

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第8期

Vol.35 No.8

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

2012年春季京津冀地区一次沙尘暴天气过程中颗粒物的污染特征分析 刘庆阳, 刘艳菊, 赵强, 张婷婷, 张美根, 王存美 (2843)

杭州灰霾天气超细颗粒浓度分布特征 陈秋方, 孙在, 谢小芳 (2851)

气象因素对广州市大气中二噁英污染特征的影响 杜国勇, 苏原, 任明忠, 张素坤, 青宪 (2857)

龙凤山本底站大气 CO₂ 数据筛分及浓度特征研究 栾天, 周凌晔, 方双喜, 姚波, 王红阳, 刘钊 (2864)

区域传输对华东森林及高山背景点位大气污染物浓度的影响 苏彬彬, 许榕洋, 张若宇, 纪贤鑫 (2871)

天津市夏季蜂窝状溶蚀器涂层溶液浓度确定的实验研究 张诗建, 姬亚芹, 张雷波, 赵雪艳, 朱振宇, 杨文 (2878)

铅锌冶炼厂不同工艺铅元素粒径分布特征 梁俊宁, 李文慧, 葛毅, 陈浩, 宋丽娜, 刘杰 (2883)

KI 改性黏土脱除烟气中单质汞的研究 沈伯雄, 陈建宏, 蔡记, 何川, 李卓 (2890)

污泥直接干化产生的恶臭及挥发性有机物特征研究 陈文和, 邓明佳, 罗辉, 张婧赢, 丁文杰, 刘俊新, 李琳 (2897)

基于风险管理的区域(流域)地下水污染预警方法研究 白利平, 王业耀, 郭永丽, 周友亚, 刘俐, 颜增光, 李发生 (2903)

1980~2010年浙江某典型河流硝态氮通量对净人类活动氮输入的动态响应 张柏发, 陈丁江 (2911)

南京仙林新市区土地利用结构与格局对湿地水环境氮、磷影响研究 蔡春晓, 刘红玉, 李玉凤, 王聪, 侯明行 (2920)

三江平原典型沼泽湿地养分累积与沉积特征 李瑞利, 柴民伟, 邱国玉, 石福臣, Sasa Kaichiro (2928)

岩溶地下河流域表层土壤多环芳烃污染特征及来源分析 蓝家程, 孙玉川, 师阳, 徐昕, 袁道先, 胡宁 (2937)

亚热带典型岩溶区地表流水文地球化学昼夜变化及其影响因素研究 张陶, 蒲俊兵, 袁道先, 章程, 何师意, 于爽, 刘文, 莫雪, 周建超, 杨会, 唐伟 (2944)

藏南干旱区湖泊及地热水体氢氧同位素研究 肖可, 沈立成, 王鹏 (2952)

广西五里峡水库夏季溶解无机碳行为的初步研究 刘文, 蒲俊兵, 于爽, 章程, 区绎如, 袁道先, 杨会, 唐伟 (2959)

铜陵相思河流域重金属分布特征研究 陈莉薇, 徐晓春, 王军, 陈芳 (2967)

不同压力作用下太湖蓝藻气囊体积分数及上浮特性研究 王巍, 丛海兵, 徐亚军, 陈雯婧, 徐思涛, 吴军, 蒋新跃 (2974)

酸性条件下Ti(IV)催化 O₃/H₂O₂ 降解邻苯二甲酸二甲酯 高燕, 沈俊栋, 陈尧, 周慧华, 童少平 (2980)

无机离子与胡敏酸对零价铁去除水中Pb(II)、Hg(II)的影响 施秋伶, 周欣, 张进忠, 邱昕凯 (2985)

羟基磷灰石-四氧化三铁-沸石复合材料制备及去除水中刚果红研究 方巧, 林建伟, 詹艳艳, 杨孟娟, 郑雯婧 (2992)

不锈钢 201、304 和 316L 在模拟污水管道反应器中的腐蚀 鲍国栋, 左剑恶, 王雅娇, 于里 (3002)

微滤过程中腐殖酸与膜表面黏附特性的试验研究 王磊, 王磊, 黄丹曦, 王旭东 (3007)

不同类型 LDHs 对垂直流人工湿地无烟煤基质的覆膜改性及其脱氮效果研究 张翔凌, 郭露, 陈俊杰, 刘小婷, 徐璐, 陈巧珍, 王晓晓 (3012)

SPG 膜曝气-基因工程菌生物膜反应器处理阿特拉津废水研究 刘春, 龚鹏飞, 肖太民, 张明, 年永嘉, 杨景亮, 张晶 (3018)

SPG 膜微气泡曝气生物膜反应器运行性能影响因素研究 张磊, 张明, 刘春, 张静, 刘俊良 (3024)

曝气膜生物反应器运行过程中污泥活性特征变化及其对膜污染的影响 陈烜, 汤兵, 张姿, 宾丽英, 黄绍松, 付丰连, 邱兵 (3031)

限量曝气进水时间对硝化颗粒污泥的影响特性研究 刘文如, 阴方芳, 王建芳, 沈耀良 (3038)

UASBB 厌氧氨氧化反应器处理污泥脱水液的影响因素研究 李亚峰, 马晨曦, 张驰 (3044)

开封周边地区地表灰尘中汞背景值及其应用 陈彦芳, 马建华, 董运武, 刘德新, 陈星 (3052)

北京市幼儿园地面尘中有毒金属浓度及其健康风险 段恒轶, 吴亚涛, 王珏, 刘兆荣 (3060)

珠三角电子垃圾和城市地区家庭灰尘中多氯联苯的来源及暴露风险 朱智成, 陈社军, 丁南, 王璟, 罗孝俊, 麦碧娟 (3066)

温带典型草原土壤总有机碳及溶解性有机碳对模拟氮沉降的响应 齐玉春, 彭琴, 董云社, 肖胜生, 孙良杰, 刘欣超, 何亚婷, 贾军强, 曹丛丛 (3073)

不同肥料种类对稻田红壤碳氮淋失的影响 刘希玉, 邹敬东, 徐丽丽, 张心昱, 杨风亭, 戴晓琴, 王忠强, 孙晓敏 (3083)

低分子有机酸对土壤中 Cu 化学形态的影响 黄国勇, 付庆灵, 朱俊, 万田英, 胡红青 (3091)

EDTA 与柠檬酸复配洗修多重金属污染土壤效果研究 尹雪, 陈家军, 蔡文敏 (3096)

不同生态系统土壤生化特征及其与土壤呼吸和 N₂O 排放的关系 陈玲, 范会, 蒋静艳 (3102)

黄河口不同恢复阶段湿地土壤 N₂O 产生的不同过程及贡献 孙文广, 孙志高, 甘卓亭, 孙万龙, 王伟 (3110)

猪粪化肥配施对双季稻田 CH₄ 和 N₂O 排放及其全球增温潜势的影响 王聪, 沈健林, 郑亮, 刘杰云, 秦红灵, 李勇, 吴金水 (3120)

我国北方两地环境臭氧浓度对矮菜豆生长的影响 袁相洋, 张巍巍, 孙敬松, 胡恩柱, 张玉龙, 张红星, 田媛, 冯兆忠 (3128)

丛枝菌根影响纳米 ZnO 对玉米的生物效应 王卫中, 王发园, 李帅, 刘雪琴 (3135)

丛枝菌根对翅荚木生长及吸收累积重金属的影响 李霞, 彭霞薇, 伍松林, 李志茹, 冯红梅, 江泽平 (3142)

含磷物质对水稻吸收土壤砷的影响 雷鸣, 曾敏, 廖柏寒, 胡立琼, 周航, 龙水波 (3149)

重金属铬(VI)的生态毒性及其土壤环境基准 王晓南, 刘征涛, 王婉华, 张聪, 陈丽红 (3155)

维生素 B₆ 对脱氮功能蓝藻降解 2,4,4'-三氯联苯的促进作用研究 刘嘉裕, 肖文丰, 鲁莉萍, 张杭君 (3162)

己烯雌酚降解菌株沙雷氏菌的分离鉴定及其降解特性 徐冉芳, 孙敏霞, 刘娟, 汪泓, 李欣, 朱雪竹, 凌婉婷 (3169)

多溴联苯醚在市场鲫鱼体内分布和食鱼暴露量 王俊霞, 王春艳, 刘莉莉, 周啸宇, 刘洋成, 林匡飞 (3175)

稀有鮐鲫 HMGR 基因全长克隆及雌鱼经五氯酚暴露基因表达的分析 邓川, 毛思予, 熊力, 张晓峰, 李伟, 高香, 刘秋萍, 陈韵, 刘堰 (3183)

藻细胞和高岭土的存在对病毒 MS2 存活的影响 何强, 吴庆庆, 马红芳, 周真明, 苑宝玲 (3192)

多胺功能化介孔炭对 Pb(II) 的吸附动力学与机制 李坤权, 王艳锦, 杨美蓉, 朱志强, 郑正 (3198)

生物活性炭投加量对垃圾渗滤液处理效果的影响 崔延瑞, 郭焱, 吴青, 马罗丹, 孙剑辉, 崔凤灵 (3206)

经济结构调整的污染减排效应: 以 COD 减排为例 李名升, 周磊, 陈远航, 李茜, 张建辉 (3212)

中国铅流改变原因分析 马兰, 毛建素 (3219)

放牧阉牦牛提前出栏甲烷排放强度减排潜力探讨 汪诗平, Andreas Wilkes, 汪亚运, 白玲 (3225)

中国水体硝酸盐氮氧双稳定同位素溯源研究进展 徐志伟, 张心昱, 于贵瑞, 孙晓敏, 温学发 (3230)

《环境科学》征稿简则(2936) 《环境科学》征订启事(3051) 信息(2882,2927,3059,3218)

岩溶地下河流域表层土壤多环芳烃污染特征及来源分析

蓝家程^{1,2}, 孙玉川^{1*}, 师阳¹, 徐昕¹, 袁道先^{1,3}, 胡宁¹

(1. 西南大学地理科学学院, 三峡库区生态环境教育部重点实验室, 重庆 400715; 2. 国土资源部岩溶生态环境-重庆南川野外基地, 重庆 408435; 3. 中国地质科学院岩溶地质研究所/国土资源部、广西岩溶动力学重点实验室, 桂林 541004)

摘要: 采集重庆南山老龙洞地下河流域农田土壤(0~20 cm), 利用气相色谱-质谱联用仪(GC/MS)测定了土壤样品中 16 种优控多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)含量, 分析其含量和组成, 污染水平及污染来源. 结果表明, 流域内不同地点表层土壤 16 种 PAHs 总量变化范围为 277~3 301 ng·g⁻¹, 平均值为 752.6 ng·g⁻¹ ± 635.5 ng·g⁻¹, 所有样品均遭受污染, 其中 57% 为轻污染, 29% 为污染土壤, 而 14% 为重污染. 多环芳烃的组成以 2~3 环为主, 占总量的 28.72%~72.68%, 平均值为 48.20%; 4 环和 5~6 环含量分别为 7.77% 和 34.03%. 土壤 PAHs 含量与有机质(SOM)含量显著相关, 而与 pH 值相关性不强. 比值法和主成分分析(PCA)表明, 流域内土壤主要来自交通排放与煤炭、石油及生物质燃烧的混合源以及石油源.

关键词: 多环芳烃; 土壤; 污染来源; 岩溶地下河

中图分类号: X142; X52; X53 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)08-2937-07 DOI: 10.13227/j.hjks.2014.08.014

Source and Contamination of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Soil in Karst Underground River Basin

LAN Jia-cheng^{1,2}, SUN Yu-chuan¹, SHI Yang¹, XU Xin¹, YUAN Dao-xian^{1,3}, HU Ning¹

(1. Key Laboratory of Eco-Environments in Three Gorges Reservoir, Ministry of Education, School of Geographical Science, Southwest University, Chongqing 400715, China; 2. Field Scientific Observation & Research Base of Karst Eco-Environments at Nanchuan in Chongqing, Ministry of Land and Resources, Chongqing 408435, China; 3. Key Laboratory of Karst Dynamics Laboratory, Ministry of Land and Resources & Guangxi; Institute of Karst Geology, Chinese Academy of Geological Sciences, Guilin 541004, China)

Abstract: Surface soil (0-20 cm) from various agricultural sites in Laolongdong underground river basin was collected to determine the concentrations, compositional profiles, and sources of 16 priority polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). PAHs were measured by GC/MS. The total concentrations of PAH16 ranged from 277-3 301 ng·g⁻¹, with a mean of 752.6 ng·g⁻¹ ± 635.5 ng·g⁻¹, and 57%, 29% and 14% of soil samples were slightly, moderately and heavily polluted by PAHs, respectively. The PAH compositional profiles were dominated by 2,3 ring compounds, which accounted for 28.72%-72.68% (a mean of 48.20%) of the total PAHs, while 4 ring and 5,6 ring PAHs accounted for an average of 7.77% and 34.03%, respectively. Soil organic matter(SOM) was found to be significantly correlated with the 16 PAHs and total PAHs. However, pH value was slightly correlated with the 16 PAHs and total PAHs. Isomer pair ratios and Principal component analysis (PCA) suggested vehicles, coal, petroleum and biomass combustion as the main sources of PAHs, and another major source was petroleum.

Key words: polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs); soil; source; karst underground river

多环芳烃(PAHs)是一种重要的持久性有机污染物(POPs),普遍存在于环境介质中. 由于其具有毒性,能致癌、致畸、致突变(US EPA, 1993),美国环境保护署(US EPA)将其中的 16 种 PAHs 确定为优先控制的有机污染物. 环境中的 PAHs 主要来自煤、石油等化石燃料及木材等生物质和其他有机材料的不完全燃烧^[1~3]. 土壤天然有机质对有机污染物有强烈的亲和性,因此土壤成为有机污染物重要的汇^[4]. 近年来,国内外对土壤中 PAHs 的污染水平及来源、分布特征、PAHs 在土壤中迁移及影响因素、环境因素与 PAHs 的相互关系、生态风险评估等进行了广泛研究. 国内则主要集中在东北地区^[5]、京津及附近地区^[6,7]、长三角^[8,9]、珠三

角^[10,11]等东部地区的土壤 PAHs 研究.

我国西南岩溶区,由于碳酸盐岩造壤能力低,基岩大片裸露,土被不连续,土层浅薄,土壤层的天然保护和过滤作用基本丧失,加上强烈的岩溶作用,大量落水洞、漏斗、竖井和裂隙等岩溶形态发育,导致污染物容易进入岩溶含水层,造成地下

收稿日期: 2014-01-27; 修订日期: 2014-03-21

基金项目: 重庆市院士专项(cstc2013jcyj20001); 国家自然科学基金项目(41072192, 41103068); 中央高校基本科研业务费专项(XDJK2013D012, XDJK2013B021); 国家自然科学基金青年科学基金项目(41301541); 西南大学博士基金项目(SWU110258); 应对全球气候变化地质调查综合研究项目(12120113006700); 2011 年度重庆市国土房管局科技计划项目

作者简介: 蓝家程(1986~),男,博士研究生,主要研究方向为岩溶环境学与土壤环境, E-mail: lanjc@swu.edu.cn

* 通讯联系人, E-mail: sunyc@swu.edu.cn

水污染. 岩溶地下水的污染物可以经过表层岩溶带然后进入潜水带,也可以绕过表层带,直接通过落水洞进入潜水带^[12]. 近年来的研究表明,我国西南岩溶区地下水和地表土壤、洞穴土壤均不同程度的检出 PAHs^[13~17],但相关的研究相对较少. 杨梅^[18]和 Alam 等^[19]对本文中研究地点南山老龙洞地下河水体和沉积物持久性有机污染物研究表明,岩溶地下河 PAHs 含量较高. 因此选择重庆老龙洞岩溶地下河流域为研究对象,分析流域洼地内农田表层土壤 PAHs 的污染水平、分布、组成特征及主要来源,并考虑土壤有机碳和 pH 值对 PAHs 含量和分布的影响,有助于深入了解岩溶地下河系统中有机污染物的分布、迁移及环境归趋,以为岩溶地下水污染防治及管理提供基础资料.

1 材料与方法

1.1 研究区概况

南山岩溶槽谷地区位于重庆市东南面南岸区与巴南区境内(图 1),东经 29°32'30",北纬 106°37'30",为亚热带湿润气候,年均降雨量 1 100 mm,降雨

主要集中在 4~9 月,区内植被主要为亚热带常绿阔叶林,土壤为黄壤和石灰土. 区域整体地貌类型为背斜低山,背斜北段和背斜南段分别呈现“一山二岭一槽”和“一山三岭两槽”的岩溶景观. 整个背斜轴部地层为三叠系下统嘉陵江组(T_{1j})碳酸盐岩;背斜两翼为三叠系中统雷口坡组(T_{2l})碳酸盐岩和三叠系上统须家河组(T_{3xj})地层.

老龙洞地下河流域位于南山岩溶槽谷核部,沿背斜轴部南北纵向发育,槽谷内广泛分布有岩溶洼地、岩溶裂隙、落水洞,并有表层岩溶泉外露. 流域面积大约为 12.6 km²,农业用地约 2 km²,集中在岩溶洼地内,主要种植各种蔬菜及莲藕.

1.2 样品采集

于 2012 年 12 月按地下河流域上、中、下游于岩溶槽谷洼地菜地内,用溶剂预清洗过的洁净不锈钢铲子采取 0~20 cm 表层土壤样,3~5 个点混合均匀作为一个采样点,采集 1~2 kg 土样,共采集表层土壤样 21 个(见图 1). 样品立即带回实验室除去表面石子、根等杂物,室内自然风干,风干好的土样过 60 目筛,置于聚乙烯封口袋内,放入 -20℃ 冰箱保存至分析.

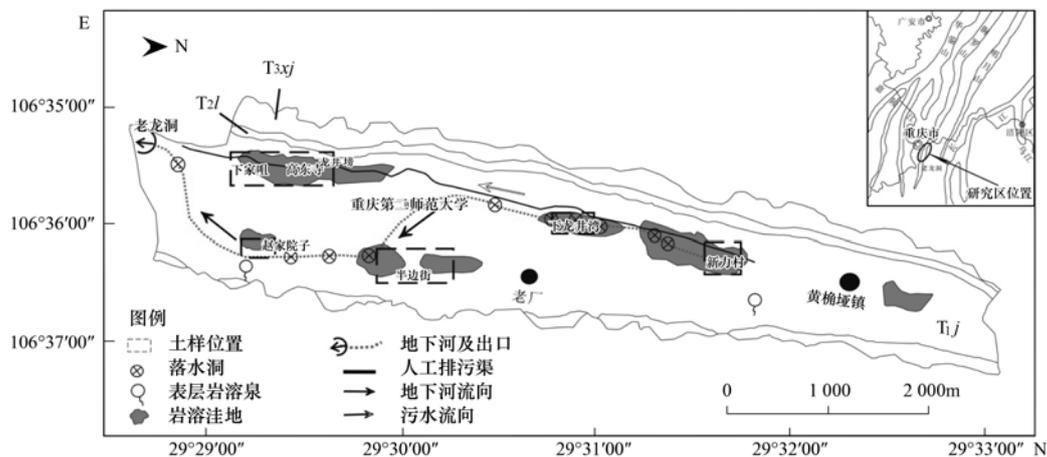


图 1 研究区位置和表层土壤采样位置

Fig. 1 Location and hydrogeological map of study area

1.3 主要试剂

样品分析所用的正己烷,二氯甲烷试剂购自美国 Fisher 公司,均为农残级;无水硫酸钠(分析纯)于烘箱中 480℃ 灼烧 5~6 h,置于干燥器中冷却备用;硅胶和氧化铝经二氯甲烷抽提 72 h 后,分别于 130℃ 和 450℃ 活化 24 h,待冷却至常温后再加入其质量 3% 的超纯水降活,平衡过夜,加入正己烷储于干燥器中备用;滤纸和脱脂棉经二氯甲烷抽提 72 h 后烘干,密封干燥备用. 美国 EPA 规定的 16 种优

控 PAHs 混标购自德国 Dr. Ehrnstorfer 公司;5 种回收率指示物为:氘代萘(Nap-D₈)、氘代二氢萘(Ace-D₁₀)、氘代菲(Phe-D₁₀)、氘代蒽(Chr-D₁₂)、氘代芘(Per-D₁₂);内标物质为六甲基苯(HMB),购自美国 Supelco 公司.

1.4 分析步骤

准确称取 10 g 土样,加 10 g 焙烧过的无水硫酸钠混匀后,加入回收率指示物,用抽提过的滤纸包样,活化铜片脱硫,用 125 mL 二氯甲烷连续提取 24

h, 用平底烧瓶收集萃取物并浓缩至 5 mL. 用氧化铝和硅胶层析柱层析净化, 淋洗后的液体经浓缩、置换溶剂后, 转移至 2 mL 细胞瓶中, 氮吹至 0.2 mL, 最后加入 4 μ L 内标物(六甲基苯)放入冰箱中待测.

使用气相色谱-质谱联用仪(GC-MS, Agilent, 7890A/5975C), 进行 PAHs 检测. 检测条件: 色谱柱为 HP-5MS 毛细管柱(30.0 m \times 0.32 mm \times 0.25 μ m); 载气为高纯氮气, 流速为 1 mL \cdot min $^{-1}$, 进样口温度 280 $^{\circ}$ C, 升温程序为初始温度 50 $^{\circ}$ C, 保持 1 min 后以 20 $^{\circ}$ C \cdot min $^{-1}$ 升温至 200 $^{\circ}$ C, 然后再以 10 $^{\circ}$ C \cdot min $^{-1}$ 的速度升温至 290 $^{\circ}$ C, 保持 15 min. 采用无分流方式进样, 进样量 1 μ L. EI 电离源 70 eV, 离子源温度 300 $^{\circ}$ C, 同时采集全扫描数据和选择离子扫描数据, 以全扫描数据定性, 选择离子扫描数据定量. 使用内标法和多点校正曲线对多环芳烃进行定量分析.

1.5 质量控制与质量保证

每分析 10 个样品同时做空白样品、加标样品、加标平行样品和样品平行样. 每个样品在抽提前加入回收率指示物, 用于检测实验过程中的损失情况, 空白样用于确认实验结果的再现性. 该方法的 PAHs 基质加标回收率除 Nap 的较低外, 平均值为 62%, 其他 PAHs 的基质加标回收率介于 76% ~ 115% 之间, 替代标准氘代萘(Nap-D₈)的回收率为 58% ~ 75%、氘代二氢萘(Ace-D₁₀)的为 89.5% ~ 105%、氘代菲(Phen-D₁₀)为 91.2% ~ 106.3%、氘代蒽(Chr-D₁₂)的为 90.6% ~ 107.5%、氘代芘(Per-D₁₂)的为 89% ~ 112%. 以 10 g 土壤样品计算的方法检出下限范围为 0.5 ~ 3.1 ng \cdot g $^{-1}$.

1.6 土壤有机碳和 pH 值的测定

土壤有机碳采用重铬酸钾氧化外加加热法(丘林法)测定, 土壤 pH 值按水土比 1:2.5, 充分搅拌 1 min 后, 使用便携式 pH 计测定.

2 结果与讨论

2.1 地下河流域表层土壤多环芳烃含量及组成

老龙洞流域表层土壤 PAH 化合物含量及百分比统计见表 1. 结果表明, 流域内不同地点表层土壤 16 种 PAHs 总量 \sum PAHs 变化范围为 277 ~ 3 301 ng \cdot g $^{-1}$, 平均值为 752.6 ng \cdot g $^{-1}$ \pm 635.5 ng \cdot g $^{-1}$; 7 种致癌性 PAH 化合物总量 \sum PAH_{scarce} 变化范围为 72.1 ~ 1 800 ng \cdot g $^{-1}$, 平均占到 \sum PAHs 的

36.17%.

从组成来看, 2 ~ 3 环 PAHs 含量最高, 平均为 326.9 ng \cdot g $^{-1}$, 最高值大于 1 000 ng \cdot g $^{-1}$, 占总量的质量分数为 28.72% ~ 72.68%, 平均值为 48.20%; 其次是 5 ~ 6 环, 平均含量为 286.4 ng \cdot g $^{-1}$, 最高值达到 1 559 ng \cdot g $^{-1}$, 平均占到总量的 34.03%, 最低为 4 环, 占到 17.77%. 从单种 PAH 化合物来看, Nap 含量最高, 平均含量 48.9 ~ 449.7 ng \cdot g $^{-1}$, 占到总量的 21.66%; 此外, 低环中 Flu、Phe 含量也较高, 分别占到总量的 10.12%、10.32%. 在高环中以 Chry、BbF 和 BgP 含量最高, 分别占到总量的 8.66%、8.16% 和 8.54%.

2.2 表层土壤有机质、pH 值与多环芳烃的关系

研究表明土壤 PAHs 含量通常与有机碳(TOC)显著相关^[20,21]. 因此, 土壤有机质(SOM)被认为是影响土壤 PAHs 污染的重要因素^[22]. 研究区表层土壤 SOM 含量范围为 30.62 ~ 73.57 g \cdot kg $^{-1}$, 平均值为 45.33 g \cdot kg $^{-1}$, pH 平均值为 7.6, 变化范围为 5.6 ~ 8.2. 由表 2 可知, 除了 Nap 以外, 其余 PAH 化合物及 PAHs 总量均与土壤 SOM 显著相关, 表明土壤 SOM 可能是影响 PAHs 含量的主要因素, 尽管每个采样点土壤来源可能会有所差异. 尤其是高环 PAHs 与土壤 SOM 的相关性相对中低环较强, 可能的原因是高环 PAHs 由于强亲脂性, 难降解性, 更容易被 SOM 吸附, 而中低环 PAHs 挥发性较高, 溶解性相对大, 更容易挥发和迁移. 另外, 土壤 pH 值与 PAH 化合物相关性不强, 这与 Dai 等^[23]的研究相一致.

2.3 土壤多环芳烃的污染程度

研究区 16 种 \sum PAHs 变化范围为 277 ~ 3 301 ng \cdot g $^{-1}$. 由表 3 可知, 这一数值明显高于青藏高原、西藏等偏远地区^[24,25], 也高于珠三角的东莞农田及长三角地区的苏州农田^[8,10]. 相对于北京、天津等工业发达地区较低^[6,26], 低于四川工业区^[27]. 从岩溶区来看, 该值低于重庆南川岩溶区, 高于相对偏远的广西乐业岩溶天坑. 目前, 我国尚未制定土壤 PAHs 质量标准. 根据 Maliszewska-Kordybach 等^[28]制定的土壤 PAHs 污染标准(PAH 含量小于 200 ng \cdot g $^{-1}$ 为无污染土壤, 200 ~ 600 ng \cdot g $^{-1}$ 为轻污染土壤, 600 ~ 1 000 ng \cdot g $^{-1}$ 为污染土壤, 大于 1 000 ng \cdot g $^{-1}$ 为重污染土壤), 研究区所有采样点土壤 PAHs 含量均超过 200 ng \cdot g $^{-1}$, 表明均受到污染; 57% 的土壤样品在 200 ~ 600 ng \cdot g $^{-1}$ 范围内, 为轻污染土壤; 29% 的土壤样品归为污染土壤, 而 14% 的

表 1 老龙洞流域表层土壤 PAH 含量及百分比统计¹⁾

Table 1 Concentrations and contributions of individual PAHs in surface soil in Laolongdong basin

PAH	含量/ng·g ⁻¹				占 ∑ PAHs 百分比/%		
	Mean	Min	Max	SD	Mean	Min	Max
Nap	145.8	48.86	449.7	92.6	21.66	9.62	48.3
Acy	17.81	6.70	47.92	11.36	2.62	1.33	5.90
Ace	18.60	8.06	45.06	9.07	2.90	1.37	4.94
Flu	66.30	22.3	176.4	37.27	10.12	5.10	19.91
Phe	73.38	32.5	306.9	58.15	10.32	6.09	15.42
Ant	4.96	1.06	25.76	6.69	0.57	0.20	2.33
Fla	30.32	1.85	153.8	30.83	4.09	0.15	6.59
Pyr	23.14	0.49	126.1	25.70	3.00	0.04	4.72
BaA*	16.52	4.26	86.37	17.79	2.02	0.90	3.32
Chry*	69.32	17.9	327.0	67.96	8.66	3.90	13.16
BbF*	60.32	0.87	274.6	57.42	8.16	0.07	14.81
BkF*	54.54	3.89	369.4	79.83	5.86	1.40	14.20
BaP*	20.10	3.24	113.8	24.20	2.29	0.74	4.31
InP*	40.79	3.83	128.7	34.65	5.50	0.81	11.27
DaA*	48.41	1.31	500.9	117.2	3.67	0.28	21.55
BgP	62.27	5.40	171.9	43.25	8.54	1.14	13.54
2+3环	326.9	159.6	1048	193.7	48.20	28.72	72.68
4环	139.3	47.18	693.3	137.8	17.77	11.02	25.76
5+6环	286.4	70.64	1559	325.9	34.03	15.67	52.05
∑ PAHscarc	309.9	72.08	1800.81	373.8	36.17	18.82	54.55
∑ PAHs	752.6	277.4	3301	635.5			

1) * 为致癌性 PAHs, ∑ PAHscarc 为 7 种致癌性 PAHs 总量, ∑ PAHs 为 16 种 PAHs 总量

表 2 表层土壤 PAH 化合物与土壤 SOM、pH 的关系¹⁾

Table 2 Correlation between PAH and SOM, pH values in surface soil

	Nap	Acy	Ace	Flu	Phe	Ant	Fla	Pyr	BaA	Chry	BbF	BkF	BaP	InP	DaA	BgP	∑ PAHs
SOM	0.42	0.49*	0.63**	0.71**	0.65**	0.61**	0.64**	0.64**	0.72**	0.72**	0.62**	0.67**	0.72**	0.80**	0.64**	0.75**	0.72**
pH	0.25	0.24	0.31	0.41	0.24	0.28	0.22	0.23	0.26	0.25	0.22	0.19	0.28	0.25	0.18	0.20	0.26

1) * 为 $P < 0.05$ 显著相关, ** 为 $P < 0.01$ 显著相关

表 3 不同地区土壤 16 种 PAHs 含量比较¹⁾

Table 3 Comparisons of PAHs in soils among different areas

城市	土壤类型	16 PAHs/ng·g ⁻¹			文献
		最低值	最高值	平均值	
北京	城区	467	5470	1637	[26]
四川	工业区	617	2269	1442	[27]
东莞	农田	29	4079	413	[10]
苏州	农田	45.4	3703	312.5	[8]
天津	农田	1083	6248	—	[6]
西藏拉鲁	湿地	82	2834	236	[24]
青藏高原东部	耕地、河滩、山坡等	0.83	14.41	3.98	[25]
重庆南川岩溶区	耕地、林地、草地	439	3329	1271	[15]
广西乐业岩溶区	天坑地表土壤	75.2	373.8	120.7	[16]
	天坑绝壁土壤	19.9	330.8	131.9	
	天坑底部土壤	127.5	661.6	395.2	
	洞穴土壤	1132	1750	1412	
本研究区	农田	277	3301	752.6	

1) “—”表示文章中没有相关数据

土壤样品遭受重污染。

2.4 土壤多环芳烃的主要来源

多环芳烃同分异构体可以用来判别环境中 PAHs 的来源^[1],不同的比值指示不同的来源.此外,2,3 环低分子量(LMW)主要来自有机物的低温转化和石油产品的泄漏,代表石油源,4 环以上的高环(HMW)PAHs 主要来自煤等化石燃料的燃烧,代表的是燃烧源^[29],即 LMW/HMW < 1 代表来自燃烧源,大于 1 则指示石油源.有研究表明,Ant 的光降解速度要快于 Phe,从而可能导致 Ant/(Ant + Phe) 比值偏小^[1].因此采用其进行源分析可能导致较大的误差.这里仅用 Fla/(Fla + Pyr)、BaA/(BaA + Chry)和 InP/(InP + BgP)三组比值,并结合 LMW/HMW 比值进行分析.由图 2 可知,研究区表土中 LMW/HMW 比值既有大于 0.1,也有小于 0.1 的,指示既有燃烧源也有石油源;Fla/(Fla + Pyr) 比值均大于 0.5,指示 PAHs 主要来自木材、煤等生物质的燃烧;BaA/(BaA + Chry) 比值主要集中在 0 ~ 0.2 和 0.2 ~ 0.35,指示石油源及混合源;InP/(InP + BgP) 比值显示为石油燃烧源.

主成分分析(PCA)方法有助于更加准确地判别

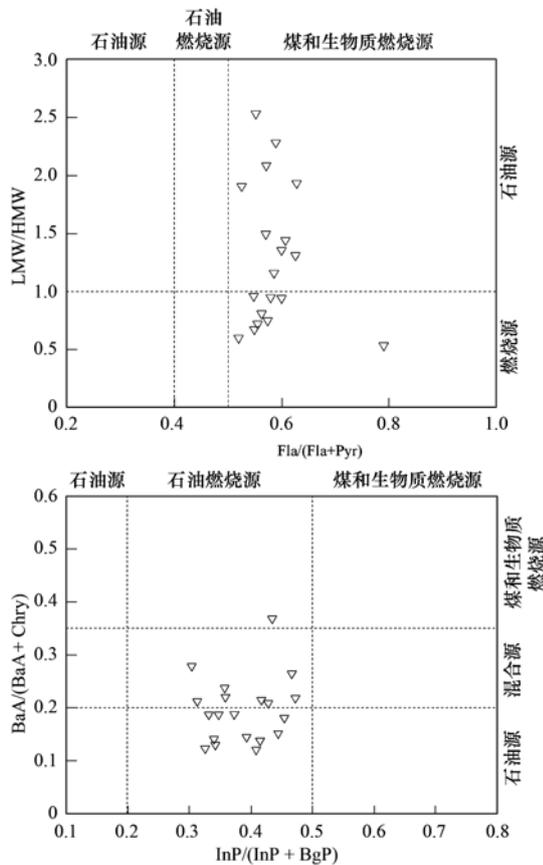


图 2 研究区土壤环境中 LMW/HMW 与同分异构体比值

Fig. 2 LMW/HMW ratios and isomeric ratios in soil of study area

多环芳烃的来源,常被用来解析土壤多环芳烃的来源.从表 4 可以看出,老龙洞流域农田土壤中 16 种 PAHs 的 2 个主成分累计方差贡献率为 85.9%,主成分贡献率分别为 78.71% 和 7.27%.结合图 3 可知,第 1 主成分中,4 环以上的 PAH 化合物具有较高的载荷,研究者^[30,31]指出 BgP 是交通排放的特征多环芳烃,主要来自石油的高温燃烧过程^[32],交通排放还会带来大量的 Chry^[33],此外,BaA 是汽油和柴油燃烧产生的重要化合物^[34],InP 是柴油燃烧重要的指示物^[35];另外,Ant、Phe、Fla、Pyr、BbF、BkF 也在第 1 主成分上具有较高的载荷,高载荷的这些化合物是煤炭燃烧的典型指示化合物^[30,33,36,37].因此,第 1 主成分代表的是交通排放与煤炭、石油及生物质的燃烧的混合源.在第 2 主成分中,以 Ace、Flu、Acy 等低环 PAHs 相关性较高,代表了中低温转化的石油源.这与比值法分析结果一致.

表 4 表土 PAHs 主成分因子旋转载荷

Table 4 Factor loadings for PAHs in surface soil in principal component analysis with varimax rotation

多环芳烃 英文名称(中文名称)	环数	主成分	
		1	2
Nap(萘)	2	0.338	0.849
Acy(苊烯)	3	0.388	0.762
Ace(苊)	3	0.286	0.900
Flu(芴)	3	0.365	0.825
Phe(菲)	3	0.753	0.585
Ant(蒽)	3	0.696	0.403
Fla(荧蒽)	4	0.766	0.528
Pyr(芘)	4	0.790	0.503
BaA(苯并[a]蒽)	4	0.846	0.505
Chry(蒽)	4	0.870	0.448
BbF(苯并[b]荧蒽)	5	0.835	0.393
BkF(苯并[k]荧蒽)	5	0.755	0.556
BaP(苯并[a]芘)	5	0.877	0.457
InP(茚并[1,2,3-cd]芘)	6	0.900	0.203
DaA(二苯并[a,h]蒽)	5	0.724	0.515
BgP(苯并[g,h,i]芘)	6	0.876	0.206
提取主成分方差/%		77.56	7.82
累计方差/%		77.56	85.37

结合研究区环境背景,流域内的汽修、电焊等汽油、柴油的洒漏以及场地冲洗和洗车过程产生的含油废水排放会使土壤遭受石油污染.而老龙洞景区、水泥厂和采石场带来的交通流,汽车尾气的排放、企业生产燃煤、垃圾焚烧、成为流域多环芳烃的燃烧来源.另外,不能排除大气远距离传输带入流域的来源.

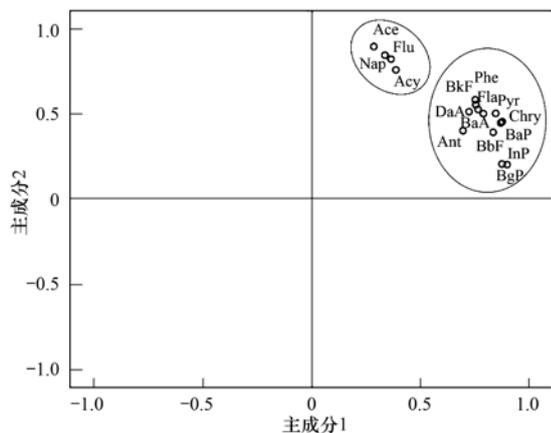


图3 研究区表层土壤 PAHs 因子载荷

Fig. 3 Factor loadings for PAHs in surface soil of the study area

3 结论

(1)老龙洞流域表层土壤 PAHs 总量变化范围为 $277 \sim 3\,301 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$,以 2~3 环为主,其污染水平达到轻、中等和重污染水平,其中以中等污染水平为主,同其他地区相比,其污染水平介于他们之间。

(2)除了 Nap 以外,其余 PAH 化合物及 PAHs 总量均与土壤 SOM 显著相关,表明土壤 SOM 可能是影响 PAHs 含量的主要因素。

(3)比值法和主成分分析 (PCA) 分析表明,流域内土壤主要来自交通排放与煤炭、石油及生物质的燃烧的混合源以及石油产品泄漏等石油源。仅从流域污染源来看,流域内的汽修、电焊等汽油、柴油的洒漏以及场地冲洗和洗车过程产生的含油废水排放为石油源。而老龙洞景区、水泥厂和采石场带来的交通流,汽车尾气的排放、企业生产燃煤、垃圾焚烧、为燃烧源的主要贡献。

致谢:在野外和室内工作中得到西南大学地理科学学院老师和同学的帮助,在此一并致谢!

参考文献:

- [1] Yunker M R, Macdonald R W, Vingarzan R, *et al.* PAHs in the Fraser River basin: a critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition [J]. *Organic Geochemistry*, 2002, **33**(4): 489-515.
- [2] Johnsen A R, Karlson U. Diffuse PAH contamination of surface soils: environmental occurrence, bioavailability, and microbial degradation[J]. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2007, **76**(3): 533-543.
- [3] Srogi K. Monitoring of environmental exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons: a review [J]. *Environmental Chemistry Letters*, 2007, **5**(4): 169-195.
- [4] Tao S, Cao H Y, Liu W X, *et al.* Fate modeling of phenanthrene with regional variation in Tianjin, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, **37**(11): 2453-2459.
- [5] Song Y F, Wilke B M, Song X Y, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), polychlorinated biphenyls (PCBs) and heavy metals (HMs) as well as their genotoxicity in soil after long-term wastewater irrigation [J]. *Chemosphere*, 2006, **65**(10): 1859-1868.
- [6] Tao S, Cui Y H, Xu F L, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in agricultural soil and vegetables from Tianjin [J]. *Science of the Total Environment*, 2004, **320**(1): 11-24.
- [7] 段永红,陶澍,王学军,等. 天津表土中多环芳烃含量的空间分布特征与来源 [J]. *土壤学报*, 2005, **42**(6): 942-947.
- [8] 刘增俊,滕应,黄标,等. 长江三角洲典型地区农田土壤多环芳烃分布特征与源解析 [J]. *土壤学报*, 2010, **47**(6): 1110-1117.
- [9] Ping L F, Luo Y M, Zhang H B, *et al.* Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in thirty typical soil profiles in the Yangtze River Delta region, east China [J]. *Environmental Pollution*, 2007, **147**(2): 358-365.
- [10] 张天彬,万洪富,杨国义,等. 珠江三角洲典型城市农业土壤及蔬菜中的多环芳烃分布 [J]. *环境科学学报*, 2008, **28**(11): 2375-2384.
- [11] Cai Q Y, Mo C H, Li Y H, *et al.* Occurrence and assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils from vegetable fields of the Pearl River Delta, South China [J]. *Chemosphere*, 2007, **68**(1): 159-168.
- [12] Ford D C, Williams P. *Karst hydrogeology and geomorphology* [M]. Chichester: John Wiley & Sons, 2007.
- [13] Wang Y H, Qi S H, Chen J H, *et al.* Concentration, distribution and sources of polyaromatic hydrocarbons in soils from the Karst Tiankengs, South China [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2009, **83**(5): 720-726.
- [14] Wang Y H, Xue R, Li J, *et al.* Compositional fractionation of polyaromatic hydrocarbons in the karst soils, South China [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2012, **66**(7): 2013-2019.
- [15] 孙玉川,沈立成,袁道先. 表层岩溶带土壤中多环芳烃分布特征及来源解析 [J]. *中国岩溶*, 2013, **32**(1): 79-87.
- [16] 孔祥胜,祁士华,蒋忠诚,等. 广西大石围巨型漏斗土壤中多环芳烃与环境因素 [J]. *环境科学*, 2012, **33**(11): 3905-3915.
- [17] 孔祥胜,祁士华,Oramah I T,等. 广西大石围天坑群地下河水中多环芳烃的污染特征 [J]. *环境科学*, 2011, **32**(4): 1081-1087.
- [18] 杨梅. 典型岩溶区地下河有机污染物控制因素及运移特征研究——以重庆南山岩溶槽谷区为例 [D]. 重庆:西南大学, 2010.
- [19] Alam M J, Yuan DX, Jiang Y J, *et al.* Sources and transports of polycyclic aromatic hydrocarbons in the Nanshan Underground River, China [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2014, **71**(4): 1967-1976.
- [20] Willeke W, Muller S, Kanchanakool N, *et al.* Polycyclic

- aromatic hydrocarbons in hydromorphic soils of the tropical metropolis Bangkok [J]. *Geoderma*, 1999, **91** (3-4): 297-309.
- [21] Tang X Y, Tang L, Zhu Y G, *et al.* Assessment of the bioaccessibility of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils from Beijing using an in vitro test [J]. *Environmental Pollution*, 2006, **140**(2): 279-285.
- [22] Boehm P D, Burns W A, Page D S, *et al.* Total organic carbon, an important tool in an holistic approach to hydrocarbon source fingerprinting[J]. *Environmental Forensics*, 2002, **3** (3-4): 243-250.
- [23] Dai J L, Li S J, Zhang Y L, *et al.* Distributions, sources and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in topsoil at Ji'nan city, China [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2008, **147**(1-3): 317-326.
- [24] 祁土华, 张干, 刘建华, 等. 拉萨市城区大气和拉鲁湿地土壤中的多环芳烃[J]. *中国环境科学*, 2003, **23** (4): 349-352.
- [25] 孙娜, 陆晨刚, 高翔, 等. 青藏高原东部土壤中多环芳烃的污染特征及来源解析[J]. *环境科学*, 2007, **28** (3): 664-668.
- [26] Li X H, Ma L L, Lin X F, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbon in urban soil from Beijing, China [J]. *Journal of Environmental Science*, 2006, **18** (5): 944-950.
- [27] 史兵方, 杨秀培, 刘细祥. 土壤中多环芳烃的分布特征及其来源分析[J]. *农业环境科学学报*, 2010, **29**(5): 904-909
- [28] Maliszewska-Kordybach B, Klimkowicz-Pawlas A, Smreczak B, *et al.* Ecotoxic effect of phenanthrene on nitrifying bacteria in soils of different properties [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2007, **36**(6): 1635-1645.
- [29] Soclo H H, Garrigues P, Ewald M. Origin of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Coastal Marine Sediments: Case Studies in Cotonou (Benin) and Aquitaine (France) Areas [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2000, **40**(5): 387-396.
- [30] Simcik M F, Eisenreich S J, Liou P J. Source apportionment and source/sink relationships of PAHs in the coastal atmosphere of Chicago and Lake Michigan [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(30): 5071-5079.
- [31] Nielsen T, Jorgensen H E, Larsen J C, *et al.* City air pollution of polycyclic aromatic hydrocarbons and other mutagens: occurrence, sources and health effects [J]. *Science of the Total Environment*, 1996, **189-190**: 41-49.
- [32] 王震. 辽宁地区土壤中多环芳烃的污染特征、来源及致癌风险[D]. 大连: 大连理工大学, 2007.
- [33] Harrison R M, Smith D J T, Luhana L. Source apportionment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons collected from an urban location in Birmingham, U. K [J]. *Environmental Science Technology*, 1996, **30**(3): 825-832.
- [34] Lee J H, Gigliotti C L, Offenberg J H, *et al.* Sources of polycyclic aromatic hydrocarbons to the Hudson River Airshed [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, **38**(35): 5971-5981.
- [35] Li C K, Kamens R M. The use of polycyclic aromatic hydrocarbons as source signatures in receptor modeling [J]. *Atmospheric Environment*, 1993, **27**(4): 523-532.
- [36] Bzdusek P A, Christensen E R, Li A, *et al.* Source apportionment of sediment PAHs in Lake Calumet, Chicago: Application of factor analysis with nonnegative constraints [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(1): 97-103.
- [37] Larsen R K, Baker J E. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere: A comparison of three methods [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, **37**(9): 1873-1881.

CONTENTS

Chemical Characteristics in Airborne Particulate Matter (PM ₁₀) During a High Pollution Spring Dust Storm Episode in Beijing, Tianjin and Zhangjiakou, China	LIU Qing-yang, LIU Yan-ju, ZHAO Qiang, <i>et al.</i> (2843)
Distribution of Atmospheric Ultrafine Particles During Haze Weather in Hangzhou	CHEN Qiu-fang, SUN Zai, XIE Xiao-fang (2851)
Effect of Meteorological Factors on Characteristics of PCDD/F Pollution in Guangzhou	DU Guo-yong, SU Yuan, REN Ming-zhong, <i>et al.</i> (2857)
Atmospheric CO ₂ Data Filtering Method and Characteristics of the Molar Fractions at the Longfengshan WMO/GAW Regional Station in China	LUAN Tian, ZHOU Ling-xi, FANG Shuang-xi, <i>et al.</i> (2864)
Influence of Atmospheric Transport on Air Pollutant Levels at a Mountain Background Site of East China	SU Bin-bin, XU Ju-yang, ZHANG Ruo-yu, <i>et al.</i> (2871)
Determining the Concentration of Coating Solution Attaching to Honeycomb Denuder in Summer in Tianjin	ZHANG Shi-jian, JI Ya-qin, ZHANG Lei-bo, <i>et al.</i> (2878)
Characterization of Lead Size Distributions with Different Process in Lead-Zinc Smelter	LIANG Jun-ning, LI Wen-hui, GE Yi, <i>et al.</i> (2883)
Effect of KI Modified Clay on Elemental Mercury Removal Efficiency	SHEN Bo-xiong, CHEN Jian-hong, CAI Ji, <i>et al.</i> (2890)
Characteristics of Odors and VOCs from Sludge Direct Drying Process	CHEN Wen-he, DENG Ming-jia, LUO Hui, <i>et al.</i> (2897)
Research of Early-warning Method for Regional Groundwater Pollution Based on Risk Management	BAI Li-ping, WANG Ye-yao, GUO Yong-li, <i>et al.</i> (2903)
Dynamic Response of Riverine Nitrate Flux to Net Anthropogenic Nitrogen Inputs in A Typical River in Zhejiang Province over the 1980-2010 Period	ZHANG Bai-fa, CHEN Ding-jiang (2911)
Research on the Influence of Urban Land Use Structure and Pattern on Nitrogen, Phosphorus of Wetland Water Environment in Xianlin New Town of Nanjing	CAI Chun-xiao, LIU Hong-yu, LI Yu-feng, <i>et al.</i> (2920)
Profile Nutrient Distribution and Sedimentary Characteristics in Typical Marshes of Sanjiang Plain	LI Rui-li, CHAI Min-wei, QIU Guo-yu, <i>et al.</i> (2928)
Source and Contamination of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Soil in Karst Underground River Basin	LAN Jia-cheng, SUN Yu-chuan, SHI JIAN, <i>et al.</i> (2937)
Diel Variations of Hydrochemistry and Influencing Factors in a Surface Stream in Subtropical Karst Area, SW China	ZHANG Tao, PU Jun-bing, YUAN Dao-xian, <i>et al.</i> (2944)
Hydrogen and Oxygen Isotopes of Lake Water and Geothermal Spring Water in Arid Area of South Tibet	XIAO Ke, SHEN Li-cheng, WANG Peng (2952)
Preliminary Research on the Feature of Dissolved Inorganic Carbon in Wulixia Reservoir in Summer, Guangxi, China	LIU Wen, PU Jun-bing, YU Shi, <i>et al.</i> (2959)
Distribution of Heavy Metals in Xiangsi River Valley of Tongling, China	CHEN Li-wei, XU Xiao-chun, WANG Jun, <i>et al.</i> (2967)
Volume Fraction of Gas Vesicle and Floating Characteristics of Cyanobacteria in Taihu Lake Under Different Pressures	WANG Wei, CONG Hai-bing, XU Ya-jun, <i>et al.</i> (2974)
Degradation of Dimethyl Phthalate by Ti(IV)-catalyzed O ₃ /H ₂ O ₂ Under Acidic Conditions	GAO Yan, SHEN Tong-dong, CHEN Yao, <i>et al.</i> (2980)
Influence of Inorganic Ions and Humic Acid on the Removal of Pb(II) and Hg(II) in Water by Zero-Valent Iron	SHI Qiu-ling, ZHOU Xin, ZHANG Jin-zhong, <i>et al.</i> (2985)
Synthesis of Hydroxyapatite/Magnetite/Zelite Composite for Congo Red Removal from Aqueous Solution	FANG Qiao, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (2992)
Corrosion of Stainless Steel 201, 304 and 316L in the Simulated Sewage Pipes Reactor	BAO Guo-dong, ZUO Jian-e, WANG Ya-jiao, <i>et al.</i> (3002)
Experimental Study of Adhesion Properties Between Membrane Surface and Humic Acid During Microfiltration	WANG Lei, WANG Lei, HUANG Dan-xi, <i>et al.</i> (3007)
Coating Modification of Anthracite Substrates in Vertical-flow Constructed Wetlands by LDHs Synthesized from Different Metal Compounds and the Nitrogen Removal Efficiencies	ZHANG Xiang-ling, GUO Lu, CHEN Jun-jie, <i>et al.</i> (3012)
Atrazine Wastewater Treatment in a SPG Membrane-Aerated Genetically Engineered Microorganism Biofilm Reactor	LIU Chun, GONG Peng-fei, XIAO Tai-min, <i>et al.</i> (3018)
Influencing Factors for Operational Performance of a Biofilm Reactor with Microbubble Aeration Using SPG Membrane	ZHANG Lei, ZHANG Ming, LIU Chun, <i>et al.</i> (3024)
Variations in the Active Characteristics of Sludge During the Operation of an Aerobic Membrane Bioreactor and Their Effects on Membrane Fouling	CHEN Xuan, TANG Bing, ZHANG Zi, <i>et al.</i> (3031)
Effects of Anaerobic Feeding Period on Nitrifying Granular	LIU Wen-ru, YIN Fang-fang, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (3038)
Influencing Factors of Sludge Liquor Treatment in UASBB	LI Ya-feng, MA Chen-xi, ZHANG Chi (3044)
Background Values of As and Hg in Surface Dusts in the Vicinity of Kaifeng City and Their Application	CHEN Yan-fang, MA Jian-hua, DONG Yun-wu, <i>et al.</i> (3052)
Concentrations and Health Risks of Toxic Metals in Surface Dust in Kindergartens of Beijing	DUAN Heng-yi, WU Ya-tao, WANG Jue, <i>et al.</i> (3060)
Polychlorinated Biphenyls in House Dust at an E-waste Site and Urban Site in the Pearl River Delta, Southern China; Sources and Human Exposure and Health Risks	ZHU Zhi-cheng, CHEN She-jun, DING Nan, <i>et al.</i> (3066)
Responses of Soil Total Organic Carbon and Dissolved Organic Carbon to Simulated Nitrogen Deposition in Temperate Typical Steppe in Inner Mongolia, China	QI Yu-chun, PENG Qin, DONG Yun-she, <i>et al.</i> (3073)
Effects of Different Fertilizer Species on Carbon and Nitrogen Leaching in a Reddish Paddy Soil	LIU Xi-yu, ZOU Jing-dong, XU Li-li, <i>et al.</i> (3083)
Effects of Low Molecular Weight Organic Acids on Speciation of Exogenous Cu in an Acid Soil	HUANG Guo-yong, FU Qing-ling, ZHU Jun, <i>et al.</i> (3091)
Evaluation of Compounding EDTA and Citric Acid on Remediation of Heavy Metals Contaminated Soil	YIN Xue, CHEN Jia-jun, CAI Wen-min (3096)
Soil Biochemical Characteristics in Different Ecological Systems and Their Relationships with Soil Respiration and N ₂ O Emission	CHEN Ling, FAN Hui, JIANG Jing-yan (3102)
Contribution of Different Processes in Wetland Soil N ₂ O Production in Different Restoration Phases of the Yellow River Estuary, China	SUN Wen-guang, SUN Zhi-gao, GAN Zhuo-ting, <i>et al.</i> (3110)
Effects of Combined Applications of Pig Manure and Chemical Fertilizers on CH ₄ and N ₂ O Emissions and Their Global Warming Potentials in Paddy Fields with Double-Rice Cropping	WANG Cong, SHEN Jian-lin, ZHENG Liang, <i>et al.</i> (3120)
Influence of Ozone on Snap Bean Under Ambient Air in Two Sites of Northern China	YUAN Xiang-yang, ZHANG Wei-wei, SUN Jing-song, <i>et al.</i> (3128)
Arbuscular Mycorrhizal Symbiosis Influences the Biological Effects of Nano-ZnO on Maize	WANG Wei-zhong, WANG Fa-yuan, LI Shuai, <i>et al.</i> (3135)
Effect of Arbuscular Mycorrhizae on Growth, Heavy Metal Uptake and Accumulation of <i>Zenia insignis</i> Chun Seedlings	LI Xia, PENG Xia-wei, WU Song-lin, <i>et al.</i> (3142)
Effects of Phosphorus-containing Substances on Arsenic Uptake by Rice	LEI Ming, ZENG min, LIAO Bo-han, <i>et al.</i> (3149)
Ecotoxicological Effect and Soil Environmental Criteria of the Heavy Metal Chromium(VI)	WANG Xiao-nan, LIU Zheng-tao, WANG Wan-hua, <i>et al.</i> (3155)
Promotion Effects of Vitamin B ₁₂ on the Degradation of 2,4,4'-Trichlorobiphenyl by <i>Nostoc</i> PD-2	LIU Jia-yu, XIAO Wen-feng, LU Li-ping, <i>et al.</i> (3162)
Isolation, Identification and Characterization of a Diethylstilbestrol-degrading Bacterial Strain <i>Serratia</i> sp.	XU Ran-fang, SUN Min-xia, LIU Juan, <i>et al.</i> (3169)
Distribution of Polybrominated Diphenyl Ethers in Wild Crucian Carp and Exposure Estimation of Dietary Intake	WANG Jun-xia, WANG Chun-yan, LIU Li-li, <i>et al.</i> (3175)
Cloning of Full-length cDNA of HMGR from <i>Gobiocypris rarus</i> and Analysis of Its Expression Profiles in Male Exposed to Pentachlorophenol	DENG Chuan, MAO Si-yu, XIONG Li, <i>et al.</i> (3183)
Effects of Algae and Kaolinite Particles on the Survival of Bacteriophage MS2	HE Qiang, WU Qing-qing, MA Hong-fang, <i>et al.</i> (3192)
Adsorption Kinetics and Mechanism of Lead(II) on Polyamine-Functionalized Mesoporous Activated Carbon	LI Kun-quan, WANG Yan-jin, YANG Mei-rong, <i>et al.</i> (3198)
Influence of Biological Activated Carbon Dosage on Landfill Leachate Treatment	CUI Yan-ni, GUO Yan, WU Qing, <i>et al.</i> (3206)
Effect of Economic Structure Adjustment on Pollution Emission: A Case Study of COD	LI Ming-sheng, ZHOU Lei, CHEN Yuan-hang, <i>et al.</i> (3212)
Reasons for the Changes in Anthropogenic Lead Flows of China	MA Lan, MAO Jian-su (3219)
Discussion on Reduction Potential of CH ₄ Emission Intensity for Early Off-take Practice of Grazing Yak	WANG Shi-ping, Andreas Wilkes, WANG Ya-yun, <i>et al.</i> (3225)
Review of Dual Stable Isotope Technique for Nitrate Source Identification in Surface- and Groundwater in China	XU Zhi-wei, ZHANG Xin-yu, YU Gui-ru, <i>et al.</i> (3230)

《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8月15日 第35卷 第8期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 8 Aug. 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