

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第2期

Vol.35 No.2

2014

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

我国环境空气中颗粒物达标统计要求研究	王帅,丁俊男,王瑞斌,李健军,孟晓艳,杨彬,林宏 (401)
北京城区 PM _{2.5} 中致癌重金属季节变化特征及其来源分析	陶俊,张仁健,段菁春,荆俊山,朱李华,陈忠明,赵岳,曹军骥 (411)
北京地区冬春 PM _{2.5} 和 PM ₁₀ 污染水平时空分布及其与气象条件的关系	赵晨曦,王云琦,王玉杰,张会兰,赵冰清 (418)
北京市 PM _{2.5} 可吸入颗粒物反演及其时空分布分析	王艳慧,肖瑶 (428)
杭州市春季大气超细颗粒物粒径谱分布特征	谢小芳,孙在,杨文俊 (436)
春节期间南京市大气气溶胶粒径分布特征	王红磊,朱彬,沈利娟,刘晓慧,张泽峰,杨洋 (442)
南京市大气颗粒物中有机碳和元素碳粒径分布特征	吴梦龙,郭照冰,刘凤玲,刘杰,卢霞,姜琳琳 (451)
忻州市环境空气 PM ₁₀ 中有机碳和元素碳污染特征分析	史美鲜,彭林,刘效峰,牟玲,白慧玲,刘凤娟,杨花 (458)
广州某工业区大气中 PCDD/Fs 含量水平及其季节性变化特征	青亮,苏原,苏青,张素坤,任明忠 (464)
燃煤电厂锅炉 PM _{2.5} 排放危害度评价模型建立及案例分析	史妍婷,杜谦,高建民,边昕,王知涛,董鹤鸣,韩强,曹阳 (470)
中国南海大气降水化学特征	肖红伟,龙爱民,谢露华,肖化云,刘丛强 (475)
临安本底站酸雨长期观测特征分析	李正泉,马浩,毛裕定,冯涛 (481)
北京城区大气氮湿沉降特征研究	贺成武,任玉芬,王效科,毛宇翔 (490)
烟雾箱与数值模拟研究苯和乙苯的臭氧生成潜势	贾龙,徐永福 (495)
祁连山老虎沟 12 号冰川积雪中飞灰颗粒物的特征	董志文,秦大河,秦翔,杜志恒,陈记祖,任贾文 (504)
生活垃圾填埋场作业面恶臭散发率研究	羌宁,王红玉,赵爱华,袁文祥,邵俊,陈檬 (513)
生物滴滤塔处理苯酚气体研究	何觉聪,黄倩茹,陈洲洋,叶纪宏,罗雨薇,魏在山 (520)
国 V 柴油机燃用丁醇-柴油混合燃料颗粒粒径分布特性试验研究	楼狄明,徐宁,范文佳,张涛 (526)
翻堆频率对猪粪条堆肥过程温室气体和氨气排放的影响	赵晨阳,李洪枚,魏源送,钟佳,郑嘉嘉,韩圣慧,万合峰 (533)
CuBr ₂ 分解缓释-膜催化对零价汞的氧化性能研究	胡林刚,瞿赞,晏乃强,郭永福,谢江坤,贾金平 (541)
浙闽沿海岸域总溶解态无机锡的分布及影响因素研究	张许州,任景玲,刘宗广,樊孝鹏,刘诚刚,吴莹 (547)
基于双向算法的湖库允许纳污负荷量计算及案例	贾海峰,郭羽 (555)
北京平原区第四系地下水污染风险评价	郭高轩,李宇,许亮,李志萍,杨庆,许苗娟 (562)
不同季节辽河口营养盐的河口混合行为	张晋华,于立霞,姚庆祯,田琳 (569)
太湖南运河入湖河口沉积物氮素分布特征	马久远,王国祥,李振国,张佳,周锋,魏宏农,欧媛 (577)
亚热带地区潜流人工湿地木本植物筛选与净化潜力评价	陈永华,吴晓芙,郝君,陈明利,朱光玉 (585)
潜流人工湿地基质结构与水力特性相关性研究	白少元,宋志鑫,丁彦礼,游少鸿,何珊 (592)
凤眼莲对铜绿微囊藻生长及藻毒素与营养盐释放的影响	周庆,韩士群,严少华,宋伟,刘国峰 (597)
不同预氧化剂对长江原水氯(胺)化 DBPs 生成潜能的影响	田富箱,徐斌,荣蓉,陈英英,张天阳,朱贺振 (605)
溴化十六烷基吡啶改性沸石对水中菲的吸附作用	李佳,林建伟,詹艳慧,陈祖梅,王鹏钧 (611)
四环素光催化降解特性与选择性研究	宋晨怡,尹大强 (619)
微生物电解系统生物阴极的硫酸盐还原特性研究	符诗雨,刘广立,骆海萍,张仁铎,章莹颖 (626)
市政污水 A/DAT-IAT 系统中溶解性有机物表征与生态安全	杨赛,周启星,华涛 (633)
膜-生物反应器处理高盐废水膜面污染物特性研究	李彬,王志刚,安莹,吴志超 (643)
臭氧-曝气生物滤池组合工艺处理石化二级出水的试验研究	刘明国,吴昌永,周岳溪,高祯,王佩超,杨琦,董德 (651)
厌氧生物法处理果胶废水的研究	陈兵兵,杨春平,黎想,代传花,彭蓝艳 (657)
氧氟沙星在碳纳米管上的吸附机制研究	赵兴兴,于水利,王哲 (663)
平菇菌糠对废水中铜离子的生物吸附性能	胡晓婧,戴婷婷,顾海东,金羽,曲娟娟 (669)
基于流态化作用的吸附反应动力学和穿透特征	王君,王瑶,黄星,袁益龙,陈瑞晖,周航,周丹丹 (678)
广州城市污泥中重金属形态特征及其生态风险评价	郭鹏然,雷永乾,蔡大川,张涛,吴锐,潘佳钊 (684)
中国农田土壤重金属富集状况及其空间分布研究	张小敏,张秀英,钟大洋,江洪 (692)
废旧电容器封存点土壤中的 PCBs 污染特征和健康风险评价	周玲莉,吴广龙,薛南冬,杨兵,李发生,丁琼,周丹丹,燕云仲,刘博,韩宝禄 (704)
深圳市表层土壤多环芳烃污染及空间分异研究	章迪,曹善平,孙建林,曾辉 (711)
洋河流域万全段重金属污染风险及控制对策	谭冰,王铁宇,朱朝云,李奇峰,徐笠,吕永龙 (719)
施用组配固化剂对盆栽土壤重金属交换态含量及在水稻中累积分布的影响	曾卉,周航,邱琼瑶,廖柏寒 (727)
螯合剂复配对实际重金属污染土壤洗脱效率影响及形态变化特征	尹雪,陈家军,吕策 (733)
<i>Pseudomonas</i> sp. QJX-1 的锰氧化特性研究	周娜娜,柏耀辉,梁金松,罗金明,刘锐平,胡承志,袁林江 (740)
$n(\text{NO}_3^- - \text{N})/n(\text{NO}_2^- - \text{N})$ 对混培养菌与纯培养菌同步脱氮除硫的影响	陈子爱,陈会娟,魏本平,刘刚金,邓良伟,吴力斌 (746)
杭州市空气微生物群落碳代谢特征研究	龚婍娟,许晶,方治国,楼秀芹,欧阳志云 (753)
鼠李糖脂逆胶束体系中纤维素酶的后萃研究	赵艳鸽,袁兴中,黄华军,崔凯龙,彭馨,彭子原,曾光明 (759)
黄海常见鱼类体内汞含量的种内和种间差异研究	朱艾嘉,许战洲,柳圭泽,邓丽杰,方宏达,黄良民 (764)
3 种 PAEs 对蚯蚓的毒性作用和组织酶活性影响的研究	王艳,马泽民,吴石金 (770)
新型保水剂应用于土壤-小白菜系统的环境安全评价	李希,贺纪正,郑袁明,郑明兰 (780)
黄河三角洲翅碱蓬湿地硫化氢和羧基硫排放动态研究	李新华,郭洪海,杨丽萍,朱振林,孙晓青 (786)
农田土壤 N ₂ O 产生的关键微生物过程及减排措施	朱永官,王晓辉,杨小茹,徐会娟,贾炎 (792)
《环境科学》征订启事 (691) 《环境科学》征稿简则 (800) 信息 (489,519,591,791)	

CuBr₂分解缓释-膜催化对零价汞的氧化性能研究

胡林刚, 瞿赞, 晏乃强*, 郭永福, 谢江坤, 贾金平

(上海交通大学环境科学与工程学院, 上海 200240)

摘要: 以置于多孔陶瓷膜中的 CuBr₂ 受热分解所释放的 Br₂ 为氧化剂, 利用膜催化装置对 Hg⁰ 氧化效率进行研究, 并设计反应-就地检测一体化装置, 避免下游气体管壁效应对实验结果带来的影响。结果表明, MnO_x/α-Al₂O₃ 催化膜对 CuBr₂ 分解所产生 Br₂ 的释放有较好的“缓释”作用。Hg⁰ 和 Br₂ 在催化膜表面的吸附和反应可用 Langmuir-Hinshelwood 机制描述。Hg⁰ 氧化效率随 Br₂ 浓度增大而升高, 但在达到一定浓度后, Hg⁰ 和 Br₂ 的吸附速率及两者在催化膜表面的反应速率成为限速因素。473 ~ 573 K 时 Hg⁰ 氧化效率变化较稳定。烟气中 SO₂ 对 Hg⁰ 氧化有一定抑制作用, NO 无明显影响。

关键词: 汞氧化; 溴化铜; 反应检测一体化装置; 催化膜; Langmuir-Hinshelwood 机制

中图分类号: X131; X701 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2014)02-0541-06

Oxidation of Mercury by CuBr₂ Decomposition Under Controlled-Release Membrane Catalysis Condition

HU Lin-gang, QU Zan, YAN Nai-qiang, GUO Yong-fu, XIE Jiang-kun, JIA Jin-ping

(School of Environmental Science and Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China)

Abstract: CuBr₂ in the multi-porous ceramic membrane can release Br₂ at high temperature, which was employed as the oxidant for Hg⁰ oxidation. Hg⁰ oxidation efficiency was studied by a membrane catalysis device. Meanwhile, a reaction and *in situ* monitoring device was designed to avoid the impact of Br₂ on the downstream pipe. The result showed that the MnO_x/α-Al₂O₃ catalysis membrane had a considerable “controlled-release” effect on Br₂ produced by CuBr₂ decomposition. The adsorption and reaction of Hg⁰ and Br₂ on the surface of catalysis membrane obeyed the Langmuir-Hinshelwood mechanism. The removal efficiency of Hg⁰ increased with the rising of Br₂ concentration. However, when Br₂ reached a certain concentration, the removal efficiency was limited by adsorption rate and reaction rate of Hg⁰ and Br₂ on the catalysis membrane. From 473 K to 573 K, the variation of Hg⁰ oxidation efficiency was relatively stable. SO₂ in flue gas inhibited the oxidation of Hg⁰ while NO displayed no obvious effect.

Key words: mercury oxidation; copper bromide; reaction and *in situ* monitoring device; catalysis membrane; Langmuir-Hinshelwood mechanism

汞在环境中具有易挥发性及持久性的特点, 在生物体内以甲基汞形式积累, 影响生物的神经系统^[1, 2]。因此, 汞污染日益引起全球重视。2013 年 1 月 19 日, 联合国环境规划署宣布, 超过 140 个国家已经就全球第一部限制汞排放的国际公约《水俣公约》达成一致, 并将于 2013 年 10 月在日本签署该公约。

燃煤电厂被认为是环境中气相汞排放的一个主要来源之一^[3, 4]。2011 年 12 月 21 日, 美国环境保护署(EPA)宣布了一项新的政策——《汞和大气有害物质标准》(MATS), 规定燃煤电厂排放的汞必须在现有基础上削减 91%^[5]。我国作为一个燃煤大国, 2010 年煤炭消费量达到 31 亿 t, 占到全球煤炭总消费量的 45%^[6]。而根据清华大学和美国阿贡内实验室估算, 我国燃煤汞排放量在 2003 年达到 256 t^[7]。因此, 我国面临巨大的汞排放控制压力。

在燃煤烟气中, 汞主要以 3 种形式存在: 零价汞

(Hg⁰)、二价汞(Hg²⁺)以及颗粒汞(Hg^p)^[8, 9]。其中, Hg^p能利用电除尘或布袋除尘予以去除, Hg²⁺易溶于水, 能利用湿式脱硫设备去除。因而目前研究的热点和难点在于 Hg⁰的控制, 其中, 以氯(Cl)为氧化剂, 在催化剂作用下将 Hg⁰氧化为 Hg²⁺被证明是一种行之有效的方法。不管是在煤中添加 Cl 元素^[10], 还是在烟气中通入 Cl₂^[11]和 HCl^[12], 都能降低烟气中汞的浓度。然而由于烟气中 Hg 的浓度属于微量级, 为了能达到较高的去除率, 必须加入远远过量的氯, 这很可能引起二次污染。

近年来, 很多学者发现, 溴元素对 Hg⁰的氧化效率要远好于氯^[13, 14]。本课题组通过研究认为^[14], Hg⁰高度极化, 主要在伦敦分散力的作用下和其他

收稿日期: 2013-05-30; 修订日期: 2013-07-08

基金项目: 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2013CB430005); 国家自然科学基金项目(21077073)

作者简介: 胡林刚(1988~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向大气汞污染防治, E-mail: hulingang@gmail.com

* 通讯联系人, E-mail: nqyan@sjtu.edu.cn

原子或分子反应. 而溴原子外面有 80 个电子, 其半径大于氯原子, 因此更容易与 Hg^0 反应. 但另一方面, 溴的量仍然高于 Hg^0 的量, 而且溴在烟气管道中易造成比氯更严重的腐蚀^[15]. 因此, 采用适当的方法对溴进行利用, 在减少其使用量的同时提高其反应活性具有重要意义.

为此, 本研究在课题组所提出并建立的膜催化反应体系的基础上, 通过选用合适的溴化物作为溴源, 利用冷原子吸收光谱仪对 Hg^0 进行连续在线检测. 由于 Br_2 容易吸附于下游管路并继续与残余的汞反应, 干扰实验结果, 因此笔者设计了一种新型反应-就地检测实验装置, 以实现反应和就地检测一体化.

1 材料与方法

1.1 膜催化反应体系概念

针对传统催化氧化剂效率不高、氧化剂容易过多流失问题, 本课题组提出膜催化反应体系概念, 并做了大量工作^[16, 17]. 催化膜为多孔陶瓷管, 管外负载有催化剂. 含溴化合物置于管内. 加热时含溴化合物分解, 释放 Br_2 . Br_2 通过微孔路径吸附于膜表面催化剂活性位上. 含 Hg^0 气体通过催化剂时, 催化剂活性位上的 Br_2 不断消耗. 此时, 膜内外 Br_2 形

成一定浓度差, 促使膜内 Br_2 连续缓慢释放至膜表面. 同时, 释放的 Br_2 与 Hg^0 反应的利用率较高, 不易造成管路腐蚀.

1.2 反应-就地检测一体化装置阐述

模拟烟气用 N_2 负载, 总流量控制在 $500 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$, 通入进口 1. 为维持陶瓷管催化膜腔内正压, 进口 2 通入微量空气, 流量控制在 $5.0 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$.

实验所用反应检测一体化装置为一内径 16 mm, 外径 20 mm 的“T”型玻璃管, 如图 1 所示. 直管部分长 400 mm, 其中 350 mm 在恒温炉 (SK2-1-10H, 上海意丰电炉有限公司) 内. 进口 2 为一内径 6 mm 的小孔. 横管部分长 200 mm. 横管两端为出口 1 及出口 2, 各为一内径 6 mm 的小孔. 进口 2 为一内径 6 mm 的玻璃直管, 下端接催化膜. 横管左右两端各用一石英片封住. Hg^0 的氧化发生在直管催化膜中, “T”型设计能保证气流进入横管后向两端均匀流动. 横管一端用一包括参比光池、笔型汞灯 (Gp3Hg-1, 浙江海宁飞颖电器有限公司) 及传感器的弧形装置, 另一端放置传感器. 即将整个横管作为光池. 整个装置用工作站 (N2000, 浙江大学智达信息科技有限公司) 接至计算机, 对 Hg^0 浓度进行连续在线检测. 实验装置如图 1 所示.

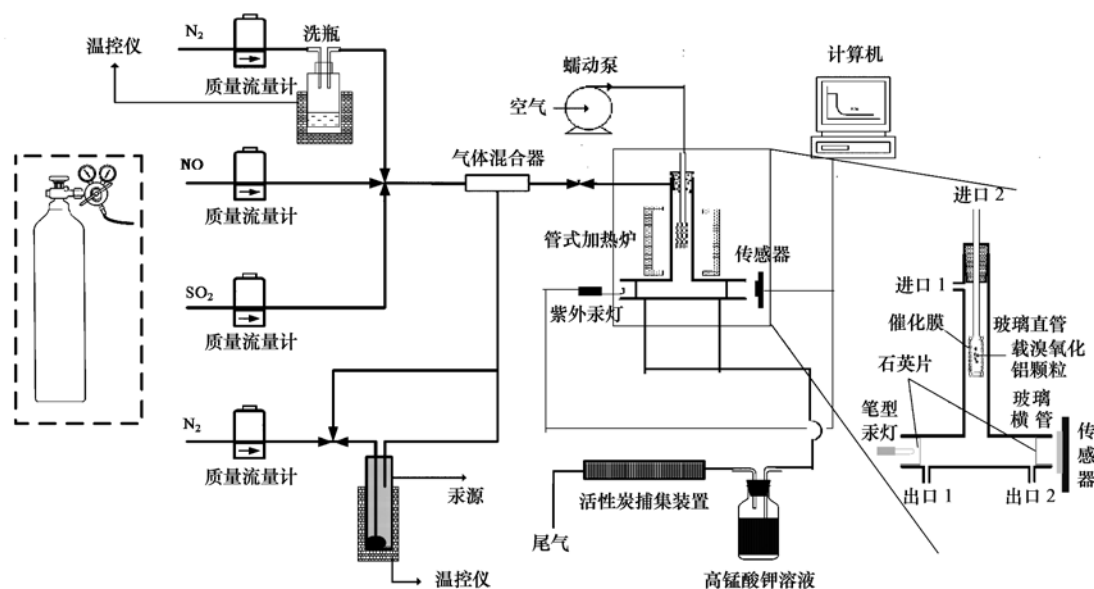


图 1 反应装置示意

Fig. 1 Scheme of the reaction system

1.3 催化膜的制备

催化膜的制备方法如文献^[16]所述. 即以内径 8 mm, 外径 12 mm 的氧化铝多孔陶瓷管 ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, 合肥长城新元膜有限公司) 为基体, 取 50 mm, 浸渍

于 100 mL 50% 硝酸锰 [$\text{Mn}(\text{NO}_3)_2$, 上海凌峰化学试剂有限公司] 溶液 10 min, 在 105°C 烘干 2 h, 重复浸渍 3 次, 最后 $5^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 程序升温至 773 K 并保持 3 h. 计算负载前后质量对比得 Mn 负载量约为

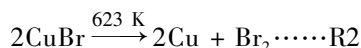
5% ($\varepsilon = 5\%$)。催化膜体系为 $\text{MnO}_x/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 。

1.4 氧化剂前体的选择和制备

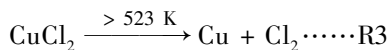
本研究利用热重分析仪 (Pyris 1 TGA, 美国 Perkin Elmer 公司) 初步考察了 ZnBr_2 、 CaBr_2 、 CuBr_2 及 CuCl_2 这 4 种卤化物作为氧化剂前体。如图 2 所示, 300 ~ 873 K 范围内 CaBr_2 几乎不分解。 ZnBr_2 的分解温度在 573 K 以上。而 CuBr_2 在 423 ~ 473 K 失重 35.5%, 即发生反应:



在 623 K 后 CuBr 进一步分解:



另一方面, CuCl_2 在第一阶段失去 3 个结晶水, 失重 20.6%。在 523 K 以后, CuCl_2 随温度升高持续失重, 最终在 700 K 失重达 43.2%, 即脱去 2 个氯。



因此, 本实验选择 CuBr_2 作为氧化剂前体, 并以 1 ~ 2 mm 活性氧化铝颗粒 (合肥长城新元膜有限公司) 为载体, 用浸渍法对 CuBr_2 进行负载^[18]。取 10 g 活性氧化铝颗粒和 100 mL 浓度为 5% 的 CuBr_2 溶液放入锥形瓶中, 以 $10\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 搅拌 3 h, 随后静置 3 h。用滤纸过滤后将氧化剂放入 105℃ 烘箱干燥 12 h。干燥后筛选出 10 ~ 20 目颗粒, 放入样品袋备用。 CuBr_2 溶液和滤液定容后用连续光源原子吸收光谱 (ContrAA 700, 德国 Analytikjena 公司) 测量 Cu 离子浓度, 计算得出负载在 Al_2O_3 上的 CuBr_2 含量为 4%。同时, 对 CuCl_2 作相同处理, 以进行对比。

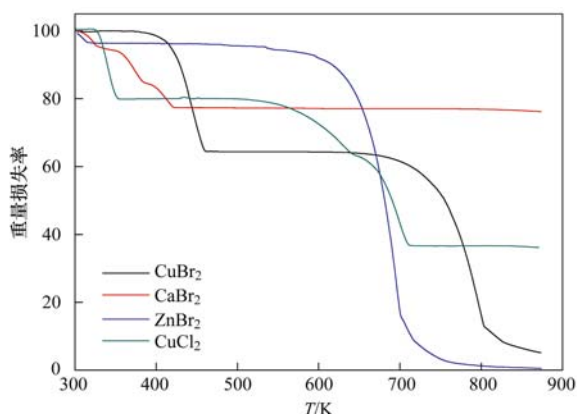


图 2 不同氧化剂前体物热重曲线

Fig. 2 TGA curve of different oxidant precursors

2 结果与分析

2.1 反应装置 Hg 信号标定

为确保反应检测一体化装置数据的可信度, 本研究将测汞仪 (RA 915 +, Zeeman Mercury

Spectrometer) 与实验装置相连, 测试实际汞浓度与计算机信号对应程度。如图 3 所示, 两者符合线性关系, 其线性相关度达到 0.991 9, 如扣除中间的数据偏差点, 其线性相关度甚至更高。因此, 本研究的检测反应一体化装置具较高的可信度。

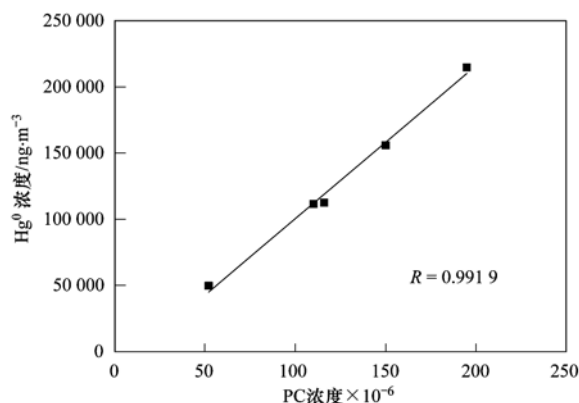


图 3 实际汞浓度与 PC 信号拟合线

Fig. 3 Fitted line of mercury concentration and PC signal

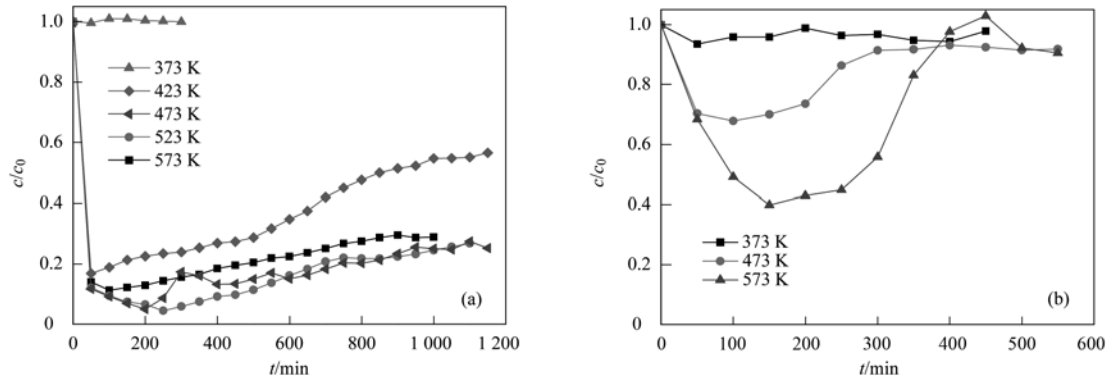
2.2 温度对 Hg^0 去除率的影响

CuBr_2 在不同温度下 Hg^0 的去除效率如图 4(a) 所示。373 K 时 Hg^0 几乎没有氧化, 热重结果显示 373 K 时 CuBr_2 不分解, 两者相吻合。423 K 时 CuBr_2 开始分解, Hg^0 氧化效率达到 80%, 经过 1 000 min 氧化效率仍然超过 40%。473 K 时 CuBr_2 全部分解为 CuBr 和 Br_2 , Hg^0 氧化效率提高至 90%, 1 000 min 后仍能维持在 70% 以上。然而, 523 K 时 Hg^0 氧化效率并没有显著变化, 573 K 时甚至呈轻微下降趋势。另一方面, 实验选取 373、473、573 K 这 3 个温度点, 将相同物质的量的 CuCl_2 置于负载量 5% Mn 陶瓷管中。结果显示 CuCl_2 对 Hg^0 的去除效率远低于 CuBr_2 , 400 min 后 Hg^0 几乎不被氧化。

温度的变化除了影响 CuBr_2 分解, 即 Br_2 的释放量之外, 还影响 Hg^0 和 Br_2 在催化膜表面的吸附。从 373 ~ 473 K, Br_2 的释放量显著增大, 催化膜表面 Br_2 增多, Hg^0 氧化效率显著增大。473 ~ 573 K 时分解的 Br_2 的量维持不变, Hg^0 氧化效率主要受催化膜表面吸附能力的影响, 573 K 时 Br_2 和 Hg^0 在催化膜表面的吸附减弱, 造成 Hg^0 氧化效率降低。

2.3 催化膜对 Hg^0 氧化的影响

热重分析表明, 473 K 时反应 R1 发生。此时催化膜对 Hg^0 氧化效率的影响如图 5 所示。没有负载催化膜时 350 min 后 CuBr_2 分解释放的 Br_2 的量逐渐减少, Hg^0 氧化效率迅速降低, 700 min 后 Hg^0 去



(a) 100 mg Al_2O_3 (0.018 mmol CuBr_2), $\varepsilon = 5\%$; (b) 45 mg Al_2O_3 (0.018 mmol CuCl_2), $\varepsilon = 5\%$

图 4 不同温度对 Hg^0 氧化效率的影响

Fig. 4 Effect of temperature on Hg^0 oxidation efficiency

除效率几乎为零. 而曲线 b 显示只有催化膜存在时, Hg^0 几乎不能被氧化. 当放置 75 mg Al_2O_3 小球于催化膜腔内, 1 100 min 后仍然有超过 75% 的 Hg^0 去除效率. 说明催化膜对 Br_2 的释放有显著的“缓释”效果.

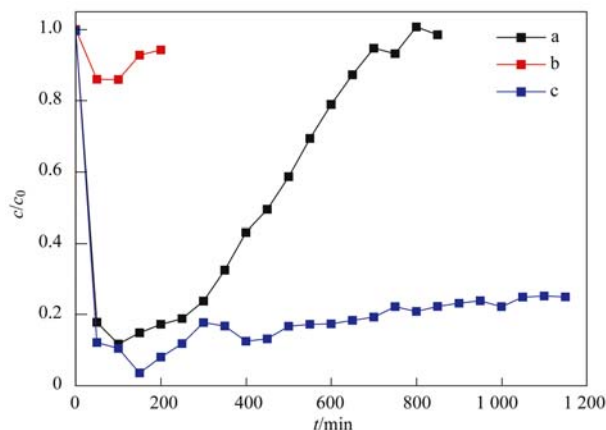
之前的研究表明催化膜表面成分主要为 MnO_x ^[16]. CuBr_2 分解释放 Br_2 , Br_2 吸附于催化膜内腔, 在浓度差作用下沿陶瓷管基体微孔逐渐由内腔向催化膜表面转移, 占据 MnO_x 活性位, 直至催化膜内外 Br_2 浓度达到平衡. 含 Hg^0 烟气经过催化膜时, Hg^0 被 Br_2 氧化为 Hg^{2+} , 同时催化膜表面 Br_2 浓度降低. 内腔的 Br_2 缓慢补充至催化膜表面. 在此过程中, Br_2 始终吸附于催化膜表面, 不易腐蚀管道, 形成二次污染的几率也较小. 用 $1 \times 10^{-6} \sim 20 \times 10^{-6}$ Br_2 检气管 (114, 日本光明株式会社) 在出口管

道没有检出 Br_2 .

2.4 CuBr_2 投加量对 Hg^0 去除率的影响

473 K、催化剂负载量 5% 的条件下, 实验考察了 CuBr_2 投加量对 Hg^0 氧化效率的影响 (图 6). 结果发现 25 mg Al_2O_3 时 Hg^0 氧化效率为 60%, 反应 1 000 min 后降至 30%. 当 Al_2O_3 增加到 50 mg 时, Hg^0 氧化效率大于 90%, 1 000 min 后依然能维持 70% 的 Hg^0 氧化效率. 但进一步增加 Al_2O_3 投加量不能显著提高 Hg^0 氧化效率.

原因可能在于低浓度 Br_2 时, 催化膜上有过量活性位, Br_2 浓度为限速因素, 因此增加 Br_2 能显著提高 Hg^0 氧化效率. 然而, 催化膜上活性位完全被 Br_2 占据后, Hg^0 氧化效率受活性位数量制约, 增加 Br_2 浓度对其影响有限.

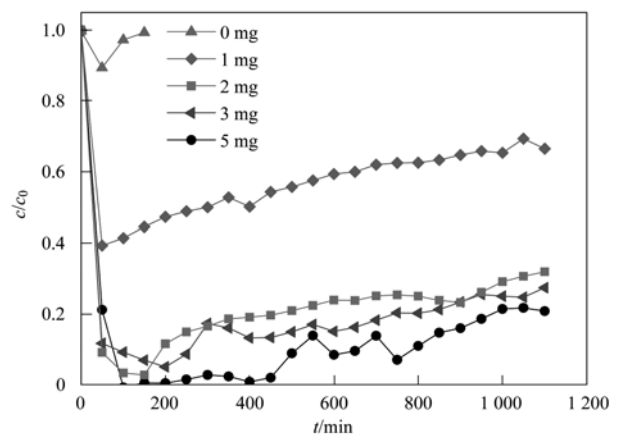


a. 75 mg Al_2O_3 , $\varepsilon = 0\%$; b. 0 mg Al_2O_3 , $\varepsilon = 5\%$;

c. 75 mg Al_2O_3 , $\varepsilon = 5\%$

图 5 473 K 时催化膜对 Hg^0 氧化效率的影响

Fig. 5 Effect of catalysis membrane on Hg^0 oxidation efficiency at 473 K



473 K, $\varepsilon = 5\%$

图 6 不同 CuBr_2 的量对 Hg^0 氧化效率的影响

Fig. 6 Effect of CuBr_2 amount on Hg^0 oxidation efficiency

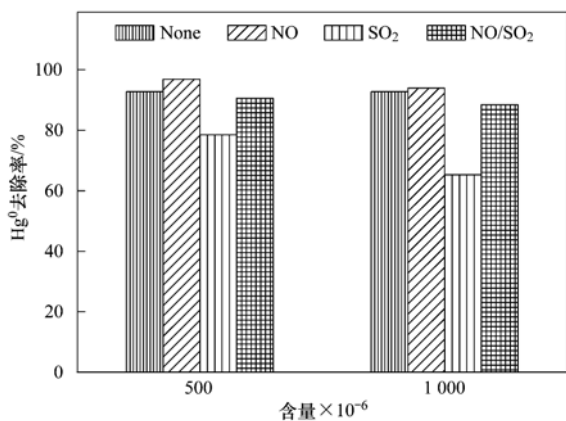
2.5 SO_2 和 NO 的影响

烟气中含有的 SO_2 和 NO 对 Hg^0 的氧化带来一

定影响. 实验在 473 K、Mn 负载量 5% 条件下考察了不同浓度 SO₂ 和 NO 对 Hg⁰ 氧化的影响. 如图 7 所示, SO₂ 对 Hg⁰ 的氧化有明显抑制作用. 500 × 10⁻⁶ SO₂ 使 Hg⁰ 的氧化效率从 93% 降到 78%, SO₂ 浓度提高至 1 000 × 10⁻⁶, Hg⁰ 氧化效率仅为 65%. 有研究表明, 在以 Cl₂ 或 HCl 为氧化剂的条件下, SO₂ 对 MnO_x/α-Al₂O₃ 体系产生明显的抑制作用^[19]. 原因在于烟气中 SO₂ 和 Hg⁰ 在催化膜表面产生竞争吸附, Hg⁰ 吸附减少, 因此降低了 Hg⁰ 氧化效率.

另一方面, NO 对 Hg⁰ 氧化效率有轻微促进作用. 500 × 10⁻⁶ NO 令 Hg⁰ 氧化效率升高 4%, 1 000 × 10⁻⁶ NO 则对 Hg⁰ 氧化效率无影响. 研究表明, 在 HCl 或 Cl₂ 条件下, NO 对 α-Al₂O₃/MnO_x 体系无明显影响^[19], 而在 I₂ 为氧化剂时, NO 抑制 Hg⁰ 的氧化^[20]. 有学者甚至提出, 在金属催化剂中, HCl 和 NO 存在微弱的协同作用, 能促进 Hg⁰ 氧化效率^[21].

此外, 当同时通入 500 × 10⁻⁶ SO₂ 和 500 × 10⁻⁶ NO, 或同时通入 1 000 × 10⁻⁶ SO₂ 和 1 000 × 10⁻⁶ NO 时, 发现 Hg⁰ 氧化效率几乎无变化, 可能是 NO 和 SO₂ 共同作用的结果. 未来研究着眼于考察催化膜中添加 Ru 等微量元素, 增加催化膜的抗硫性能^[22] 以及深入探索 NO 的作用机制.



473 K, ε = 5%, 75 mg Al₂O₃

图 7 SO₂ 和 NO 对 Hg⁰ 氧化效率影

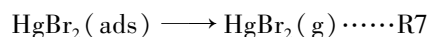
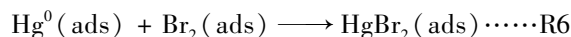
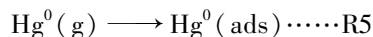
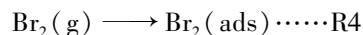
Fig. 7 Effect of SO₂ and NO on Hg⁰ oxidation efficiency

2.6 氧化机制探讨

实际烟气中, 氯和 Hg⁰ 以非均相反应为主^[23]. 很多学者提出了各自的反应模型, 包括 Deacon 反应、Eley-Rideal 反应、Mars-Maessen 反应等^[24]. 目前很多学者关注氯和 Hg⁰ 研究, 溴和 Hg⁰ 方面的研究数据要少得多, 并缺少系统的整理. 因此, 溴和

Hg⁰ 的反应机制主要由氯和 Hg⁰ 的反应机制推断而得^[13].

本研究中 Hg⁰ 和 Br₂ 在催化膜上反应, 其反应机制可初步用 Langmuir-Hinshelwood 机制解释^[25].

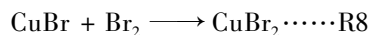


CuBr₂ 分解的 Br₂ 吸附于陶瓷管内腔, 在浓度差作用下至催化膜表面, 吸附于催化膜表面 MnO_x 活性位. 同时, 烟气中的 Hg⁰ 通过催化膜, 吸附于催化膜表面, 两者反应生成吸附态 HgBr₂, 最后释放至烟气中. 通过 Langmuir-Hinshelwood 机制, 反应主要影响因素包括 Br₂ 和 Hg⁰ 的浓度, 吸附平衡常数及表面反应速率. 一方面, Hg⁰ 氧化效率受 Br₂ 浓度影响, Br₂ 浓度成为限速因素. 另一方面, 随着 Br₂ 浓度提高, Hg⁰ 和 Br₂ 的吸附速率及两者在催化膜表面的反应成为限速因素. 实验表明 Al₂O₃ 小球投加量达到一定程度后, 无法显著提高 Hg⁰ 氧化效率. 温度升高可能会导致表面反应速率、表面反应平衡常数及吸附平衡常数变化, 使 Hg⁰ 氧化效率发生相应变动.

2.7 讨论

实验结果证实, MnO_x 催化膜对 Br₂ 的释放有较好“缓释”作用. 473 K、75 mg Al₂O₃ 时能取得 80% 以上的 Hg⁰ 氧化效率, 并维持 1 000 min 以上. Hg⁰ 氧化效率随 Br₂ 浓度增加而提高, 但达到一定程度后 Br₂ 浓度的影响减弱. 温度升高可能会导致表面反应速率、表面反应平衡常数及吸附平衡常数变化, 使 Hg⁰ 氧化效率发生相应变动. 在未来可利用反应-检测一体化装置对反应过程各组分浓度进行就地进行检测, 研究相应反应机制.

该催化膜装置亦具较高工业应用前景. 在管道中选取若干位置, 置入催化膜, 腔内放置载有溴化铜的氧化铝颗粒. 随着反应进行, 溴即将耗尽时, 往催化膜中通入较高浓度的 HBr 或 Br₂, 使溴化亚铜在此条件下重新生成溴化铜, 即发生可逆反应:



由于催化膜的存在, 腔内高浓度的 Br₂ 不和烟气直接接触, 避免了其对烟气中 S、N 等元素产生氧化. 而缓释至膜外的 Br₂ 浓度很低, 不易腐蚀管道, 形成二次污染的几率也较小. 实验中检气管在出口管道没有检出 Br₂. 在未来应用中, 以下问题尚需进

一步研究:①通入 HBr 或 Br₂ 的量及间隔周期. 如果通入量太大或周期太短,会造成过量的 HBr 或 Br₂ 逃逸进入烟气,反之,通入量太小或周期太长,会影响 Hg⁰ 的去除效率;②管道位置的选择. 不同管道中烟气温度有较大差别. 本实验显示反应温度窗口为 473 ~ 573 K. 因此,必须选择合适的管道位置,使效率达到最大;③SO₂ 的影响. SO₂ 会对 Hg⁰ 氧化效率产生较大影响,因此后续研究考虑添加合适元素,增加催化膜的抗硫性能.

3 结论

(1)反应-检测一体化装置对 Hg⁰ 的测定具有很高的可信度,并能避免 Br₂ 吸附于管壁,影响实验结果.

(2)MnO_x 催化膜条件下 Br₂ 对 Hg⁰ 的氧化效果远好于 Cl₂, MnO_x 催化膜对 Br₂ 的释放有较好“缓释”作用.

(3)Hg⁰ 和 Br₂ 在催化膜表面的吸附和反应可用 Langmuir-Hinshelwood 机制描述.

(4)MnO_x/α-Al₂O₃ 体系下,烟气中 SO₂ 对 Hg⁰ 氧化产生明显抑制作用. 原因可能在于 SO₂ 和 Hg⁰ 发生竞争吸附; NO 有轻微促进作用. NO 和 SO₂ 同时存在会互相影响.

参考文献:

- [1] Pavlish J H, Sondreal E A, Mann M D, *et al.* Status review of mercury control options for coal-fired power plants [J]. *Fuel Processing Technology*, 2003, **82**(2-3): 89-165.
- [2] 修瑞琴, 高世荣, 李连元. 海洋生物对甲基汞富集作用的研究[J]. *环境科学*, 1982, **3**(5): 36-38.
- [3] Srivastava R K, Hutson N, Martin B, *et al.* Control of mercury emissions from coal-fired electric utility boilers [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(5): 1385-1393.
- [4] 王慧敏, 朱法华, 陈辉, 等. 基于实测的燃煤电厂汞排放特性分析与研究[J]. *环境科学*, 2011, **32**(1): 33-37.
- [5] Beasley B, Woerman M, Paul A, *et al.* Mercury and air toxics standards analysis deconstructed: changing assumptions, changing results[J]. *Resources for the Future Discussion Paper*, 2013, (1): 10-13.
- [6] 杜雪明, 陈其慎, 李建武, 等. 全球煤炭供需格局[J]. *中国矿业*, 2011, **20**(1): 5-7.
- [7] 王书肖, 刘敏, 蒋靖坤, 等. 中国非燃煤大气汞排放量估算[J]. *环境科学*, 2006, **27**(12): 2401-2406.
- [8] Kellie S, Cao Y, Duan Y, *et al.* Factors affecting mercury speciation in a 100-MW coal-fired boiler with low-NO_x burners [J]. *Energy & Fuels*, 2005, **19**(3): 800-806.
- [9] 蒋靖坤, 郝吉明, 吴烨, 等. 中国燃煤汞排放清单的初步建立[J]. *环境科学*, 2005, **26**(2): 34-39.
- [10] Niksa S, Fujiwara N. Predicting extents of mercury oxidation in coal-derived flue gas [J]. *The Air & Waste Management Association*, 2005, **55**(7): 930-939.
- [11] Hall B, Schager P, Lindqvist O. Chemical reactions of mercury in combustion flue gases[J]. *Water Air & Soil Pollution*, 1991, **56**(1): 3-14.
- [12] Sliger R, Kramlich J, Marinov N. Towards the development of a chemical kinetic model for the homogeneous oxidation of mercury by chlorine species[J]. *Fuel Processing Technology*, 2000, **65-66**: 423-438.
- [13] Niksa S, Padak B, Krishnakumar B, *et al.* Process chemistry of Br addition to utility flue gas for Hg emissions control [J]. *Energy & Fuels* 2009, **24**(2): 1020-1029.
- [14] Liu S H, Yan N Q, Liu Z R, *et al.* Using bromine gas to enhance mercury removal from flue gas of coal-fired power plants [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(4): 1405-1412.
- [15] Zhuang Y, Chen C M, Timpe R, *et al.* Investigations on bromine corrosion associated with mercury control technologies in coal flue gas[J]. *Fuel*, 2009, **88**(9): 1692-1697.
- [16] Guo Y, Yan N, Yang S, *et al.* Conversion of elemental mercury with a novel membrane delivery catalytic oxidation system (MDCOs)[J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **45**(2): 706-711.
- [17] Guo Y, Yan N, Yang S, *et al.* Conversion of elemental mercury with a novel membrane catalytic system at low temperature[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2012, **213-214**: 62-70.
- [18] 张亮, 嵇玉群, 杜雯, 等. 铜基改性非碳基吸附剂汞脱除性能研究[J]. *环境科学学报*, 2010, **30**(10): 1926-1933.
- [19] Qiao S, Chen J, Li J, *et al.* Adsorption and catalytic oxidation of gaseous elemental mercury in flue gas over MnO_x/Alumina[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2009, **48**(7): 3317-3322.
- [20] Chi Y, Yan N, Qu Z, *et al.* The performance of iodine on the removal of elemental mercury from the simulated coal-fired flue gas [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **166**(2-3): 776-781.
- [21] Hrdlicka J A, Seames W S, Mann M D, *et al.* Mercury oxidation in flue gas using gold and palladium catalysts on fabric filters [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42**(17): 6677-6682.
- [22] Yan N, Chen W, Chen J, *et al.* Significance of RuO₂ modified SCR catalyst for elemental mercury oxidation in coal-fired flue gas [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(13): 5725-5730.
- [23] Van Otten B, Buitrago P A, Senior C L, *et al.* Gas-phase oxidation of mercury by bromine and chlorine in flue gas [J]. *Energy & Fuels*, 2011, **25**(8): 3530-3536.
- [24] Presto A A, Granite E J. Survey of catalysts for oxidation of mercury in flue gas[J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(18): 5601-5609.
- [25] 刘鸿, 成少安, 王琪全, 等. 无水条件下气相三氯乙烯的光催化降解机理[J]. *环境科学*, 1998, **19**(2): 62-65, 70.

CONTENTS

Form of the Particulate Matter Ambient Air Standards in China	WANG Shuai, DING Jun-nan, WANG Rui-bin, <i>et al.</i> (401)
Seasonal Variation of Carcinogenic Heavy Metals in PM _{2.5} and Source Analysis in Beijing	TAO Jun, ZHANG Ren-jian, DUAN Jing-chun, <i>et al.</i> (411)
Temporal and Spatial Distribution of PM _{2.5} and PM ₁₀ Pollution Status and the Correlation of Particulate Matters and Meteorological Factors During Winter and Spring in Beijing	ZHAO Chen-xi, WANG Yun-qi, WANG Yu-jie, <i>et al.</i> (418)
Inversion and Spatial-Temporal Distribution Analysis on PM _{5.0} Inhalable Particulate in Beijing	WANG Yan-hui, XIAO Yao (428)
Characterization of Ultrafine Particle Size Distribution in the Urban Atmosphere of Hangzhou in Spring	XIE Xiao-fang, SUN Zai, YANG Wen-jun (436)
Size Distributions of Aerosol During the Spring Festival in Nanjing	WANG Hong-lei, ZHU Bin, SHEN Li-juan, <i>et al.</i> (442)
Size Distributions of Organic Carbon and Elemental Carbon in Nanjing Aerosol Particles	WU Meng-long, GUO Zhao-bing, LIU Feng-ling, <i>et al.</i> (451)
Characterization of Organic and Elemental Carbon in PM ₁₀ in Xinzhou City	SHI Mei-xian, PENG Lin, LIU Xiao-feng, <i>et al.</i> (458)
Seasonal Variation of Concentrations and Distribution Characteristics of PCDD/Fs in Atmosphere of an Industrial Area, Guangzhou	QING Xian, SU Yuan, SU Qing, <i>et al.</i> (464)
Hazard Evaluation Modeling of Particulate Matters Emitted by Coal-Fired Boilers and Case Analysis	SHI Yan-ting, DU Qian, GAO Jian-min, <i>et al.</i> (470)
Chemical Characteristics of Precipitation in South China Sea	XIAO Hong-wei, LONG Ai-min, XIE Lu-hua, <i>et al.</i> (475)
Analysis of Acid Rain Characteristics of Lin'an Regional Background Station Using Long-term Observation Data	LI Zheng-quan, MA Hao, MAO Yu-ding, <i>et al.</i> (481)
Characteristics of Atmospheric Nitrogen Wet Deposition in Beijing Urban Area	HE Cheng-wu, REN Yu-fen, WANG Xiao-ke, <i>et al.</i> (490)
Studies of Ozone Formation Potentials for Benzene and Ethylbenzene Using a Smog Chamber and Model Simulation	JIA Long, XU Yong-fu (495)
Characteristics of Fly Ash Particles Deposition in the Snowpack of Laohugou Glacier No. 12 in Western Qilian Mountains, China	DONG Zhi-wen, QIN Da-he, QIN Xiang, <i>et al.</i> (504)
Odor Emission Rate of Municipal Solid Waste from Landfill Working Area	QIANG Ning, WANG Hong-yu, ZHAO Ai-hua, <i>et al.</i> (513)
Gaseous Phenol Removal in a Bio-Trickling Filter	HE Jue-cong, HUANG Qian-ru, CHEN Zhou-yang, <i>et al.</i> (520)
Particulate Distribution Characteristics of Chinese Phrase V Diesel Engine Based on Butanol-Diesel Blends	LOU Di-ming, XU Ning, FAN Wen-jia, <i>et al.</i> (526)
Effects of Turning Frequency on Emission of Greenhouse Gas and Ammonia During Swine Manure Windrow Composting	ZHAO Chen-yang, LI Hong-mei, WEI Yuan-song, <i>et al.</i> (533)
Oxidation of Mercury by CuBr ₂ Decomposition Under Controlled-Release Membrane Catalysis Condition	HU Lin-gang, QU Zan, YAN Nai-qiang, <i>et al.</i> (541)
Distributions and Influencing Factors of Total Dissolved Inorganic Antimony in the Coastal Area of Zhejiang and Fujian	ZHANG Xu-zhou, REN Jing-ling, LIU Zong-guang, <i>et al.</i> (547)
Calculation of Allowable Pollution Loads for Lake and Reservoir Based on Bi-direction Algorithm and Its Case Study	JIA Hai-feng, GUO Yu (555)
Risk Assessment of Quaternary Groundwater Contamination in Beijing Plain	GUO Gao-xuan, LI Yu, XU Liang, <i>et al.</i> (562)
Mixing Behavior of Nutrients in Different Seasons at Liaohe Estuary	ZHANG Jin-hua, YU Li-xia, YAO Qing-zhen, <i>et al.</i> (569)
Distribution of Nitrogen in the Sediment of Taige South River Estuary	MA Jiu-yuan, WANG Guo-xiang, LI Zhen-guo, <i>et al.</i> (577)
Selection and Purification Potential Evaluation of Woody Plant in Vertical Flow Constructed Wetlands in the Subtropical Area	CHEN Yong-hua, WU Xiao-fu, HAO Jun, <i>et al.</i> (585)
Correlation of Substrate Structure and Hydraulic Characteristics in Subsurface Flow Constructed Wetlands	BAI Shao-yuan, SONG Zhi-xin, DING Yan-li, <i>et al.</i> (592)
Impacts of <i>Eichhornia crassipes</i> (Mart.) Solms Stress on the Growth Characteristics, Microcystins and Nutrients Release of <i>Microcystis aeruginosa</i>	ZHOU Qing, HAN Shi-qun, YAN Shao-hua, <i>et al.</i> (597)
Effects of Different Pre-oxidants on DBPs Formation Potential by Chlorination and Chloramination of Yangtze River Raw Water	TIAN Fu-xiang, XU Bin, RONG Rong, <i>et al.</i> (605)
Adsorption of Phenanthrene from Aqueous Solution on Cetylpyridinium Bromide (CPB)-Modified Zeolite	LI Jia, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (611)
Characteristics and Selectivity of Photocatalytic-Degradation of Tetracycline Hydrochloride	SONG Chen-yi, YIN Da-qiang (619)
Characterization of Biocatalysed Sulfate Reduction in a Cathode of Microbial Electrolysis System	FU Shi-yu, LIU Guang-li, LUO Hai-ping, <i>et al.</i> (626)
Characteristics of Dissolved Organic Matter in A/DAT-IAT System for Municipal Wastewater Treatment Based on Ecological Safety	YANG Sai, ZHOU Qi-xing, HUA Tao (633)
Membrane Surface Fouling Properties in MBRs for High-Salinity Wastewater Treatment	LI Bin, WANG Zhi-wei, AN Ying, <i>et al.</i> (643)
Treatment of Petrochemical Secondary Effluent by Ozone-biological Aerated Filter	LIU Ming-guo, WU Chang-yong, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i> (651)
Treatment of Pectin Wastewater by Anaerobic Biological Process	CHEN Bing-bing, YANG Chun-ping, LI Xiang, <i>et al.</i> (657)
Sorption Mechanism of Ofloxacin by Carbon Nanotubes	ZHAO Xing-xing, YU Shui-li, WANG Zhe (663)
Biosorption Characteristics of Cu ²⁺ by Spent Substrate of <i>Pleurotus</i> Oyster	HU Xiao-jing, ZANG Ting-ting, GU Hai-dong, <i>et al.</i> (669)
Adsorption Dynamics and Breakthrough Characteristics Based on the Fluidization Condition	WANG Jun, WANG Yao, HUANG Xing, <i>et al.</i> (678)
Characteristics of Speciation and Evaluation of Ecological Risk of Heavy Metals in Sewage Sludge of Guangzhou	GUO Peng-ran, LEI Yong-qian, CAI Da-chuan, <i>et al.</i> (684)
Spatial Distribution and Accumulation of Heavy Metal in Arable Land Soil of China	ZHANG Xiao-min, ZHANG Xiu-ying, ZHONG Tai-yang, <i>et al.</i> (692)
Pollution Patterns and Health Risk Assessment for Polychlorinated Biphenyls in Soils from a Capacitor Storage Site	ZHOU Ling-li, WU Guang-long, XUE Nan-dong, <i>et al.</i> (704)
Occurrence and Spatial Differentiation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Soils from Shenzhen, China	ZHANG Di, CAO Shan-ping, SUN Jian-lin, <i>et al.</i> (711)
Risk Assessment and Countermeasures of Heavy Metals Pollution in Wanquan Segment of Yanghe River	TAN Bing, WANG Tie-yu, ZHU Zhao-yun, <i>et al.</i> (719)
Effects of Group Matching Curing Agent on Exchangeable Pb, Cd, Zn Contents in the Potted Soils and their Accumulation in Rice Plants	ZENG Hui, ZHOU Hang, QIU Qiong-yao, <i>et al.</i> (727)
Impact of Compound Chelants on Removal of Heavy Metals and Characteristics of Morphologic Change in Soil from Heavy Metals Contaminated Sites	YIN Xue, CHEN Jia-jun, LÜ Ce (733)
Characterization of Manganese Oxidation by <i>Pseudomonas</i> sp. QJX-1	ZHOU Na-na, BAI Yao-hui, LIANG Jin-song, <i>et al.</i> (740)
Effects of the Ratio of NO ₃ ⁻ -N to NO ₂ ⁻ -N on the Removal of Sulfide and Nitrogen by Mixed Culture and Pure Culture	CHEN Zi-ai, CHEN Hui-juan, WEI Ben-ping, <i>et al.</i> (746)
Carbon Metabolic Characteristics of Airborne Microbes in Hangzhou	GONG Chan-juan, XU Jing, FANG Zhi-guo, <i>et al.</i> (753)
Study on the Backward Extraction of Cellulase in Rhammolid Reverse Micelles	ZHAO Yan-ge, YUAN Xing-zhong, HUANG Hua-jun, <i>et al.</i> (759)
Inner- and Inter-Species Differences of Mercury Concentration in Common Fishes from the Yellow Sea	ZHU Ai-jia, XU Zhan-zhou, LIU Gui-ze, <i>et al.</i> (764)
Study on the Effect of Enzymatic Activity and Acute Toxicity of Three PAEs on <i>Eisenia foetida</i>	WANG Yan, MA Ze-min, WU Shi-jin (770)
Environmental Safety Assessment on the New Super Absorbent Polymers Applied into a Soil-Chinese Cabbage System	LI Xi, HE Ji-zheng, ZHENG Yuan-ming, <i>et al.</i> (780)
Study on Dynamics of Hydrogen Sulfide and Carbonyl Sulfide Emission Fluxes from <i>Suaeda salsa</i> Marsh in the Yellow River Estuary	LI Xin-hua, GUO Hong-hai, YANG Li-ping, <i>et al.</i> (786)
Key Microbial Processes in Nitrous Oxide Emissions of Agricultural Soil and Mitigation Strategies	ZHU Yong-guan, WANG Xiao-hui, YANG Xiao-ru, <i>et al.</i> (792)

《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)

2014年2月15日 35卷 第2期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 2 Feb. 15, 2014

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: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行人