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: 70.00 元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行人