

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第7期

Vol.36 No.7

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

2013年12月中国中东部地区严重灰霾期间上海市颗粒物的输送途径及潜在源区贡献分析	李莉, 蔡蓓琳, 周敏 (2327)
长三角冬季一次霾过程气溶胶及其水溶性离子的区域分布特征	王曼婷, 朱彬, 王红磊, 薛国强, 何俊, 徐宏辉, 曹锦飞 (2337)
北京城区大气 PM _{2.5} 主要化学组分构成研究	刘保献, 杨懂艳, 张大伟, 陈添, 赵红帅, 陈圆圆, 陆皓昀 (2346)
2014年春季山东省 PM _{2.5} 跨界输送研究	贾海鹰, 程念亮, 何友江, 陈云波, 杜晓惠, 单晓丽 (2353)
燃煤电厂产生和排放的 PM _{2.5} 中水溶性离子特征	马子珍, 李振, 蒋靖坤, 叶芝祥, 邓建国, 段雷 (2361)
南京夏季城市冠层大气 CO ₂ 浓度时空分布规律的观测	高韵秋, 刘寿东, 胡凝, 王淑敏, 邓力琛, 于洲, 张圳, 李旭辉 (2367)
北京市机动车尾气排放因子研究	樊守彬, 田灵娣, 张东旭, 曲松 (2374)
北京不同污染地区园林植物对空气颗粒物的滞纳能力	张维康, 王兵, 牛香 (2381)
长三角地区火电行业主要大气污染物排放估算	丁青青, 魏伟, 沈群, 孙予罕 (2389)
基于区域循环模型 IAP-N 的安徽省农用地 N ₂ O 排放量估算	韩云芳, 韩圣慧, 严平 (2395)
不同源汇信息提取方法对区域 CO ₂ 源汇估算及其季节变化的影响评估	张芳, 周凌晔, 王玉诏 (2405)
实测/预测辽河铬(VI)水生生物基准与风险评估	王晓南, 闫振广, 刘征涛, 张聪, 王伟莉 (2414)
博尔塔拉河河水、表层底泥及河岸土壤重金属的污染和潜在危害评价	张兆永, 吉力力·阿不都外力, 姜逢清 (2422)
岩溶泉水化学性质及 δ ¹³ C _{DIC} 影响因素	赵瑞一, 吕现福, 刘子琦, 吕春艳 (2430)
柳江流域柳州断面水化学特征及无机碳汇通量分析	原雅琼, 何师意, 于爽, 孙平安, 王艳雪, 武招云, 李新桂, 谢明鲜, 刘文, 李瑞, 张华生 (2437)
重庆市主城区次级河流总氮总磷污染特征分析及富营养化评价	庆旭瑶, 任玉芬, 吕志强, 王效科, 庞容, 邓睿, 孟龄, 马慧雅 (2446)
三峡库区消落带土壤邻苯二甲酸二丁酯静态释放特征	王法, 王强, 木志坚, 杨志丹, 宋娇艳 (2453)
干湿循环对三峡支流消落带沉积物中可转化态氮及其形态分布的影响	林俊杰, 张帅, 杨振宇, 何立平, 周依, 张倩茹 (2459)
天山天池夏季叶绿素 a 的分布及富营养化特征研究	王斌, 马健, 王银亚, 尹湘江 (2465)
西大海湖沉积物营养盐垂直分布特征变化分析	段木春, 肖海丰, 臧淑英 (2472)
草街水库蓄水后嘉陵江浮游植物群落特征及水质评价	杨敏, 张晟, 刘朔孺 (2480)
宁波三江口水域原核生物群落结构分析	胡安谊, 李姜维, 杨晓永, 王弘杰, 于昌平 (2487)
全氟化合物对表层沉积物中细菌群落结构的影响	孙雅君, 王铁宇, 彭霞薇, 王佩 (2496)
蓝藻腐解-金鱼藻生长耦合作用对水质及植物生长的影响	马月, 王国祥, 曹勤, 王小云, 马杰 (2504)
生物滞留设施对城市地表径流低浓度磷吸附基质研究	李立青, 龚燕芳, 颜子钦, 单保庆 (2511)
复合填料生物渗滤系统处理城市雨水径流的研究	王晓璐, 左剑恶, 千里里, 邢薇, 缪恒峰, 阮文权 (2518)
3种典型消毒副产物对细菌抗生素抗性的影响	吕露, 张梦露, 王春明, 林惠荣, 于鑫 (2525)
基于透射光法探讨水流流速对 DNAPL 运移分布的影响	高燕维, 郑菲, 施小清, 孙媛媛, 徐红霞, 吴吉春 (2532)
BDD 和 PbO ₂ 电极电化学氧化苯并三氮唑的对比研究	伍娟丽, 张佳维, 王婷, 倪晋仁 (2540)
开放系统下方解石对邻苯二甲酸的吸附	李振炫, 黄利东, 陈艳芳, 缪晔, 刘大刚, 许正文 (2547)
碳纳米管-羟磷灰石对铅的吸附特性研究	张金利, 李宇 (2554)
刚果红分子印迹聚合物纳米微球的合成及吸附性能	常自强, 陈复彬, 张玉, 时作龙, 杨春艳, 章竹君 (2564)
碱热-酸热法合成二氧化钛-钛酸纳米管复合纳米材料对 Cd(II) 和苯酚的同步去除	雷立, 晋银佳, 王婷, 赵泉, 晏友, 刘文 (2573)
固定化菌剂对污水和牛粪中雌二醇和己烯雌酚的去除作用	李欣, 凌婉婷, 刘静娴, 孙敏霞, 高彦征, 刘娟 (2581)
PN-ANAMMOX 一体化反应器处理电子行业 PCB 废水	袁琬, 李祥, 周呈, 陈宗姮 (2591)
Fenton 氧化深度处理石化废水厂二级出水研究	王翼, 吴昌永, 周岳溪, 张雪, 董波, 陈学民 (2597)
制革废水和印染废水的综合毒性评估及鉴别	黄利, 陈文艳, 万玉山, 郑国娟, 赵远, 蔡强 (2604)
不同溶解氧条件下 A/O 系统的除碳脱氮效果和细菌群落结构变化	陈燕, 刘国华, 范强, 汪俊妍, 齐鲁, 王洪臣 (2610)
利用主要缺氧段 ORP 作为连续流单污泥污水脱氮除磷系统调控参数	王晓玲, 宋铁红, 殷宝勇, 李静文, 李紫棋, 余勇 (2617)
连续流态下以实际低基质生活污水培养好氧颗粒污泥及其脱氮性能	姚力, 信欣, 鲁航, 朱辽东, 谢思建 (2626)
广东清远电子垃圾拆解区农田土壤重金属污染评价	张金莲, 丁疆峰, 卢桂宇, 党志, 易筱筠 (2633)
山东省临沂市土壤有机氯农药滴滴涕残留量与空间分布特征	喻超, 王增辉, 王红晋, 代杰瑞, 庞绪贵, 赵西强, 刘华峰 (2641)
金华市萤石矿区土壤氟污染评价	叶群峰, 周小玲 (2648)
土壤碳收支对秸秆与秸秆生物炭还田的响应及其机制	侯亚红, 王磊, 付小花, 乐毅全 (2655)
黄土区果园和刺槐林生态系统土壤有机碳变化及影响因素	李如剑, 王蕊, 李娜娜, 姜继韶, 张彦军, 王志齐, 刘庆芳, 吴得峰, 郭胜利 (2662)
缙云山土地利用方式对土壤轻组及颗粒态有机碳氮的影响	雷利国, 江长胜, 郝庆菊 (2669)
塔里木河上游典型绿洲土壤酶活性与环境因子相关分析	朱美玲, 贡璐, 张龙龙 (2678)
不同部位玉米秸秆对两种质地黑土 CO ₂ 排放和微生物量的影响	刘四义, 梁爱珍, 杨学明, 张晓平, 贾淑霞, 陈学文, 张士秀, 孙冰洁, 陈升龙 (2686)
1株对叔丁基邻苯二酚降解菌的筛选鉴定及响应面法优化其降解	贺强礼, 刘文斌, 杨海君, 彭晓霞, 关向杰, 黄水娥 (2695)
耐高浓度沼液产油小球藻的分离鉴定与特征分析	杨周, 王文国, 马丹炜, 汤晓玉, 胡启春 (2707)
水介质中 C ₆₀ 纳米晶体颗粒与 Cu ²⁺ 对小鼠腹腔巨噬细胞的复合毒性研究	于叶, 卞为林, 张慧敏, 张波, 何义亮 (2713)
地表水体中同时分析 18 种糖皮质激素方法的建立	郭文景, 常红, 孙德智, 吴丰昌, 杨浩 (2719)
《环境科学》征订启事 (2553) 《环境科学》征稿简则 (2640) 信息 (2546, 2609, 2616, 2647)	

北京城区大气 PM_{2.5} 主要化学组分构成研究

刘保献¹, 杨懂艳¹, 张大伟^{1*}, 陈添², 赵红帅¹, 陈圆圆¹, 陆皓昀¹

(1. 北京市环境保护监测中心, 北京 100048; 2. 北京市环境保护局, 北京 100048)

摘要: 2012 年 8 月至 2013 年 7 月期间, 对北京市城区石景山、车公庄、东四和通州这 4 个点开展为期一年的 PM_{2.5} 化学组分研究, 共获得样本 220 组, 使用化学质量重构方法进行组分重构研究. 结果表明, 通过化学质量重构方法获得的 PM_{2.5} 质量和实际测定 PM_{2.5} 质量浓度具有很好的相关性, 相关系数为 0.95, 其中春季、秋季和冬季相关系数均大于 0.95 以上, 夏季稍差 (0.77); 采样期间 4 个点位的 PM_{2.5} 主要组分 OM、EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Cl⁻、地壳元素、微量元素的质量浓度分别为 31.4、3.8、19.9、21.6、14.4、4.0、15.4、2.9 μg·m⁻³, 分别占总组分的 25.1%、3.0%、15.9%、17.2%、11.5%、3.2%、12.3%、2.3%, 除地壳物质外各组分呈东高西低的趋势; 2013 年 1 月 11 日至 14 日重污染期间, OM、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺ 的浓度是全年平均的 1.9、5.0、3.2、4.2 倍, SO₄²⁻ 成为本次污染过程中最主要的组分. 采暖期和非采暖期城区 PM_{2.5} 最大的组分均为 OM, 采暖期相对非采暖期 OM、NH₄⁺、NO₃⁻、SO₄²⁻ 均有较大增幅, 但地壳物质和 EC 相差不大, 两个时期差异最大的组分为具有较强燃煤指示性的 Cl⁻ (4.4 倍). 对于化学质量重构结果的未知组分, 其中城区 PM_{2.5} 中水份约占 6.0%, 夏季颗粒物的水份最大 (6.5%), 春季和冬季相当, 秋季较少 (3.7%).

关键词: PM_{2.5}; 城区; 质量重构; 化学组分; 未知组分

中图分类号: X513 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2015)07-2346-07 **DOI:** 10.13227/j.hjxx.2015.07.003

Chemical Species of PM_{2.5} in the Urban Area of Beijing

LIU Bao-xian¹, YANG Dong-yan¹, ZHANG Da-wei^{1*}, CHEN Tian², ZHAO Hong-shuai¹, CHEN Yuan-yuan¹, LU Hao-yun¹

(1. Beijing Municipal Environmental Monitoring Center, Beijing 100048, China; 2. Beijing Municipal Environmental Protection Bureau, Beijing 100048, China)

Abstract: From August 2012 to July 2013, 220 groups of PM_{2.5} samples were continuously collected at four locations in the urban area of Beijing (Shijingshan, Chegongzhuang, Dongsi, and Tongzhou), and the primary chemical species of PM_{2.5} were analysed by the chemical mass balance method. It was found that the mass of PM_{2.5} obtained from chemical mass balance method agreed well with the value from gravimetric measurement, with a good correlation of 0.95 in spring, autumn, and winter. However, the correlation seasonally changed in summer, with a relatively lower correlation coefficient of 0.77. The concentrations of OM, EC, SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, Cl⁻, crustal matter, and trace species were 31.4, 3.8, 19.9, 21.6, 14.4, 4.0, 15.4, and 2.9 μg·m⁻³, which accounted for 25.1%, 3.0%, 15.9%, 17.2%, 11.5%, 3.2%, 12.3%, and 2.3% of PM_{2.5}, respectively. Besides crustal matter, concentrations of the primary chemical species in PM_{2.5} from the west to the east gradually increased. The most serious PM pollution occurred between 11 and 14 February 2013, during which concentrations of OM, SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺ were 1.9, 5.0, 3.2 and 4.2 times as high as the annual average. SO₄²⁻ was recognized as the most important species for the pollution in the process. OM was the largest component of urban PM_{2.5} during both heating and non-heating periods. Comparing to non-heating period, the concentrations of OM, NH₄⁺, NO₃⁻, and SO₄²⁻ all increased during the heating period, except for the component of crust and EC. The biggest difference between the two periods was the component of Cl⁻ (4.4 fold), which can be attributed to the burning of coal. For unknown components, the main component was moisture, which accounted for about 6.0% in urban PM_{2.5}. The highest moisture appeared in summer (6.5%), followed by spring and winter, and the least appeared in fall (3.7%).

Key words: PM_{2.5}; urban area; mass closure; chemical species; unidentified composition

大气颗粒物是影响人体健康、大气能见度和地球辐射平衡的重要污染物^[1], 人们越来越关注对颗粒物的研究, 由于 PM_{2.5} 对全球气候变化^[2,3]、人体健康^[4-6] 及大气化学^[7,8] 等具有较大的影响, 使其成为当今气候和环境研究的热点问题之一. PM_{2.5} 是含有不同成分的混合物, 其对环境的影响很大程度上和其组成特征有关^[9], 了解其主要的化学组成及

构成是深入研究 PM_{2.5} 危害及来源等工作的前提. 由于 PM_{2.5} 组分构成非常复杂, 目前能够直接测定的组分仅能占 PM_{2.5} 组成的一部分, 用组分重构方法通过

收稿日期: 2014-11-24; 修订日期: 2015-02-15

基金项目: 北京市科技计划项目 (Z121100000312035)

作者简介: 刘保献 (1983 ~), 男, 硕士研究生, 高级工程师, 主要研究方向为环境监测, E-mail: liubaixian28@163.com

* 通讯联系人, E-mail: zhangdawei@bjmemc.com.cn

直接测量的成分对 PM_{2.5} 的化学成分进行重构,可以了解 PM_{2.5} 的主要构成、各组分对 PM_{2.5} 的贡献以及未鉴别部分的浓度,是目前常用的分析方法之一^[10]。

目前,虽然北京市 PM_{2.5} 组分特征的研究较多,但由于组分重构方法及重构过程中折算系数的研究较少,针对北京地区 PM_{2.5} 组分重构的研究结果相对较少. 为较详细地了解北京市六环内主要建成区 PM_{2.5} 组分特征及重构结果,于 2012 年 8 月 ~ 2013 年 7 月期间,对北京市六环内的石景山、车公庄、东四、通州等 4 个点位开展为期一年的 PM_{2.5} 化学组分研究,利用化学组分重构方式,对北京市城区主要的组分进行重构,研究其重构结果以及主要组成的变化特征,并对未检测到的组分进行分析和探讨。

1 材料与方法

1.1 样品的采集

2012 年 8 月至 2013 年 7 月,在北京市六环内主要建成区:石景山、车公庄、东四、通州等 4 个点位开展 PM_{2.5} 样品的采集,点位信息见图 1. 本次采样每月每个点位均同步连续采集 5 ~ 9 d,共获得有效样品 220 组(采样时间和有效样本见表 1),各点位的采样仪器均为 TH-16A 型四通道采样器(武汉天虹公司),采样流量 16.7 L·min⁻¹,每组样品采集 2 张石英滤膜(Whatman:1851047)和 2 张特氟龙滤膜(Whatman:7592-104),石英滤膜用于分析阴阳离子和 OC-EC,特氟龙滤膜用于分析 PM_{2.5} 质量浓度和金属元素等. 样品采集和保存过程中,每周对采样器

进行一次检漏和各通道流量标定,对仪器显示的环境温度和压力用标准温度计及标准压力计进行审核,保证每次校准前后的流量偏差均在 ± 1 L·min⁻¹ 以内,石英滤膜在使用前于 500℃ 烘烤 3 h,采集后使用铝箔纸包裹,避光低温保存至分析。

表 1 样品采集信息
Table 1 Sampling information

时间	监测日期	有效样品/组	点位
2012 年	8 月 14 ~ 18 日	16	石景山、车公庄、东四、通州
	9 月 9 ~ 13 日	15	
	10 月 18 ~ 22 日	15	
	11 月 11 ~ 16	21	
	12 月 9 ~ 12 日	19	
2013 年	1 月 11 ~ 19 日	26	
	2 月 3 ~ 9 日	19	
	3 月 15 ~ 20 日	16	
	4 月 9 ~ 14 日	19	
	5 月 11 ~ 17 日	20	
	6 月 9 ~ 13 日	16	
	7 月 13 ~ 17 日	18	

1.2 样品分析

为能较全面地使用化学质量重构对 PM_{2.5} 组份进行研究,本次对每组样品均分析含碳组分(OC 和 EC)、无机水溶性离子(NH₄⁺、SO₄²⁻、NO₃⁻、K⁺、Cl⁻)以及金属及类金属组分(Si、Al、Fe、Mg、Mn、Ba、Ca、Cu、K、Na、Cd、Cr、Ni、Pb、Sc、Ti、V、Zn、As、Se)等. 其中 PM_{2.5} 质量浓度的分析使用 MX5(瑞士梅特勒公司)型分析天平,测量精度为十万分之一,样品称重前后恒温恒湿 24 h(温度:18℃ ± 1℃、湿度:47% ± 2%);碳分析使用美国 Sunset-L4 型分析仪分析;无机水溶性离子(NH₄⁺、SO₄²⁻、NO₃⁻等)使用美国 Dionex-ICS2000 及 Dionex-ICS 3000 型离子色谱分析仪分析. 砷、硒等采用吉天公司生产的 AFS-9230 原子荧光光度计进行分析,样品采用 HNO₃/HCl/H₂O₂ 体系进行密闭微波消解;Si、Al、Fe 等 18 种元素采用美国热电 Intrepid II-XDL 光谱仪进行分析,考虑到消解过程 Si 元素易挥发损失,采用 HNO₃/HCl/H₂O₂/HF 体系密闭微波消解的方法,消解后加饱和硼酸溶液络合过量的氟离子,再进行一次密闭微波消解、过滤、定容后上机测定. 分析过程中均使用严格的质量控制和质量保证措施,每批样品均采集一个现场空白、并分析实验室空白;每批样品分析时均加做一个空白加标(除含碳组分),每 10 个样品分析一次标曲中间点,加标回收率需满足 80% ~ 120% 之间,标曲中间点偏差若大于 20%,重新绘制曲线。

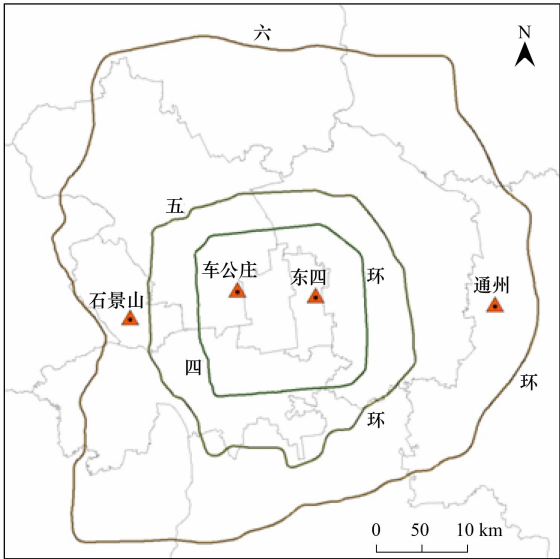


图 1 PM_{2.5} 采样监测站点位置示意
Fig. 1 Location of four monitor stations

1.3 化学质量重构处理方法

PM_{2.5}是含有不同成分的混合物,包含的主要成分有水溶性无机盐离子(硝酸盐和硫酸盐为主),元素碳和有机碳(EC、OC)、地壳物质、微量元素(Na、K、Ca、V、Ni、Cu等痕量金属元素之和)以及水等^[11-12],这些物质的质量可占PM_{2.5}总重量的70%以上。He等^[12]就利用有机物、EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、地壳物质、微量元素等分类方法对2001年北京市城区两个点位的PM_{2.5}进行了化学质量重构研究。

PM_{2.5}中SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺的来源主要受到气态前体物影响较大^[13,14],而EC主要受到燃烧源一次排放影响较大,为较好地表征PM_{2.5}的来源特征,通常为对于EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺一般以直接测定的结果参与化学质量重构研究中。

对于大气颗粒物中的有机物(OM),化学结构比较复杂,重构时一般以一定的系数(*k*)乘以OC的测定值来表述,Zappoli等^[15]认为城区刚生成的有机气溶胶的折算系数为1.2, Penner等^[16]研究发现城区的气溶胶折算系数在1.2~1.6之间, He等^[12]、Gu等^[17]、Frank等^[18]、Murillo等^[19]分别使用1.4的系数重构了北京、天津、洛杉矶和瓜纳华托州等城区的OM。Xing等^[20]通过测定中国14个城市的OC/EC(美国DRI2001),发现北部城市OM的年平均折算系数为1.51±0.07,夏季为1.75±0.13,冬季为1.59±0.18。由于不同类型碳分析仪测定的OC/EC有一定的差异,本研究测定的OC要大于DRI2001碳分析仪测定结果,同时结合其他大气PM_{2.5}有机物的重构系数研究结果,选择1.4为OM的全年平均折算系数。

针对PM_{2.5}中地壳物质的重构,结合本研究所测定组分及杨复沫等^[10]的研究成果,选择地壳物质=2.20Al+1.63Ca+2.42Fe+2.49Si+1.93Mg;其他的元素中Cl⁻的浓度较大,与燃煤等燃烧源关系较大^[21],本研究直接将其以单纯元素对待,微量元素直接以Na、V、Ba、Sc、K、Ni、Cr、Cu、Se、Cd、Pb、As、Zn的测定结果简单加和处理。

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5}化学组分质量平衡结果对比

石景山、车公庄、东四、通州等4个点位通过化学质量重构后的结果按不同季节和实际PM_{2.5}质量浓度进行对比研究,结果见图2。由此可以看出,

通过化学质量重构方法获得的PM_{2.5}质量和实际测定PM_{2.5}质量浓度具有很好的相关性,总相关为0.953,占实际质量的93%。由不同季节的对比结果可以看出,春季、秋季和冬季化学质量重构方法获得和PM_{2.5}质量和实际测定PM_{2.5}质量浓度相关系数均大于0.95以上,具有很好的相关性,但夏季略差,仅为0.767,同时夏季通过化学质量重构方法获得PM_{2.5}总质量和实际测定的质量相差也最大,仅为73%,质量浓度相差33 μg·m⁻³。研究发现,夏季受高温等天气的影响,二次反应较为强烈^[22,23],同时Xing等^[20]研究结果也表明,夏季的有机物折算系数要远大于其他季节,杨复沫等^[10]也认为有机物的折算系数每提高0.1,未知组分将下降2%左右;另外夏季受高湿天气及硫酸盐等的吸水性影响,颗粒物中结晶水的浓度增加^[24],这些原因可能是夏季利用化学质量重构方法和实际浓度相差较大的主要因素。

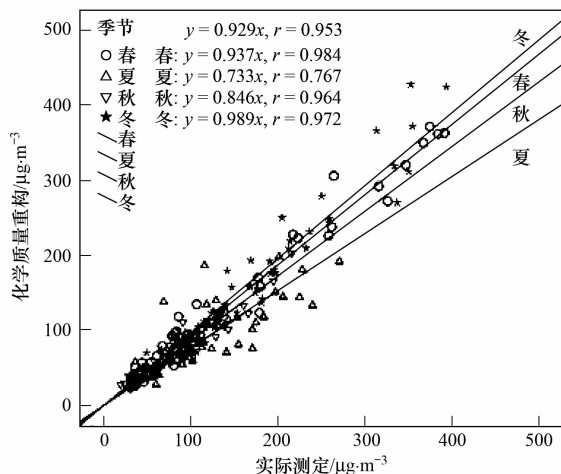


图2 PM_{2.5}质量浓度和化学质量重构结果分析

Fig. 2 Correlations between PM_{2.5} mass concentrations reconstructed from chemical mass balance method and obtained from gravimetric measurement

2.2 PM_{2.5}化学组分特征

图3是北京市城区4个点位在采样期间的PM_{2.5}主要组分化学质量重构结果,在采样期间,PM_{2.5}中OM、EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Cl⁻、地壳元素、微量元素的质量浓度分别为31.4、3.8、19.9、21.6、14.4、4.0、15.4、2.9 μg·m⁻³,分别占总组分的25.1%、3.0%、15.9%、17.2%、11.5%、3.2%、12.3%、2.3%,其他未确定的组分占9.3%。其中PM_{2.5}中TCA(OM+EC)的质量浓度远高于香港^[25]、春川(韩国)^[26]、洛杉矶(美国)^[15]、

赫尔辛基(芬兰)^[27]等城市有机物的浓度,和广州^[26]、上海^[28]、南京^[29]等城市浓度相当.3种主要的水溶性离子 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 共占总量的 44.6%,在 3 种主要的水溶性离子中, $\text{NO}_3^- > \text{SO}_4^{2-} > \text{NH}_4^+$,其中 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 的大小关系和 He 等^[12]在 2001 年在北京城区及 Sun 等^[30]在 2004 年在北京城区的研究结果相反, NO_3^- 和 SO_4^{2-} 的大小关系的变化也指出,北京地区应进一步加大对 NO_3^- 气态前体物 NO_x 的控制力度.

另外,图 4 为石景山、车公庄、东四、通州等 4 个点组分特征,从中可以看出,4 个点位 PM_{2.5} 的浓度从西往东逐渐增大, SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 这 3 种水溶性离子总量也呈东高西低的趋势,车公庄和东四两个点位相当,通州点位浓度最大,各点位均是 $\text{NO}_3^- > \text{SO}_4^{2-} > \text{NH}_4^+$. 有机物和 EC 也均是通州点位最大,东四和通州相差不大,石景山和车公庄相差不大,研究称含碳组分和燃烧源有较大的关系^[31],说明东部受到该类源的影响更大一些;另外 Cl^- 及微量元素也呈东高西低的规律,不过地壳物质在 4 个点位中的规律并不明显,东四浓度最大,这和地壳物质易受采样点位周边环境有较大关系.

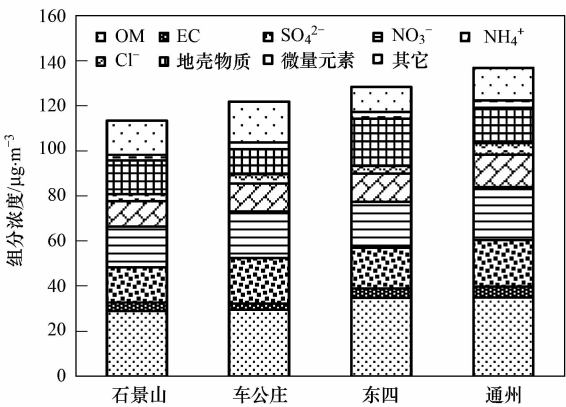


图 4 不同点位 PM_{2.5} 主要化学组分构成

Fig. 4 Average mass composition of PM_{2.5} samples at four locations in the urban area of Beijing

高的水平. 比较各化合物采暖期和非采暖期的差异, 由图 5 可以看出, 采暖期各组分均大于非采暖期, 这和采暖期较多的污染物排放有较大的关系. 其中采暖期和非采暖期差异最大的组分为 Cl^- , 相差 4.4 倍, 北京冬季多偏北风^[32], 受海洋影响较小, 研究称 Cl^- 受燃煤的影响较大^[33], 说明采暖期 PM_{2.5} 受燃煤影响较大. 采暖期相对非采暖期 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 也有较大的增加, 其中 SO_4^{2-} 的增加和燃煤直接一次排放及排放的气态污染物 SO_2 有较大的关系, NH_4^+ 、 NO_3^- 的增加一方面受直接排放的原因, 另外也与采暖期较低的气温也较适合这两种物质在颗粒物上的吸附有关, 而非采暖期较高的气温也会加快 NH_4^+ 、 NO_3^- 等物质的挥发^[34,35]. 另外, 由图 4 可得, 地壳物质和 EC 在采暖期和非采暖期相差不大, 而地壳物质主要来自沙尘, 其中比较有代表性的 Si 元素采暖期 ($2.69 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 小于非采暖期 ($3.39 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), 可能是由于采暖期为冬季, 施工活动较少, 地壳物质来源少, 而非采暖期一般为春季、夏季和秋季, 此阶段受到外来沙尘影响几率大、气温干燥, 易起风沙.

2.4 特殊污染天 PM_{2.5} 化学组成构成

2013 年 1 月, 华北地区发生了较为严重的环境空气污染过程, 部分地区 PM_{2.5} 质量浓度持续超过 $500 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 北京在本次污染范围内^[36]. 为获得本次污染过程北京市主要城区 PM_{2.5} 的构成特征, 选择第一次污染过程 2013 年 1 月 11 日至 14 日, 4 个点组分测定结果, 利用化学质量重构方法进行组分的质量浓度分别为 59.5、4.7、99.5、67.9、61.1、

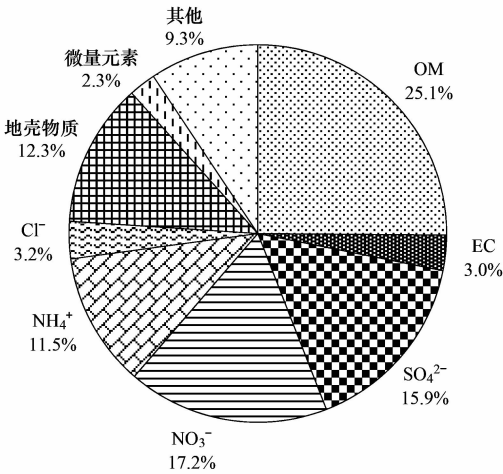


图 3 北京城区 PM_{2.5} 主要化学组分构成

Fig. 3 Average mass composition of PM_{2.5} samples in the urban area of Beijing

2.3 采暖和非采暖期化学构成特征分析

按照北京市采暖时间段, 将本次研究分为采暖期(11、12、1、2、3 月)和非采暖期(4、5、6、7、8、9 月), 两个阶段的样本数量相差不大, 均在 100 组以上, 采暖期和非采暖期城区 PM_{2.5} 最主要的组分均是 OM、 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} , 4 种化合物总质量分别占 78% 和 74%, 最大的组分均为 OM, 全年均处于较

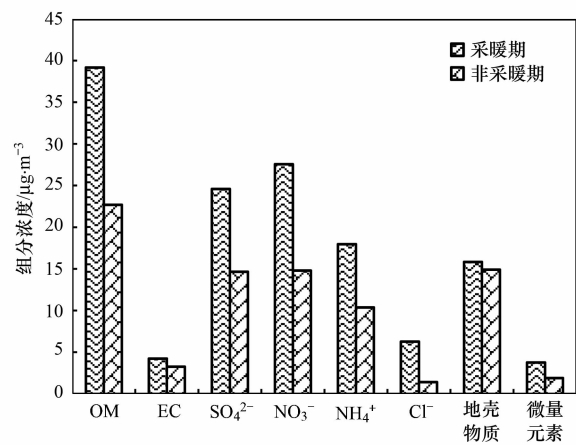


图5 燃煤采暖对北京市城区 $\text{PM}_{2.5}$ 主要组分的影响

Fig. 5 Effects of coal combustion for the composition in the urban area of Beijing

15.7、22.1、8.8 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别占总组分的 16.1%、1.3%、26.9%、18.4%、16.5%、4.2%、6.0%、2.4%。和全年平均水平相比, 期间城区 $\text{PM}_{2.5}$ 中的 OM 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 的浓度大幅度增加, 是全年平均的 1.9、5.0、3.2、4.2 倍, 在组成比例上相对于其他组分 SO_4^{2-} 所占比例也是大幅度增加, 成为本次污染过程中最主要的组分。王丛梅等研究发现^[37], 本次污染过程整个区域气象要素表现异常, 边界层高湿区域的存在以及稳定的大气环流形势等为颗粒物的二次反应提供了良好的环境场。而高湿等条件下, OM 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 等二次产物的转化效率将快速提高^[38,39], 使短时期内形成较高的浓度。本次污染过程正值燃煤采暖期, 受燃煤排放 SO_2 量较大的影响, 本次污染过程中明显的特点是 SO_4^{2-} 的浓度和百分比远大于其他化合物, 同时本次污染过程中受燃煤源影响较大的 Cl^- 是北京采暖期平均值 ($6.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 的 2.5 倍。另外 Zhang 等^[36] 通过该时段高时间分辨率的气溶胶飞行质谱结果的研究也表明, 本次污染过程明显受高湿、低风、高温的气象条件, 本地污染及高污染区域传输相结合的协同作用影响。

2.5 $\text{PM}_{2.5}$ 中未知组分分析

由图 3 北京市城区 4 个点位在采样期间的 $\text{PM}_{2.5}$ 主要组分化学质量重构结果显示, 本次结果中有 9.3% 的未知组分, 杨复沫等^[10]、Gu 等^[17]、Canepari 等^[40] 研究发现, 化学质量重构结果中未知组分可能来源于 $\text{PM}_{2.5}$ 质量称重误差、各种化学成分的测量误差、颗粒物水份、有机物等折算系数的偏差, 以及其它未能测量的成分等, 其中颗粒物中的

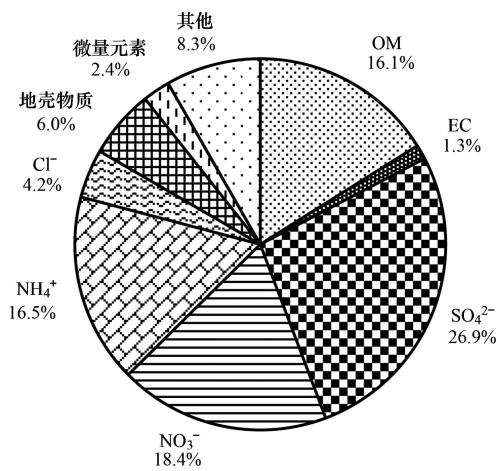


图6 1月第一次污染过程城区 $\text{PM}_{2.5}$ 主要化学组分质量平衡构成

Fig. 6 Average mass composition of $\text{PM}_{2.5}$ samples in the first pollution process in January

水份及有机物的折算系数是主要的未知来源。针对 $\text{PM}_{2.5}$ 中的颗粒物中的水份, Frank 等^[18] 和 Murillo 等^[19] 分别使用 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 的浓度进行了计算, Xing 等^[20] 则认为 $\text{PM}_{2.5}$ 中大约有 5.8% 的水份。本研究利用 Frank 等^[18] 的研究结果计算 $\text{PM}_{2.5}$ 中的吸附水 (particle bound water, PBW), 选择 $\text{PBW} = 0.24 (\text{SO}_4^{2-} + \text{NH}_4^+)$ 的计算公式进行计算获得各季节和点位 PBW, 结果见图 7。PBW 全年平均占城区 $\text{PM}_{2.5}$ 的 6.0%, 若将该水份算入化学质量重构中, 未知组分将减少至 3.3%。按季节进行划分, 夏季的 PBW 最大 (6.5%), 春季和冬季相当, 秋季相对其他季节明显减少 (3.7%), 夏季颗粒物中水份较多和硫酸盐的增加^[41] 从而提高了颗粒物附着水份的能力有关。秋季 $\text{PM}_{2.5}$ 中 PBW 较低的原因可

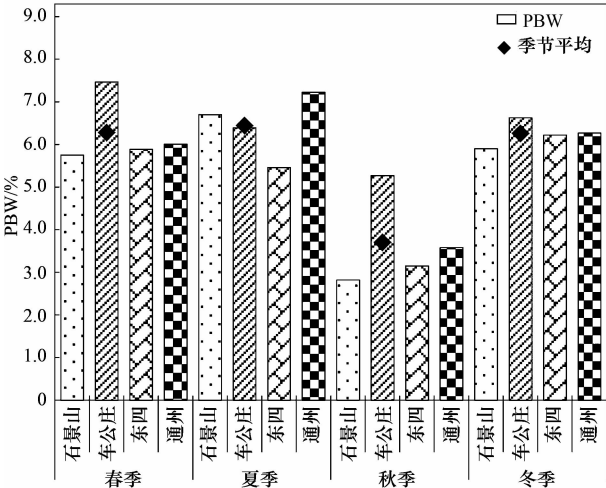


图7 城区 $\text{PM}_{2.5}$ 中不同季节各点位 PBW 百分比

Fig. 7 PBW content of different seasons and sampling points in the urban area of Beijing

能和北方城市秋天较为干燥的天气有一定的关系. 另外结合颗粒物中水分所占的百分比例, 春季和冬季平均未知组分均小于 1.0%, 夏季和秋季的未知组分仍较大, 分别为 17.3% 和 9.6%.

3 结论

(1) 2012 年 8 月 ~ 2013 年 7 月期间, 对北京市六环内的石景山、东四、通州等 4 个点位开展为期一年的 PM_{2.5} 化学组分研究, 通过化学质量重构方法获得的 PM_{2.5} 质量和实际测定 PM_{2.5} 质量浓度的相关性研究发现, 两者总相关性较好, 为 0.953, 春季 > 冬季 > 秋季 > 夏季.

(2) 北京市城区 4 个点位在采样期间的 PM_{2.5} 主要组分 OM、EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、Cl⁻、地壳元素、微量元素的质量浓度分别为 31.4、3.8、19.9、21.6、14.4、4.0、15.4、2.9 μg·m⁻³, 分别占总组分的 25.1%、3.0%、15.9%、17.2%、11.5%、3.2%、12.3%、2.3%, 除地壳物质外呈东高西低的趋势. 2013 年 1 月 11 日至 14 日重污染期间, OM、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺ 的浓度是全年平均的 1.9、5.0、3.2、4.2 倍, 相对于其他组分 SO₄²⁻ 成为本次污染过程中最主要的组分.

(3) 采暖期和非采暖期城区 PM_{2.5} 主要组分均是 OM、NH₄⁺、NO₃⁻、SO₄²⁻, 分别占 78%、74%, 其中最大的组分均为 OM; 受采暖期燃煤的影响两个时期差异最大的组分为 Cl⁻ (4.4 倍), 采暖期相对非采暖期 OM、NH₄⁺、NO₃⁻、SO₄²⁻ 均有较大增幅, 但地壳物质和 EC 相差不大.

(4) 采样期间使用化学质量重构结果共有 9.3% 的未知组分, 其中水份约占 6.0%, 是主要的未知来源. 按季节来看, 夏季颗粒物的水份最大 (6.5%), 春季和冬季相当, 秋季较少 (3.7%).

参考文献:

- [1] 朱先磊, 张远航, 曾立民, 等. 北京市大气细颗粒物 PM_{2.5} 的来源研究 [J]. 环境科学研究, 2005, **18**(5): 1-5.
- [2] Cao J J, Chow J C, Lee F S C, *et al.* Evolution of PM_{2.5} Measurements and Standards in the U. S. and Future Perspectives for China [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2013, **13**(4): 1197-1211.
- [3] Wang Y, Zhuang G S, Tang A H, *et al.* The ion chemistry and the source of PM_{2.5} aerosol in Beijing [J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(21): 3771-3784.
- [4] 陶俊, 张仁健, 段菁春, 等. 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 [J]. 环境科学, 2014, **35**(2): 411-417.
- [5] Yang D, Qi S H, Devi L, *et al.* Characterization of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} and PM₁₀ in Tanggu District, Tianjin Binhai New Area, China [J]. Frontiers of Earth Science, 2012, **6**(3): 324-330.
- [6] Cao J J, Xu H M, Xu Q, *et al.* Fine particulate matter constituents and cardiopulmonary mortality in a heavily polluted Chinese city [J]. Environmental Health Perspectives, 2012, **120**(3): 373.
- [7] 古金霞, 白志鹏, 刘爱霞, 等. 天津冬季 PM_{2.5} 与 PM₁₀ 中有有机碳和元素碳的污染特征 [J]. 环境污染与防治, 2009, **31**(8): 33-36.
- [8] Menon S, Genio A D D, Koch D, *et al.* GCM simulations of the aerosol indirect effect: sensitivity to cloud parameterization and aerosol burden [J]. Journal of the Atmospheric Sciences, 2002, **59**(3): 692-713.
- [9] Huang W, Cao J J, Tao Y B, *et al.* Seasonal Variation of Chemical Species Associated With Short-Term Mortality Effects of PM_{2.5} in Xi'an, a Central City in China [J]. Advance Access publication, 2012, **175**(6): 556-566.
- [10] 杨复沫, 贺克斌, 马永亮, 等. 北京 PM_{2.5} 化学物种的质量平衡特 [J]. 环境化学, 2004, **23**(3): 326-333.
- [11] 高健, 柴发合. 我国大气颗粒物污染研究及其对控制对策的支撑 [J]. 环境保护, 2014, **42**(11): 32-34.
- [12] He K B, Yang F M, Ma Y L, *et al.* The characteristics of PM_{2.5} in Beijing, China [J]. Atmospheric Environment, 2001, **35**(29): 4959-4970.
- [13] 刘子锐, 王跃思, 刘全, 等. 鼎湖山秋季大气细粒子及其二次无机组分的污染特征及来源 [J]. 环境科学, 2011, **32**(11): 3160-3166.
- [14] 刘新民, 邵敏. 北京市夏季大气消光系数的来源分析 [J]. 环境科学学报, 2004, **24**(2): 185-189.
- [15] Zappoli S, Andracchio A, Fuzzi S, *et al.* Inorganic, organic and macromolecular components of fine aerosol in different areas of Europe in relation to their water solubility [J]. Atmospheric Environment, 1999, **33**(17): 2733-2743.
- [16] Penner J E, Dong X Q, Chen Y. Observational evidence of a change in radiative forcing due to the indirect aerosol effect [J]. Nature, 2004, **427**(6971): 231-234.
- [17] Gu J X, Bai Z P, Li W F, *et al.* Chemical composition of PM_{2.5} during winter in Tianjin, China [J]. Particuology, 2011, **9**(1): 215-221.
- [18] Frank N H. Retained nitrate, hydrated sulfates, and carbonaceous mass, in federal reference method fine particulate matter for six eastern U. S. cities [J]. Journal of the Air and Waste Management Association, 2006, **56**(4): 500-511.
- [19] Murillo J H, Ramos A C, Garcia F A, *et al.* Chemical composition of PM_{2.5} particles in Salamanca, Guanajuato Mexico: Source apportionment with receptor models [J]. Atmospheric Research, 2012, **107**: 31-41.
- [20] Xing L, Fu T M, Cao J J, *et al.* Seasonal and spatial variability of the OM/OC mass ratios and high regional correlation between oxalic acid and zinc in Chinese urban organic aerosols [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, **13**(8): 4307-

4318.

[21] 古金霞, 吴丽萍, 霍光耀, 等. 天津市 PM_{2.5} 中水溶性无机离子污染特征及来源分析 [J]. 中国环境监测, 2013, **29**(3): 30-34.

[22] 吴梦龙, 郭照冰, 刘凤玲, 等. 南京市大气颗粒物中有机碳和元素碳粒径分布特征 [J]. 环境科学, 2014, **35**(2): 451-457.

[23] 赵亚南, 王跃思, 温天雪, 等. 长白山 PM_{2.5} 中水溶性离子季节变化特征研究 [J]. 环境科学, 2014, **35**(1): 9-14.

[24] Rees S L, Robinson A L, Khlystov A, *et al.* Mass balance closure and the Federal Reference Method for PM_{2.5} in Pittsburgh, Pennsylvania [J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**: 3305-3318.

[25] Duan J C, Tan, J H, Cheng D X, *et al.* Sources and characteristics of carbonaceous aerosol in two largest cities in Pearl River Delta Region, China [J]. Atmospheric Environment, 2007, **41**(14), 2895-2903.

[26] Han J Y, Kim S R, Jung H J. Long-term measurements of atmospheric PM_{2.5} and its chemical composition in rural Korea [J]. Journal of Atmospheric Chemistry, 2011, **68**(4): 281-298.

[27] Viidanoja J, Sillanpaa M K, Laakia J, *et al.* Organic and black carbon in PM_{2.5} and PM₁₀: 1 year of data from an urban site in Helsinki, Finland [J]. Atmospheric Environment, 2002, **36**(19): 3183-3193.

[28] Feng Y L, Chen Y J, Guo H, *et al.* Characteristics of organic and elemental carbon in PM_{2.5} samples in Shanghai, China [J]. Atmospheric Research, 2009, **92**(4): 434-442.

[29] 陈魁, 银燕, 魏兆香, 等. 南京大气 PM_{2.5} 中碳组分观测分析 [J]. 中国环境科学, 2010, **30**(8): 1015-1020.

[30] Sun Y L, Guo S Z, Tang A H, *et al.* Chemical Characteristics of PM_{2.5} and PM₁₀ in Haze-Fog Episodes in Beijing [J]. Environmental Science and Technology, 2006, **40**(10): 3148-3155.

[31] 张灿, 周志恩, 翟崇治, 等. 基于重庆本地碳成分谱的 PM_{2.5} 碳组分来源分析 [J]. 环境科学, 2014, **35**(3): 810-818.

[32] 刘全, 孙扬, 胡波, 等. 北京冬季 PM₁ 中有机气溶胶的高分辨率气溶胶的质谱观测 [J]. 科学通报, 2012, **57**(5): 366-373.

[33] Yao X H, Chan C K, Fang M, *et al.* The Water-soluble ionic composition of PM_{2.5} in Shanghai and Beijing, China [J]. Atmospheric Environment, 2002, **36**(26): 4223-4234.

[34] Dan M, Zhuang G S, Li X X, *et al.* The characteristics of carbonaceous species and their sources in PM_{2.5} in Beijing [J]. Atmospheric Environment, 2004, **38**(21): 3443-3452.

[35] 杨复沫, 贺克斌, 马永亮, 等. 北京大气细粒子 PM_{2.5} 的化学组成 [J]. 清华大学学报 (自然科学版), 2002, **42**(12): 1605-1608.

[36] Zhang J K, Sun Y, Liu Z R, *et al.* Characterization of submicron aerosols during a month of serious pollution in Beijing, 2013 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014, **14**(6): 2887-2903.

[37] 王丛梅, 杨永胜, 李永占, 等. 2013 年 1 月河北省中南部严重污染的气象条件及成因分析 [J]. 环境科学研究, 2013, **26**(7): 695-702.

[38] 祁骞, 周学华, 王文兴. 二次有机气溶胶的水相形成研究 [J]. 化学进展, 2014, **26**(2-3): 458-466.

[39] 姚青, 韩素芹, 蔡子颖. 2011 年冬季天津 PM_{2.5} 及其二次组分的污染特征分析 [J]. 环境化学, 2013, **32**(2): 31-38.

[40] Canepari S, Farao C, Marconi E, *et al.* Qualitative and quantitative determination of water in airborne particulate matter [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, **13**: 1193-1202.

[41] 黄怡民, 刘子锐, 陈宏, 等. 北京夏冬季霾天气下气溶胶水溶性离子粒径分布特征 [J]. 环境科学, 2013, **34**(4): 1236-1244.

CONTENTS

Potential Source Contribution Analysis of the Particulate Matters in Shanghai During the Heavy Haze Episode in Eastern and Middle China in December, 2013	LI Li, CAI Jun-lin, ZHOU Min (2327)
Composition and Regional Characteristics of Atmosphere Aerosol and Its Water Soluble Ions over the Yangtze River Delta Region in a Winter Haze Period	WANG Man-ting, ZHU Bin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (2337)
Chemical Species of PM _{2.5} in the Urban Area of Beijing	LIU Bao-xian, YANG Dong-yan, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i> (2346)
Numerical Study on the Characteristics of Regional Transport of PM _{2.5} in Shandong Province During Spring in 2014	JIA Hai-ying, CHENG Nian-liang, HE You-jiang, <i>et al.</i> (2353)
Characteristics of Water-Soluble Inorganic Ions in PM _{2.5} Emitted from Coal-Fired Power Plants	MA Zi-zhen, LI Zhen, JIANG Jing-kun, <i>et al.</i> (2361)
Direct Observation on the Temporal and Spatial Patterns of the CO ₂ Concentration in the Atmospheric of Nanjing Urban Canyon in Summer	GAO Yun-qiu, LIU Shou-dong, HU Ning, <i>et al.</i> (2367)
Emission Factors of Vehicle Exhaust in Beijing	FAN Shou-bin, TIAN Ling-di, ZHANG Dong-xu, <i>et al.</i> (2374)
Adsorption Capacity of the Air Particulate Matter in Urban Landscape Plants in Different Polluted Regions of Beijing	ZHANG Wei-kang, WANG Bing, NIU Xiang (2381)
Major Air Pollutant Emissions of Coal-Fired Power Plant in Yangtze River Delta	DING Qing-qing, WEI Wei, SHEN Qun, <i>et al.</i> (2389)
Estimation of N ₂ O Emission from Anhui Croplands by Using a Regional Nitrogen Cycling Model IAP-N	HAN Yun-fang, HAN Sheng-hui, YAN Ping (2395)
Evaluation on the Impacts of Different Background Determination Methods on CO ₂ Sources and Sinks Estimation and Seasonal Variations	ZHANG Fang, ZHOU Ling-xi, WANG Yu-zhao (2405)
Measured and Predicted Aquatic Life Criteria and Risk Assessment of Chromium (VI) in Liaohe River	WANG Xiao-nan, YAN Zhen-guang, LIU Zheng-tao, <i>et al.</i> (2414)
Pollution and Potential Ecology Risk Evaluation of Heavy Metals in River Water, Top Sediments on Bed and Soils Along Banks of Bortala River, Northwest China	ZHANG Zhao-yong, Jilili Abuduwalili, JIANG Feng-qing (2422)
Influencing Factors for Hydrochemistry and $\delta^{13}\text{C}_{\text{DIC}}$ of Karst Springs	ZHAO Rui-yi, LÜ Xian-fu, LIU Zi-qi, <i>et al.</i> (2430)
Hydrochemical Characteristics and the Dissolved Inorganic Carbon Flux in Liuzhou Section of Liujiang Basin	YUAN Ya-qiong, HE Shi-yi, YU Shi, <i>et al.</i> (2437)
Characteristics of Total Nitrogen and Total Phosphorus Pollution and Eutrophication Assessment of Secondary River in Urban Chongqing	QING Xu-yao, REN Yu-fen, LÜ Zhi-qiang, <i>et al.</i> (2446)
Static Migration and Release of Dibutyl-Phthalate in the Fluctuating Zone of Three Gorges Reservoir	WANG Fa, WANG Qiang, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (2453)
Effect of Drought and Subsequent Re-wetting Cycles on Transferable Nitrogen and Its Form Distribution in the Sediment of Water Level Fluctuating Zone in the Tributary of Three Gorge Reservoir Areas	LIN Jun-jie, ZHANG Shuai, YANG Zhen-yu, <i>et al.</i> (2459)
Distribution of Chlorophyll-a and Eutrophication State in Tianchi Lake of Tianshan Mountains in Summer	WANG Bin, MA Jian, WANG Yin-ya, <i>et al.</i> (2465)
Vertical Distribution Characteristics and Analysis in Sediments of Xidaihai Lake	DUAN Mu-chun, XIAO Hai-feng, ZANG Shu-ying (2472)
Phytoplankton Community Structure and Water Quality Assessment in Jialing River After the Impoundment of Caojie Reservoir	YANG Min, ZHANG Sheng, LIU Shuo-ru (2480)
Analysis of Prokaryotic Community Structure in River Waters of the Ningbo Sanjiang Mouth	HU An-yi, LI Jiang-wei, YANG Xiao-yong, <i>et al.</i> (2487)
Effects of Perfluoroalkyl Substances on the Microbial Community Structure in Surface Sediments of Typical River, China	SUN Ya-jun, WANG Tie-yu, PENG Xia-wei, <i>et al.</i> (2496)
Coupling Effects of Decomposed <i>Potamogeton crispus</i> and Growing <i>Ceratophyllum demersum</i> on Water Quality and Plant Growth	MA Yue, WANG Guo-xiang, CAO Xun, <i>et al.</i> (2504)
Bioretention Media Screening for the Removal of Phosphorus in Urban Stormwater	LI Li-qing, GONG Yan-fang, YAN Zi-qin, <i>et al.</i> (2511)
Treatment of Urban Runoff Pollutants by a Multilayer Biofiltration System	WANG Xiao-lu, ZUO Jian-e, GAN Li-li, <i>et al.</i> (2518)
Effect of Three Typical Disinfection Byproducts on Bacterial Antibiotic Resistance	LÜ Lu, ZHANG Meng-lu, WANG Chun-ming, <i>et al.</i> (2525)
Laboratory Investigation of DNAPL Migration Behavior and Distribution at Varying Flow Velocities Based on Light Transmission Method	GAO Yan-wei, ZHENG Fei, SHI Xiao-qing, <i>et al.</i> (2532)
Comparative Study of Benzotriazole Electrochemical Oxidation at Boron-doped Diamond and PbO ₂ Anodes	WU Juan-li, ZHANG Jia-wei, WANG Ting, <i>et al.</i> (2540)
Sorption of <i>o</i> -Phthalate onto Calcite in Open-System	LI Zhen-xuan, HUANG Li-dong, CHEN Yan-fang, <i>et al.</i> (2547)
Adsorption Behaviors of Lead on Multi-Walled Carbon Nanotube-Hydroxyapatite Composites	ZHANG Jin-li, LI Yu (2554)
Synthesis and Study on Adsorption Property of Congo Red Molecularly Imprinted Polymer Nanospheres	CHANG Zi-qiang, CHEN Fu-bin, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (2564)
Simultaneous Removal of Cd(II) and Phenol by Titanium Dioxide-Titanate Nanotubes Composite Nanomaterial Synthesized Through Alkaline-Acid Hydrothermal Method	LEI Li, JIN Yin-jia, WANG Ting, <i>et al.</i> (2573)
Immobilization of Estrogen-degrading Bacteria to Remove the 17 β -estradiol and Diethylstilbestrol from Polluted Water and Cow Dung	LI Xin, LING Wan-ting, LIU Jing-xian, <i>et al.</i> (2581)
Optoelectronic PCB Wastewater Treatment by Partial Nitrification-ANAMMOX Integrative Reactor	YUAN Yan, LI Xiang, ZHOU Cheng, <i>et al.</i> (2591)
Treatment of Petrochemical Treatment Plant Secondary Effluent by Fenton Oxidation	WANG Yi, WU Chang-yong, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i> (2597)
Comprehensive Toxicity Evaluation and Toxicity Identification Used in Tannery and Textile Wastewaters	HUANG Li, CHEN Wen-yan, WAN Yu-shan, <i>et al.</i> (2604)
Carbon/nitrogen Removal and Bacterial Community Structure Change in an A/O Activated Sludge System Under Different Dissolved Oxygen Conditions	CHEN Yan, LIU Guo-hua, FAN Qiang, <i>et al.</i> (2610)
ORP in the Main Anoxic Stage as the Control Parameter for Nitrogen and Phosphorus Removal in the Single Sludge System with a Continuous Flow	WANG Xiao-ling, SONG Tie-hong, YIN Bao-yong, <i>et al.</i> (2617)
Cultivation of Aerobic Granular Sludge with Real Low Concentration Domestic Wastewater and Its Denitrification Performances Under the Continuous Flow	YAO Li, XIN Xin, LU Hang, <i>et al.</i> (2626)
Heavy Metal Contamination in Farmland Soils at an E-waste Disassembling Site in Qingyuan, Guangdong, South China	ZHANG Jin-lian, DING Jiang-feng, LU Gui-ning, <i>et al.</i> (2633)
Residues and Spatial Distribution Characteristics of Organochlorine Pesticides DDTs in Soil of Linyi City, Shandong Province	YU Chao, WANG Zeng-hui, WANG Hong-jin, <i>et al.</i> (2641)
Assessment of Soil Fluorine Pollution in Jinhua Fluorite Ore Areas	YE Qun-feng, ZHOU Xiao-ling (2648)
Response of Straw and Straw Biochar Returning to Soil Carbon Budget and Its Mechanism	HOU Ya-hong, WANG Lei, FU Xiao-hua, <i>et al.</i> (2655)
Changes of Soil Organic Carbon and Its Influencing Factors of Apple Orchards and Black Locusts in the Small Watershed of Loess Plateau, China	LI Ru-jian, WANG Rui, LI Na-na, <i>et al.</i> (2662)
Impacts of Land Use Changes on Soil Light Fraction and Particulate Organic Carbon and Nitrogen in Jinyun Mountain	LEI Li-guo, JIANG Chang-sheng, HAO Qing-ju (2669)
Soil Enzyme Activities and Their Relationships to Environmental Factors in a Typical Oasis in the Upper Reaches of the Tarim River	ZHU Mei-ling, GONG Lu, ZHANG Long-long (2678)
Effects of Different Residue Part Inputs of Corn Straws on CO ₂ Efflux and Microbial Biomass in Clay Loam and Sandy Loam Black Soils	LIU Si-yi, LIANG Ai-zhen, YANG Xue-ming, <i>et al.</i> (2686)
Isolation, Identification of a <i>p</i> - <i>tert</i> -Butylcatechol-Degrading Strains and Optimization for Its Degradation by Response Surface Methodology	HE Qiang-li, LIU Wen-bin, YANG Hai-jun, <i>et al.</i> (2695)
Isolation, Identification and Characteristic Analysis of an Oil-producing <i>Chlorella</i> sp. Tolerant to High-strength Anaerobic Digestion Effluent	YANG Chuang, WANG Wen-guo, MA Dan-wei, <i>et al.</i> (2707)
Coupled Cytotoxicity of C ₆₀ Nano-Crystal Particle with Cu ²⁺ to the Mouse Peritoneal Microphage RAW 264. 7	YU Ye, BIAN Wei-lin, ZHANG Hui-min, <i>et al.</i> (2713)
Simultaneous Analysis of 18 Glucocorticoids in Surface Water	GUO Wen-jing, CHANG Hong, SUN De-zhi, <i>et al.</i> (2719)

《环境科学》第 6 届编辑委员会

主 编：欧阳自远
副主编：赵景柱 郝吉明 田 刚
编 委：（按姓氏笔画排序）

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

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976 年 8 月创刊)

2015 年 7 月 15 日 第 36 卷 第 7 期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 7 Jul. 15, 2015

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清 华 大 学 环 境 学 院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧 阳 自 远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《 环 境 科 学 》 编 辑 委 员 会 北京市 2871 信箱(海淀区双清路 18 号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871 , Beijing 100085 , China Tel: 010-62941102 , 010-62849343 ; Fax : 010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街 16 号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street , Beijing 100717 , China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencecp. com	Distributed	by	Science Press Tel: 010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencecp. 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 国内邮发代号: 2-821
CN 11-1895/X

国 内 定 价: 120.00 元 国外发行代号: M 205

国 内 外 公 开 发 行