

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第5期

Vol.38 No.5

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

南京工业区分夏季二次有机气溶胶浓度估算及来源解析 刘静达, 安俊琳, 张玉欣, 师远哲, 林旭 (1733)

南京北郊大气细粒子在人体呼吸系统沉积特性 梁静舒, 安俊琳, 王红磊, 张玉欣, 王俊秀, 施双双, 王潇 (1743)

广西北海涠洲岛春季大气颗粒物浓度特征及影响因素 高元官, 张凯, 王体健, 陈志明, 耿红, 孟凡 (1753)

神农架大九湖大气中的多环芳烃 金梦云, 邢新丽, 柯艳萍, 郑煌, 胡天鹏, 孙焰, 丁洋, 李绘, 张泽洲, 祁士华 (1760)

沧州市春季 NMHCs 空间分布特征 段菁春, 周雪明, 张鹤丰, 谭吉华, 胡京南, 柴发合 (1769)

北京市民用燃煤烟气中气态污染物排放特征 梁云平, 张大伟, 林安国, 马召辉, 鄢晓东 (1775)

生活垃圾堆肥设施 VOCs 排放特征及臭氧生成潜势分析 邵珠泽, 郑国砥, 王元刚, 高定, 朱彦莉, 陈同斌, 聂二旗 (1783)

低温等离子体对复合 CVOCs 的降解特性 姜理英, 张迪, 郭海倩, 缪晶晶, 陈怡伶, 李慧 (1792)

运城市道路扬尘化学组成特征及来源分析 武媛媛, 李如梅, 彭林, 端允, 王海京, 李颖慧, 白慧玲, 牟玲 (1799)

高架道路周边建筑物灰尘重金属污染风险: 以常州市为例 姚静波, 王明新, 齐今笛, 孙向武, 张文艺 (1807)

上海降水中氢氧同位素特征及与 ENSO 的关系 董小芳, 邓黄月, 张杰, 朱志鹏, 王琳, 郑祥民, 周立旻 (1817)

DOC + CDPF 对重型柴油车排放特性的影响 张允华, 楼狄明, 谭丕强, 胡志远 (1828)

我国重点城市饮用水中砷健康累积风险评价 张秋秋, 潘申龄, 刘伟, 张昱, 安伟 (1835)

基于 Monte Carlo 模拟法对水源水体中微囊藻毒素的健康风险评估 王阳, 徐明芳, 耿梦梦, 黎明, 陈耕南 (1842)

北京城区水体中 PPCPs 的分布特征及潜在风险 张盼伟, 周怀东, 赵高峰, 李昆, 赵晓辉, 刘巧娜, 任敏, 赵丹丹, 李东佼 (1852)

长江口及邻近海域春夏季有色溶解有机物时空分布特征及主要影响因素 孙语嫣, 白莹, 苏荣国, 石晓勇 (1863)

垃圾填埋有色溶解性有机质与铜络合机制 肖骁, 何小松, 高如泰, 席北斗, 张慧, 黄彩红, 李丹, 袁志业 (1873)

3 种生物滞留设计对城市地表径流溶解性氮的去除作用 李立青, 胡楠, 刘雨情, 涂声亮, 陈华超 (1881)

三峡库区小流域稻田空间格局对氮磷流失影响 陈成龙, 高明, 倪九派, 谢德体, 邓华 (1889)

NO₃⁻-N 负荷对树皮填料人工湿地早期反硝化及释碳速率的影响 姜应和, 李瑶, 张莹, 张翔凌 (1898)

湿地基质及阴极面积对人工湿地型微生物燃料电池去除偶氮染料同步产电的影响 李薛晓, 程思超, 方舟, 李先宁 (1904)

阳极材料对 6 L 微生物燃料电池性能及有机废水处理效果的影响 丁为俊, 于立亮, 陈杰, 成少安 (1911)

臭氧-混凝交互作用对水体有机物的影响 刘海龙, 付晶森, 郭雪峰, 柴建恬, 张忠民 (1918)

紫外线和次氯酸钠对 *Escherichia coli* 和 Poliovirus 的消毒作用 徐丽梅, 张崇森, 王晓昌, 吉铮, 周进宏 (1928)

不同沉淀 pH 值条件下制备的水合氧化铝对水中磷酸盐的吸附作用 王星星, 林建伟, 詹艳慧, 张志斌, 邢云青, 姜博汇, 储鸣 (1936)

树脂基纳米钛铝氧化物复合吸附剂同步去除水中磷和氟 陈家凯, 聂广泽, 刘志英, 姚远, 徐炎华 (1947)

灼烧净水污泥投加方式对磷吸附和磷形态的影响 朱培颖, 李大鹏, 于胜楠 (1957)

城市污水管网中污染物冲刷与沉积规律 桑浪涛, 石烜, 张彤, 付博文, 金鹏康 (1965)

11 种邻苯二甲酸酯在好氧污水处理系统中的归趋 周林军, 古文, 刘济宁, 石利利, 徐炎华 (1972)

反硝化抑制硫酸盐还原的工艺特性 金鹏康, 杨珍瑞, 李蓉, 李岩, 周立辉 (1982)

Fe⁽⁰⁾-活性炭强化短程反硝化脱氮及影响因素 吕永涛, 刘婷, 曾玉莲, 孙婷, 张瑶, 王磊 (1991)

两种不同抑制策略下部分亚硝化系统运行特性比较 李惠娟, 彭党聪, 陈国燕, 王博, 姚倩, 卓杨 (1997)

基质比对 ABR 厌氧氨氧化工艺脱氮性能的影响 闰刚, 徐乐中, 沈耀良, 吴鹏, 张婷, Samwine Thomas (2006)

温度对 SCSC-S/Fe 复合系统脱氮除磷及微生物群落特性的影响 范军辉, 郝瑞霞, 朱晓霞, 万京京, 刘思远, 王丽沙 (2012)

SCAR 处理城市生活污水的效能及其微生物群落动态分析 杨波, 徐辉, 冯修平, 李方, 田晴, 马春燕 (2021)

喹啉降解菌 *Ochrobactrum* sp. 的好氧降解特性及其在焦化废水中的生物强化作用 徐伟超, 吴翠平, 张玉秀, 张琪, 张怡鸣 (2030)

锰氧化菌 *Arthrobacter* sp. HW-16 的锰氧化特性和氧化机制 万文结, 薛芷筠, 张泽文, 何冬兰 (2036)

温度对海洋厌氧氨氧化菌脱氮效能的影响 周同, 于德爽, 李津, 吴国栋, 王晓静 (2044)

包埋固定化活性污泥脱氮特性与微生物群落分析 许晓毅, 尤晓露, 吕晨培, 王斌, 胡碧波 (2052)

强化两相污泥高固厌氧消化系统的微生物群落 曹知平, 吴静, 左剑恶, 王晓璐, 王翀, 王广启, 王凯军, 钱易 (2059)

三峡库区城乡消落带人工植被恢复土壤放线菌多样性特征 秦红, 任庆水, 杨文航, 李昌晓 (2065)

川中丘陵区农田源头沟渠玉米季中氧化亚氮排放及其影响因素 田琳琳, 朱波, 汪涛, 赵原, 董宏伟, 任光前, 胡磊 (2074)

双氰胺对冬闲稻田和油菜地 N₂O 排放的影响 伍延正, 张苗苗, 秦红灵, 陈春兰, 王娟, 魏文学, 李勇 (2084)

生物炭介导的不同地表条件下土壤 N₂O 的排放特征 邹娟, 胡学玉, 张阳阳, 张迪, 陈威, 王向前, 陈窈君, 刘扬 (2093)

垄作秸秆覆盖下西南地区蚕豆田土壤呼吸与有机碳特征 熊瑛, 王龙昌, 杜娟, 赵琳璐, 周泉, 张赛 (2102)

广东省土壤 Cd 含量空间分布预测 孙慧, 郭治兴, 郭颖, 袁宇志, 柴敏, 毕如田, 杨静 (2111)

宿鸭湖沉积物重金属空间分布及潜在生态风险评价 张鹏岩, 康国华, 庞博, 郭依, 何坚坚, 秦明周 (2125)

腐殖酸活性组分及其比例对紫色潮土中铅形态转化和有效性演变动态的影响 王青清, 蒋珍茂, 王俊, 魏世强 (2136)

紫色水稻土颗粒有机质对重金属的富集特征 李秋言, 赵秀兰 (2146)

生物炭增强黄绵土对西替利嗪的吸附作用 吴志娟, 毕二平 (2154)

两种木材生物炭对铜离子的吸附特性及其机制 王彤彤, 马江波, 曲东, 张晓媛, 郑纪勇, 张兴昌 (2161)

牛粪源粪炭及其生物炭对 Pb²⁺、Cd²⁺ 的吸附特性 杜文慧, 朱维琴, 潘晓慧, 沈旭阳, 陈思远, 陈可乐, 坎吉汗·木沙拉, 张杭君, 丁颖 (2172)

C₃N₄/BiOBr 复合可见光催化剂的性能及其作用机制 鲍玥, 周旻昀, 邹骏华, 史宇滨, 万先凯, 史惠祥 (2182)

《环境科学》征稿简则(2020) 《环境科学》征订启事(2035) 信息(1782, 1798, 1827)

神农架大九湖大气中的多环芳烃

金梦云, 邢新丽*, 柯艳萍, 郑煌, 胡天鹏, 孙焰, 丁洋, 李绘, 张泽洲, 祁士华

(中国地质大学(武汉)环境学院, 生物地质与环境地质国家重点实验室, 武汉 430074)

摘要: 为了研究神农架大九湖大气中多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 的质量浓度、来源及健康风险, 用聚氨酯甲酸酯泡沫被动采样器对大九湖大气中的 PAHs 进行了季节性监测。结果表明, 大气中 \sum PAHs 的质量浓度为 $6.94 \sim 184.23 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均值为 $30.36 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 主要成分为非 (Phe)、萘 (Nap)、芘 (Pyr)、荧蒽 (Fla)、芴 (Flu) 和蒽 (Ant) 等低环数化合物。与其他地区相比, 大九湖大气中的 PAHs 处于较低污染水平。鹿场附近、大九湖泥炭区和大九湖管理局 PAHs 污染较严重。秋冬季污染较严重, 春夏季污染较轻。特征化合物含量比值法和后向轨迹聚类分析法解析结果表明, 大九湖大气中的 PAHs 污染主要来自煤和生物质的燃烧, 兼有机动车尾气排放和石油源, 既有当地排放又有来自湖北、河南和湖南等地的近源传输和少数西北方向的远源传输。健康风险评估结果表明, 总毒性当量质量浓度 ($\sum \text{BaP}_{\text{eq}}$) 年平均值为 $0.208 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 低于我国环境空气质量标准 (GB 3095-2012) 中规定的 BaP 年平均质量浓度限值 ($1 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$), 说明大九湖大气中 PAHs 的健康风险较小。

关键词: 大九湖; 大气; 多环芳烃; PUF; 长距离迁移; 后向轨迹分析; 健康风险评估

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)05-1760-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201609235

Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Atmosphere of Dajiuhu, Shennongjia, China

JIN Meng-yun, XING Xin-li*, KE Yan-ping, ZHENG Huang, HU Tian-peng, SUN Yan, DING Yang, LI Hui, ZHANG Ze-zhou, QI Shi-hua

(State Key Laboratory of Biogeology and Environmental Geology, School of Environmental Studies, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China)

Abstract: The concentration, potential source and health risks of 16 polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the atmosphere of Dajiuhu, Shennongjia, China, were studied. Polyurethane foam (PUF) Passive air samplers (PAS) were settled. The results indicated that the total concentrations of 16 PAHs in different samples ranged from 6.94 to $184.23 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, with the mean of $30.36 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$. The dominant compounds were low rings PAHs, such as Phe, Nap, Pyr, Fla, Flu and Ant. Compared with other regions, the PAHs pollution of Dajiuhu atmosphere was at a low level. Higher PAHs concentrations were detected in nearby Deer farm, Dajiuhu peat area and Dajiuhu Wetland Authority. Higher PAHs concentrations were detected in autumn and winter, whereas lower concentrations were detected in spring and summer. Potential pollution sources of PAHs were investigated by diagnostic ratios and backward trajectory analysis, which indicated that coal and biofuel combustion, vehicle emissions and petroleum were the main sources. PAHs of Dajiuhu in air not only came from local emission, but also originated from Hubei, Henan and Hunan's atmosphere transport for most part and long range transport from northwest direction for small part. Health risks assessment results showed that the annual average concentration of total Benzo (a) pyrene-equivalent carcinogenic potency ($\sum \text{BaP}_{\text{eq}}$) was $0.208 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, lower than the value recommended by Ambient Air Quality Standard of China (GB 3095-2012, $1 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$), indicating a low carcinogenic risk for the local residents.

Key words: Dajiuhu; atmosphere; polycyclic aromatic hydrocarbons; polyurethane foam; long-range transport; backward trajectory analysis; health risks assessment

多环芳烃是目前被广泛关注的一种持久性有机污染物 (persistent organic pollutants, POPs)。具有半挥发性和“三致”毒性。在大气中气、粒两相共存, 并可进行大气的长距离迁移。通过呼吸、饮食和皮肤接触等途径进入人体, 严重危害着人体健康^[1~4]。PAHs 主要来源于化石燃料、林木、塑料等物质的不完全燃烧^[2]。国内外许多学者已对室内外大气中气相和颗粒相多环芳烃的质量浓度、分布特征、迁

移转化、来源和健康风险展开了大量的研究^[5~8]。

在远离 POPs 释放源区的高海拔、高纬度地区, 由于气温低、POP 挥发性差, 是 POPs 重要的接收器

收稿日期: 2016-09-28; 修订日期: 2016-12-09

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41103065); 盆地水文过程与湿地生态恢复学术创新基地开放基金项目 (BHWER201503 (A))

作者简介: 金梦云 (1993~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为环境地球化学, E-mail: 18064060779@163.com

* 通信作者, E-mail: xingxinli5300225@163.com

和存储库^[9]. 在南北极^[10]和青藏高原^[11, 12]已检测到多环芳烃. 大九湖是神农架西部的一个封闭高山盆地, 海拔1 700 m以上, 具有与高纬度地区相似的冷凝作用且污染物不易扩散, 是 PAHs 的汇区之一.

本研究对大九湖大气中的 PAHs 进行了一年的分季度监测, 分析和评价了大气中 PAHs 的质量浓度、时空分布特征和健康风险, 用特征化合物含量比值法结合后向轨迹聚类分析解析了大气中 PAHs 的污染来源, 以期为大九湖生态环境保护和偏远山区 POPs 的长距离迁移研究提供科学数据.

1 材料与方法

1.1 样品采集

1.1.1 采样点位

大九湖面积 16 km², 其地理坐标约在东经 109°56′~110°11′、北纬 31°24′~31°33′之间. 盆地主体大致呈南北狭长形态, 南宽北窄. 年均温度为 7.2℃, 年均降水量为 1 535 mm^[13].

共设 4 个采样点, 分别位于大九湖的不同方位: 五湖(北)、鹿场附近(西)、大九湖泥炭区(南)和大九湖管理局房顶(东南). 采样时间为 2012-04-01~2013-03-22. 每个采样点放置两个聚氨酯甲酸酯泡沫 (polyurethane foam, PUF) 被动采样器 (passive air samplers, PAS), 采集大气平行样, 共采集 32 个样品. 为最大程度地避免点源污染的影响, 采样点大多选址于邻近地区的相对制高点上, 周围均无直接

的人类活动干扰^[14]. 研究区采样点分布见图 1. 采样参数见表 1.

1.1.2 采样仪器与方法

采用 PUF 被动式采样器采集大气样品^[15~17]. PUF 膜在采样前用二氯甲烷索氏抽提 24 h 净化, 在干燥皿中干燥后, 将其用干净铝箔包裹, 装在聚乙烯密实袋内密封保存. PUF 膜在采样后用铝箔包裹, 装在密实袋内密封保存. 所有 PUF 膜在采样前后均 -20℃ 保存至采样和分析.

1.2 室内分析

大气样品在用二氯甲烷索氏抽提 48 h 前, 加入 5 μL 质量浓度为 200 mg·L⁻¹ 的 5 种氘代多环芳烃 (蔡-d8、二氢茈-d10、菲-d10、蒽-d12 和茈-d12) 作为回收率指示化合物. 将抽提后的样品旋蒸 (水浴锅温度设为 40℃, 转数设为 60 r·min⁻¹) 并用正己烷进行溶剂置换后, 通过充填有硅胶、氧化铝和无水硫酸钠 (6、3 和 1 mL) 的层析柱净化样品 (样品过柱分离后, 用 25 mL 体积比为 2:3 的二氯甲烷/正己烷混合液淋洗柱体). 其中, 硅胶、氧化铝使用前用马弗炉 450℃ 灼烧 12 h, 冷却到 60℃ 后加入质量分数为 3% 的去离子水去活, 无水硫酸钠使用前用马弗炉 450℃ 灼烧 4 h 除水. 然后再旋蒸浓缩 (水浴锅温度设为 40℃, 转数设为 90 r·min⁻¹) 净化后的样品, 转移至细胞瓶, 氮吹至 0.2 mL, 加入 5 μL 质量浓度为 200 mg·L⁻¹ 的内标物六甲基苯后保存在冰箱直至使用 Agilent 5973N-GC/MSD 上机分析.

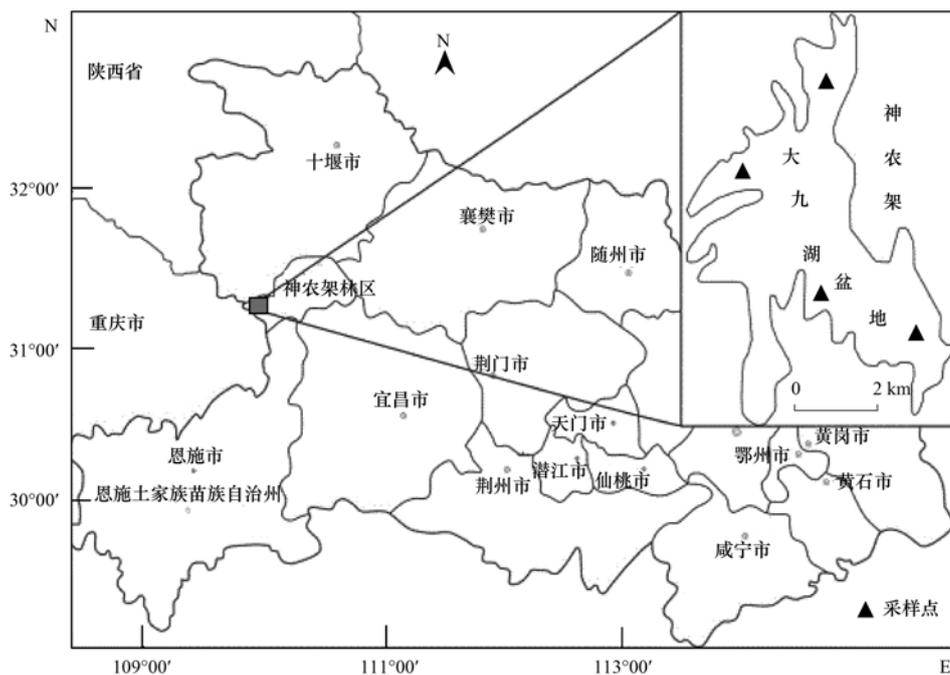


图 1 研究区采样点位分布示意

Fig. 1 Locations of sampling sites in the research region

使用了 16 种多环芳烃(萘 Nap、苊烯 Acy、苊 Ace、芴 Flu、菲 Phe、蒽 Ant、荧蒽 Fla、芘 Pyr、苯[a]蒽 BaA、蒾 Chr、苯并[b]荧蒽 BbF、苯并[k]荧蒽 BkF、苯并[a]芘 BaP、茚并[1,2,3-cd]芘 InP、二苯并[a,h]蒽 DaA、苯并[g,h,i]芘 BgP)的标准混合物,其单个 PAHs 的纯度达 98%。参考了美国环保

署 (the United States Environmental Protection Agency, US EPA)方法之 610 的 QA/QC。测试结果回收率分别为:35% ~ 125%、57% ~ 125%、79% ~ 116%、73% ~ 124%和 76% ~ 157%。Nap 易挥发,在实验过程中会发生损耗,数据均经过仪器校正和回收率校正。

表 1 采样参数

Table 1 Sampling parameters

采样季节	样品编号	采样地点	经度	纬度	高程/m	平均气温/℃
春季(91 d)	SP-WH	五湖所在地	110°00'9.1"	31°29'56.9"	1 790	17.8
	SP-LC	鹿场附近	109°58'42.8"	31°29'18.1"	1 770	
	SP-NT	大九湖泥炭区	110°00'10.5"	31°28'33.4"	1 760	
	SP-GL	大九湖管理局	110°01'43"	31°28'33.4"	1 792	
夏季(87 d)	SM-WH	五湖所在地	110°00'9.1"	31°29'56.9"	1 790	24.2
	SM-LC	鹿场附近	109°58'42.8"	31°29'18.1"	1 770	
	SM-NT	大九湖泥炭区	110°00'10.5"	31°28'33.4"	1 760	
	SM-GL	大九湖管理局	110°01'43"	31°28'33.4"	1 792	
秋季(69 d)	A-WH	五湖所在地	110°00'9.1"	31°29'56.9"	1 790	10.8
	A-LC	鹿场附近	109°58'42.8"	31°29'18.1"	1 770	
	A-NT	大九湖泥炭区	110°00'10.5"	31°28'33.4"	1 760	
	A-GL	大九湖管理局	110°01'43"	31°28'33.4"	1 792	
冬季(109 d)	W-WH	五湖所在地	110°00'9.1"	31°29'56.9"	1 790	3.3
	W-LC	鹿场附近	109°58'42.8"	31°29'18.1"	1 770	
	W-NT	大九湖泥炭区	110°00'10.5"	31°28'33.4"	1 760	
	W-GL	大九湖管理局	110°01'43"	31°28'33.4"	1 792	

2 结果与分析

2.1 大九湖大气中 PAHs 的浓度

大九湖大气样品中 16 种美国 EPA 优控多环芳烃均被检出,大量研究表明 PUF 被动采样器的

采样速率为 $3 \sim 4 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ ^[18],故本研究采用 $3.5 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$ 的采样率将 PUF 膜采集到的化合物质量转化成大气中该化合物的质量浓度。16 种优控多环芳烃的质量浓度($\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$)见表 2(平行样取平均值)。

表 2 大九湖大气中 16 种 PAHs 的质量浓度/ $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$

Table 2 Concentrations of 16 PAHs in the atmosphere of Dajiuhu/ $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$

组分	五湖				鹿场附近				大九湖泥炭区				大九湖管理局			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
Nap	3.48	1.07	1.78	0.51	1.44	1.94	1.96	0.57	2.42	1.80	5.02	0.80	1.95	2.04	4.77	1.30
Acy	0.02	0.13	0.09	0.07	0.02	0.44	0.32	0.15	0.08	0.23	0.78	0.21	0.09	0.30	0.88	0.38
Ace	0.10	0.15	0.15	0.07	0.08	0.58	2.36	0.12	0.09	0.40	0.51	0.24	0.09	0.28	0.50	0.19
Flu	0.27	0.75	1.80	2.06	0.50	2.13	12.97	3.14	0.57	2.18	4.10	4.63	0.66	1.69	3.97	3.51
Phe	2.59	2.57	4.43	5.82	2.19	12.11	76.11	17.03	5.75	8.21	17.11	22.79	6.59	8.40	18.61	17.10
Ant	0.17	0.27	1.08	0.61	0.16	1.13	25.65	1.81	0.22	0.82	3.73	3.24	0.28	0.70	3.51	2.06
Fla	0.83	0.99	0.81	0.99	1.04	6.09	23.89	3.60	2.36	3.60	2.91	3.53	2.68	3.49	3.31	3.30
Pyr	0.57	0.73	1.13	1.16	0.84	5.02	33.55	4.87	1.78	2.97	4.50	5.17	2.00	2.47	4.97	4.75
BaA	0.03	0.06	0.10	0.08	0.08	0.38	2.17	0.24	0.12	0.25	0.24	0.23	0.16	0.27	0.35	0.22
Chr	0.09	0.13	0.17	0.42	0.18	0.73	2.14	0.95	0.19	0.41	0.30	0.82	0.29	0.52	0.45	0.77
BbF	0.03	0.05	0.07	0.16	0.12	0.18	1.35	0.45	0.04	0.11	0.09	0.30	0.05	0.09	0.15	0.23
BkF	0.02	0.03	0.03	0.14	0.06	0.09	0.44	0.24	0.02	0.05	0.06	0.19	0.03	0.06	0.08	0.23
BaP	0.01	0.02	0.03	0.11	0.06	0.05	0.40	0.09	0.01	0.03	0.05	0.10	0.02	0.03	0.05	0.07
InP	0.03	0.02	0.02	0.05	0.09	0.05	0.44	0.13	0.01	0.03	0.06	0.09	0.02	0.04	0.07	0.07
DaA	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.10	0.01	0.01	0.02	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	0.02
BgP	0.03	0.03	0.03	0.05	0.06	0.08	0.39	0.11	0.01	0.02	0.05	0.08	0.02	0.02	0.06	0.06
∑ PAHs	8.27	7.01	11.73	12.30	6.94	31.01	184.23	33.53	13.69	21.13	39.52	42.46	14.95	20.42	41.73	34.25

如表 2 所示,大九湖大气中 \sum PAHs 的质量浓度为 6.94 ~ 184.23 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均值为 30.36 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$. PAHs 的主要成分为 Phe、Nap、Pyr、Fla、Flu 和 Ant 等低环数化合物,这与 PUF 被动采样器主要采集大气中气相 PAHs 有关^[19],而低环数 PAHs 多以气相状态存在于大气中,高环数 PAHs 则多存在于气溶胶中^[20]. 大气中 PAHs 的浓度随采样时间和采样地点发生变化. 空间分布上,五湖 PAHs 年平均质量浓度最低,为 9.86 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$,鹿场附近、大

九湖泥炭区和大九湖管理局房顶 PAHs 年平均质量浓度较高,分别为 54.96、29.29 和 27.35 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$. 时间分布上,秋、冬季 PAHs 质量浓度较高,分别为 69.30 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 30.64 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$,春、夏季 PAHs 质量浓度较低,分别为 10.96 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 19.89 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$.

2.2 与其他地区的比较

为了更清楚直观地反映大九湖大气中 PAHs 的污染水平,与国内外其他地区大气中气相 PAHs 的浓度进行比较,见表 3.

表 3 大九湖大气中气相 PAHs 的浓度与其他地区的比较

Table 3 Comparison of total PAHs concentrations in the atmospheric gas phase of Dajiuhu with other regions

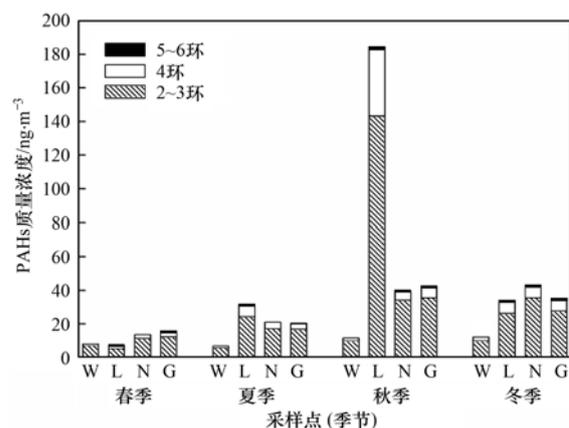
采样点	采样时间	PAHs 浓度/ $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$	文献
大九湖	2012-04 ~ 2013-03	30.36 (\sum PAHs 16)	本研究
青海瓦里关	2005-04 ~ 2005-05	17.10 (\sum PAHs 14)	[2]
哈尔滨	2008-08 ~ 2009-07	25.8 ~ 82.8 (\sum PAHs 16)	[21]
广西清水泉	2011-08 ~ 2012-01	45.33 (\sum PAHs 11)	[22]
泰国曼谷	2010-08 ~ 2010-09	57.8 (\sum PAHs 15)	[23]
云南腾冲	2005-10 ~ 2006-10	85.8 (\sum PAHs 15)	[24]
长三角城市群	2010-06 ~ 2011-06	96.3 (\sum PAHs 15)	[25]
土耳其 BUTAL	2004-07 ~ 2005-05	111.8 (\sum PAHs 12)	[26]
印度德里	2010-08 ~ 2010-09	122.02 (\sum PAHs 15)	[23]
西安	2008-08 ~ 2009-07	146 (\sum PAHs 16)	[27]
南京	2005-07 ~ 2005-10	182.45 (\sum PAHs 16)	[28]
乌鲁木齐南部	2011-12 ~ 2012-02	213.19 (\sum PAHs 16)	[4]
广州	2001-04 ~ 2002-03	312.9 (\sum PAHs 16)	[29]

由表 3 可知,大九湖大气中气相 PAHs 质量浓度与国内外一些地区相比,处于较低污染水平,与作为大气本底浓度监测站,较高海拔的青海瓦里关污染水平相当. 说明大气中 PAHs 污染与当地地理环境和人为活动有关,一些高山地区由于其特殊的地理环境且人为活动较少,PAHs 污染较轻.

3 讨论

3.1 四季 PAHs 污染变化

图 2 为大九湖四季 \sum PAHs 的质量浓度. 从中可知,秋季和冬季大气中 PAHs 含量高于春季和夏季. 可能的原因是寒冷季节供暖燃煤和生物质以及机动车冷启动燃烧效率降低产生更多的 PAHs,而且,秋、冬季易形成逆温天气,大气扩散能力弱,加重了 PAHs 污染. 而春、夏季有利于污染物的挥发和光降解^[21, 30],且大九湖属中纬度北亚热带季风气候,秋冬季干冷,春夏季潮湿多雨^[13],春夏季大气 PAHs 干湿沉降量较多,使得大气中的 PAHs 质量浓



W 代表五湖, L 代表鹿场附近, N 代表大九湖泥炭区, G 代表大九湖管理局房顶

图 2 大九湖四季 \sum PAHs 质量浓度的比较

Fig. 2 Concentrations of seasonal total PAHs in the atmosphere of Dajiuhu

度较低. 其中,鹿场附近秋季大气中 PAHs 的质量浓度特别高,考虑可能的原因为局地污染,该采样点靠近一家农家乐,可能与烹饪产生的 PAHs 污染(煤

和生物质燃烧以及炊烟)有关,也可能与大气远距离传输有关,将在污染源解析中进一步分析其污染来源.

3.2 不同采样点 PAHs 污染变化

图 3 为大九湖各采样点 \sum PAHs 的质量浓度. 从中可知,鹿场附近、大九湖泥炭区和大九湖管理局大气中 PAHs 质量浓度较高,五湖 PAHs 质量浓度较低. 可能的原因是它们分别位于大九湖 4 个不同的方位,可能与大气长距离传输有关. 且五湖采样点周围较空旷,人为污染源较少;大九湖泥炭区靠近鹿场,可能与旅游污染源有关(如机动车尾气排放等);大九湖管理局靠近公路,有机动车尾气排放源,且管理局有工作人员值班,有一定人为活动,会对 PAHs 污染产生一定影响.

3.3 PAHs 污染来源解析

3.3.1 特征化合物含量比值法

大气环境中 PAHs 的组成受多种因素的影响:源排放特征及强度、燃烧温度、空气/燃料比、传输过程中环境条件的变化等. 但一些 PAHs 之间的相对含量往往比较稳定,因此可以根据 PAHs 的特征

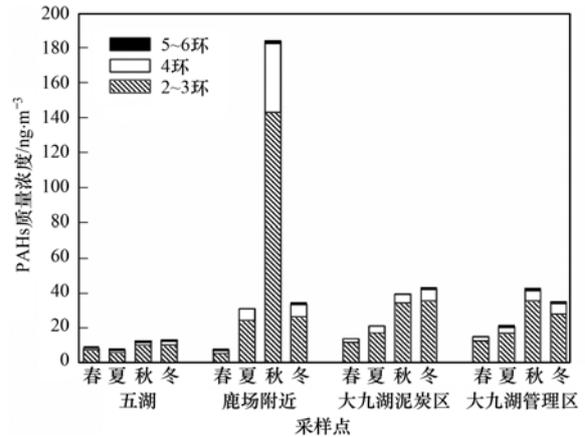


图 3 大九湖不同采样点 \sum PAHs 质量浓度的比较

Fig. 3 Concentrations of total PAHs in different sampling sites of Dajiuhu

化合物含量比值来定性判断 PAHs 的来源^[31].

筛选 $Ant/(Ant + Phe)$ 、 $BaA/(BaA + Chr)$ 、 $Fla/(Fla + Pyr)$ 、 BaP/BgP 和 $InP/(InP + BgP)$ 等参数来识别大九湖大气中多环芳烃的污染来源^[19, 31, 32],各个参数的源解析参考比值见表 4. 大九湖大气中 PAHs 的特征化合物含量比值见表 5.

表 4 PAHs 源解析特征化合物含量参考比值表

Table 4 Values of molecular diagnostic ratios of PAHs for source identification

污染源	$Ant/(Ant + Phe)$	$BaA/(BaA + Chr)$	$Fla/(Fla + Pyr)$	BaP/BgP	$InP/(InP + BgP)$
石油	<0.1	<0.2	<0.4		
燃烧	>0.1	>0.35			
石油、燃烧		0.2~0.35			
煤和生物质燃烧			>0.5		
燃煤				0.9~6.6	
交通			0.4~0.5	0.3~0.44	
燃煤、交通				0.44~0.9	
汽油车					0.18
柴油车					0.37

表 5 大九湖大气中 PAHs 特征化合物含量比值表

Table 5 Values of molecular diagnostic ratios of PAHs for atmosphere samples collected from Dajiuhu

采样点(季节)	$Ant/(Ant + Phe)$	$BaA/(BaA + Chr)$	$Fla/(Fla + Pyr)$	BaP/BgP	$InP/(InP + BgP)$
五湖(春)	0.06	0.25	0.59	0.47	0.52
五湖(夏)	0.09	0.33	0.58	0.94	0.42
五湖(秋)	0.20	0.38	0.42	0.76	0.42
五湖(冬)	0.09	0.16	0.46	2.11	0.49
鹿场(春)	0.07	0.29	0.55	0.89	0.57
鹿场(夏)	0.09	0.34	0.55	0.63	0.40
鹿场(秋)	0.25	0.50	0.42	1.03	0.53
鹿场(冬)	0.10	0.20	0.42	0.76	0.54
泥炭区(春)	0.04	0.39	0.57	0.86	0.49
泥炭区(夏)	0.09	0.38	0.55	1.44	0.59
泥炭区(秋)	0.18	0.45	0.39	0.98	0.57
泥炭区(冬)	0.12	0.22	0.41	1.25	0.52
管理局(春)	0.04	0.36	0.57	1.29	0.57
管理局(夏)	0.08	0.35	0.59	1.15	0.61
管理局(秋)	0.16	0.43	0.40	0.76	0.53
管理局(冬)	0.11	0.23	0.41	1.12	0.51

从表 4 和表 5 可以看出,对于 $\text{Ant}/(\text{Ant} + \text{Phe})$,大九湖大气样品中该比值 >0.1 和 <0.1 各占一半,说明石油源和燃烧源是其共同污染源. 对于 $\text{BaA}/(\text{BaA} + \text{Chr})$,大九湖大气样品中该比值大多 >0.35 ,其余则为 $0.2 \sim 0.35$ (除五湖冬季该比值为 0.16 外),表明大九湖大气中 PAHs 污染主要以燃烧源为主,兼有石油源. 对于 $\text{Fla}/(\text{Fla} + \text{Pyr})$,该比值均 >0.5 或为 $0.4 \sim 0.5$ (除大九湖泥炭区秋季该比值为 0.39 外),表明大九湖大气中 PAHs 污染主要来自煤和生物质燃烧及交通污染源.

对于 BaP/BgP ,大九湖大气样品中该比值大多为 $0.9 \sim 6.6$,其余则为 $0.44 \sim 0.9$,表明大九湖大气中 PAHs 污染主要以燃煤源为主,兼有交通污染源. 对于 $\text{InP}/(\text{InP} + \text{BgP})$,研究区大气中该比值均 >0.37 ,表明 PAHs 污染主要以柴油车来源为主. 以上 5 个特征化合物含量比值解析结果表明,大九湖大气中的 PAHs 污染主要来自煤和生物质的燃烧,兼有石油源和交通污染源,交通污染源则以柴油车污染为主.

据报道,燃烧排放源中 Ant 与 Phe 的含量相近,而 Ant 比 Phe 易于光降解^[33],因此大气中 Phe/Ant 的值就可以作为判断多环芳烃是远距离传输还是当地排放的一个参数. 大九湖大气中 Phe/Ant 的平均值为 10.77 ,说明大九湖大气中的多环芳烃主要来自于大气远距离传输(Ant 已大量降解),当地污染贡献较小. 类似地,大气中 Fla 和 Pyr 的比值也是衡量多环芳烃是否经历远源传输的有用指标. Fla 在热力学上比 Pyr 稳定,较高的 Fla/Pyr 值往往意味着多环芳烃是从遥远地区经过大气传输到达研究区^[33]. 大九湖大气中 Fla/Pyr 的平均值为 1.02 ,说明大气的远距离输送和当地排放是大九湖大气中存在多环芳烃的原因.

综上所述,大九湖大气中 PAHs 污染主要来自煤和生物质的燃烧,兼有石油源和交通污染源,交通污染源以柴油车排放为主. 既来自于大气远距离传输,又来自当地排放. 而神农架大九湖国家湿地公园作为国家 5A 级景区,旅游会带来交通污染源,同时大九湖也有一些居民,他们烹饪等日常生活会带来煤和生物质的燃烧,且由于大九湖特殊的地理位置,是全球大气 PAHs 远距离传输的汇区之一. 这与以上研究结果相符.

3.3.2 后向轨迹分析

为了研究大九湖大气中 PAHs 的远程传输过程,利用美国海洋与大气研究中心空气资源实验室

开发的后向轨迹模型 (hybrid single-particle lagrangian integrated trajectory Model, HYSPLIT) 结合 GDAS 气象资料 (<ftp://arlftp.arlhq.noaa.gov/pub/archives/gdas1/>) 来研究采样期间大九湖的气团轨迹.

由于大九湖泥炭区是大片的沼泽和湿地,较开阔,人为干扰较少,故以大九湖泥炭区的坐标 ($110^{\circ}00'10.5''$, $31^{\circ}28'33.4''$) 作为污染源区坐标,计算采样期间大九湖每日 UTC 时间 16:00 时(对应北京时间 00:00 时)1000 m 高度的 72 h 后向轨迹,并分季度进行聚类分析^[34]. 四季后向轨迹聚类分析结果如图 4 所示.

从图 4(a)可以看出,春季大九湖的气团主要来自东北(占 46%)和西方(占 37%)的近源气流输送,少部分来自西北方向(占 16%)的远源传输. 说明春季大九湖大气中 PAHs 污染传输主要来自邻近地区(河南、湖北等地)的大气传输,少部分来自西北方向的远源传输. 从图 4(b)可以看出,夏季大九湖的气团主要来自东北方向(轨迹 3 占 34%,轨迹 4 占 24%)的气流输送,部分来自东南(占 18%)和西南(占 13%)方向,少部分来自西北方向(占 10%)的远源传输. 说明夏季大九湖大气中 PAHs 污染传输主要来自湖北、河南、湖南和贵州等地,少部分来自西北方向的远源传输. 从图 4(c)可以看出,秋季大九湖的气团主要来自东方(占 30%)、北方(占 25%)、西方(占 16%)和南方(占 14%)的近源气流输送,少部分来自西北方向(轨迹 3 占 9%、轨迹 6 和轨迹 7 各占 3%)的远源传输. 说明秋季大九湖大气中 PAHs 污染传输主要来自河南、湖北、四川和湖南等地,少部分来自西北方向的远源传输. 从图 4(d)可以看出,冬季大九湖的气团主要来自北方(占 94%)的近源气流输送,少部分来自西北方向(占 6%)的远源传输. 说明冬季大九湖大气中 PAHs 污染传输主要来自湖北邻近地区的近源传输,少部分来自西北方向的远源传输. 以上后向轨迹聚类分析结果说明,采样期间大九湖大气中的 PAHs 除来自当地排放外,主要来自湖北、河南和湖南等邻近地区的近源污染传输,少部分来自西北方向的大气长距离输送. 春、夏季以东北风为主,秋、冬季以北风为主.

3.4 健康风险评价

苯并(a)芘(BaP)是一种具有强致癌性、强致畸活性的 PAHs,我国环境空气质量标准(GB 3095-2012)中规定的 BaP 年平均质量浓度限值为

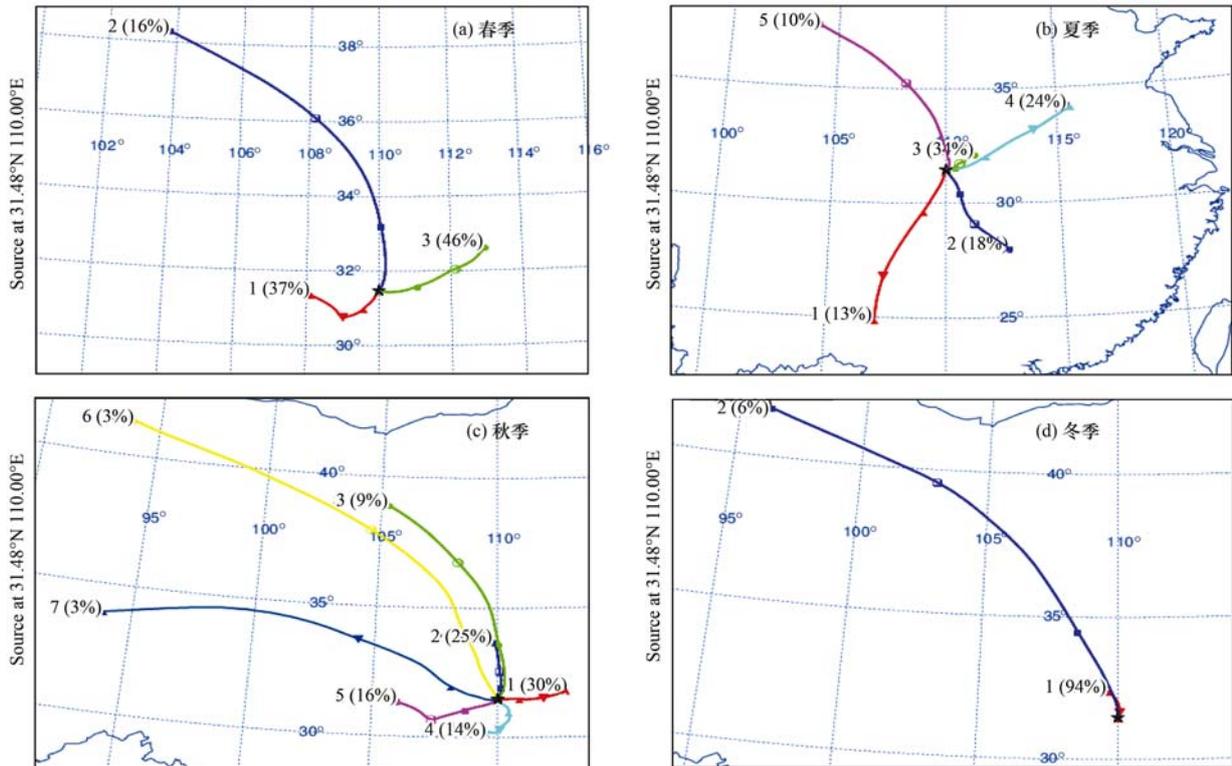


图 4 春、夏、秋、冬季后向轨迹聚类分析

Fig. 4 Backward trajectory cluster analysis of air mass of Dajiu Lake in the four seasons

$1 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$. 本研究中, 采样期间大九湖大气中 BaP 的年平均质量浓度为 $0.067 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 远低于我国环境空气质量标准规定的限值. 说明采样期间大九湖大气中的 BaP 污染较轻. 由于 16 种美国 EPA 优控 PAHs 都具有不同程度的毒性, 根据 Nisbet 等^[35] 于 1992 年引入的毒性当量因子 (TEF) 计算每个 PAHs 单体的毒性当量质量浓度 (BaP_{eq}), 从而计算出总毒性当量质量浓度 ($\sum \text{BaP}_{\text{eq}}$). 结果表明, $\sum \text{BaP}_{\text{eq}}$ 年平均质量浓度为 $0.208 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 低于我国环境空气质量标准规定的 BaP 年平均质量浓度限值, 说明大九湖大气中 PAHs 的健康风险较小. 由于我国环境空气质量标准中的 BaP 是指存在于颗粒物 (粒径 $\leq 10 \mu\text{m}$) 中的苯并[a]芘, 而 PUF 被动采样器主要采集大气气相中的 PAHs, 因而本研究计算所得的毒性当量浓度主要反映了该地区大气气相中 PAHs 的贡献, 而颗粒相中 PAHs 的影响亦不容忽视, 有待于进一步研究.

4 结论

(1) 大九湖大气中 $\sum \text{PAHs}$ 的质量浓度为 $6.94 \sim 184.23 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 平均值为 $30.36 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$. 主要成分为 Phe、Nap、Pyr、Fla、Flu 和 Ant 等低环数

化合物. 与其他地区相比, 大九湖大气中的 PAHs 处于较低污染水平, 与作为大气本底浓度监测站, 较高海拔的青海瓦里关污染水平相当.

(2) 大气中 PAHs 的浓度随采样时间和采样地点发生变化. 空间分布上, 五湖 PAHs 年平均质量浓度最低, 为 $9.86 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 鹿场附近、大九湖泥炭区和大九湖管理局房顶 PAHs 年平均质量浓度较高, 分别为 54.96 、 29.29 和 $27.35 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$. 时间分布上, 秋、冬季 PAHs 质量浓度较高, 分别为 $69.30 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $30.64 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 春、夏季 PAHs 质量浓度较低, 分别为 $10.96 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $19.89 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$.

(3) 特征化合物含量比值法和后向轨迹聚类分析法解析结果表明: 大九湖大气中的 PAHs 污染主要来自煤和生物质的燃烧, 兼有石油源和交通污染源, 交通污染源以柴油车排放为主. 既有当地排放又有来自湖北、河南和湖南等地的近源传输和少数西北方向的远源传输.

(4) 健康风险评价结果表明, $\sum \text{BaP}_{\text{eq}}$ 年平均质量浓度为 $0.208 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 低于我国环境空气质量标准 (GB 3095-2012) 中规定的 BaP 年平均质量浓度限值 ($1 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$), 说明大九湖大气中 PAHs 的健康风险较小.

参考文献:

- [1] 胡海, 李涵, 张红菱. 可蓄积到食物中的持久性有机污染物及其检测技术研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2014, 5(2): 463-467.
Hu H, Li H, Zhang H L. Progress on persistent organic pollutants accumulated in food and their detection technologies [J]. Journal of Food Safety and Quality, 2014, 5(2): 463-467.
- [2] 成海容, 张干, 刘向, 等. 青海瓦里关大气中多环芳烃的研究[J]. 中国环境科学, 2006, 26(6): 646-649.
Cheng H R, Zhang G, Liu X, *et al.* Studies on polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmosphere of Waliguan, Qinghai [J]. China Environmental Science, 2006, 26(6): 646-649.
- [3] Chang K F, Fang G C, Chen J C, *et al.* Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Asia: a review from 1999 to 2004[J]. Environmental Pollution, 2006, 142(3): 388-396.
- [4] 古孜扎尔·米吉提, 迪丽努尔·塔力甫, 王新明, 等. 乌鲁木齐南部冬季空气中气相多环芳烃的特征[J]. 干旱环境监测, 2015, 29(1): 11-17, 27.
Guzizaeri M, Dilinuer T, Wang X M, *et al.* Gaseous polycyclic aromatic hydrocarbons in southern part of Urumqi Air[J]. Arid Environmental Monitoring, 2015, 29(1): 11-17, 27.
- [5] 魏志成, 常彪, 邱炜珣, 等. 北京市民居室室内气态 PAHs 浓度及其影响因素[J]. 环境科学, 2007, 28(9): 2074-2079.
Wei Z C, Chang B, Qiu W X, *et al.* Concentrations and influencing factors of gaseous polycyclic aromatic hydrocarbons in residential air in Beijing[J]. Environmental Science, 2007, 28(9): 2074-2079.
- [6] Zhang Y J, Lin Y, Cai J, *et al.* Atmospheric PAHs in North China: spatial distribution and sources[J]. Science of the Total Environment, 2016, 565: 994-1000.
- [7] Hong W J, Jia H L, Ma W L, *et al.* Distribution, fate, inhalation exposure and lung cancer risk of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in some Asian countries [J]. Environmental Science & Technology, 2016, 50(13): 7163-7174.
- [8] Wang J, Yang L, Ma T Y, *et al.* Source apportionment research of fine particulate matter in the atmosphere by PAHs [J]. Chemical Research in Chinese Universities, 2016, 32(5): 746-753.
- [9] Kang J H, Choi S D, Park H, *et al.* Atmospheric deposition of persistent organic pollutants to the East Rongbuk Glacier in the Himalayas[J]. Science of the Total Environment, 2009, 408(1): 57-63.
- [10] Kallenborn R, Oehme M, Wynn-Williams D D, *et al.* Ambient air levels and atmospheric long-range transport of persistent organochlorines to Signy Island, Antarctica[J]. Science of the Total Environment, 1998, 220(2-3): 167-180.
- [11] Wang Y P, Yao T D, Cong Z Y, *et al.* Gradient distribution of persistent organic contaminants along northern slope of central-Himalayas, China[J]. Science of the Total Environment, 2006, 372(1): 193-202.
- [12] Gong P, Wang X P, Xue Y G, *et al.* Influence of atmospheric circulation on the long-range transport of organochlorine pesticides to the western Tibetan Plateau [J]. Atmospheric Research, 2015, 166: 157-164.
- [13] 张华, 蔡靖芳, 刘会平. 神农架大九湖 12 500 a. B. P 以来的孢粉植物群与气候变化[J]. 华中师范大学学报(自然科学版), 2002, 36(1): 87-92.
Zhang H, Cai J F, Liu H P. The palynofloras and climate change in Dajuhu basin of Shennongjia Mountains during the last 12 500 a. B. P[J]. Journal of Central China Normal University (Natural Sciences), 2002, 36(1): 87-92.
- [14] 刘国卿, 张干, 李军, 等. 利用 SPMD 技术监测珠江三角洲大气中多环芳烃[J]. 中国环境科学, 2004, 24(3): 340-344.
Liu G Q, Zhang G, Li J, *et al.* Studies on monitoring atmospheric PAHs utilizing SPMD technique in the Pearl River Delta[J]. China Environmental Science, 2004, 24(3): 340-344.
- [15] Qu C K, Xing X L, Albanese S, *et al.* Spatial and seasonal variations of atmospheric organochlorine pesticides along the plain-mountain transect in central China: regional source vs. Long-range transport and air-soil exchange [J]. Atmospheric Environment, 2015, 122: 31-40.
- [16] Estellano V H, Pozo K, Harner T, *et al.* Altitudinal and seasonal variations of persistent organic pollutants in the Bolivian Andes mountains [J]. Environmental Science & Technology, 2008, 42(7): 2528-2534.
- [17] Pozo K, Harner T, Wania F, *et al.* Toward a global network for persistent organic pollutants in air: results from the GAPS Study [J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40(16): 4867-4873.
- [18] Liu X, Zhang G, Li J, *et al.* Seasonal patterns and current sources of DDTs, chlordanes, hexachlorobenzene, and endosulfan in the atmosphere of 37 Chinese cities [J]. Environmental Science & Technology, 2009, 43(5): 1316-1321.
- [19] 马万里, 李一凡, 孙德智, 等. 哈尔滨市大气气相中多环芳烃的研究[J]. 环境科学, 2009, 30(11): 3167-3172.
Ma W L, Li Y F, Sun D Z, *et al.* Gaseous polycyclic aromatic hydrocarbons in Harbin Air[J]. Environmental Science, 2009, 30(11): 3167-3172.
- [20] 黄业茹, 狄一安, 施钧慧, 等. 北京、东京、筑波大气中有机污染物组成研究[J]. 环境科学研究, 2001, 14(1): 4-8.
Huang Y R, Di Y A, Shi J H, *et al.* PAHs and normal-alkanes in urban air of Beijing, Tokyo and Tsukuba [J]. Research of Environmental Sciences, 2001, 14(1): 4-8.
- [21] 孔令军. 哈尔滨大气中 PAHs 污染特征[J]. 环境科学与管理, 2012, 37(6): 145-152.
Kong L J. Pollution characteristic of PAHs in air in Harbin [J]. Environmental Science and Management, 2012, 37(6): 145-152.
- [22] 孔祥胜, 苗迎. 大气干湿沉降: 地下水多环芳烃的重要来源——以广西清水泉地下水为例[J]. 地球学报, 2014, 35(2): 239-247.
Kong X S, Miao Y. Atmospheric depositions, PAHs sources of an underground river: a case study of the Qingshuiquan Underground River [J]. Acta Geoscientica Sinica, 2014, 35(2): 239-247.
- [23] 孙海峰, 朱亚先, 张振轩, 等. 亚太地区部分国家城乡大气中 PAHs 的分布[A]. 见: 清华大学持久性有机污染物研究中心, 环境保护部斯德哥尔摩公约履约办公室, 中国环境科学学会持久性有机污染物专业委员会等. 持久性有机污染物

- 论坛 2011 暨第六届持久性有机污染物全国学术研讨会论文集[C]. 哈尔滨: 中国化学会, 2011. 359-360.
- Sun H F, Zhu Y X, Zhang Z X, *et al.* The distribution of PAHs in rural and urban atmosphere in some Asia Pacific Countries [A]. In: Persistent Organic Pollutants (POPs) Research Center, Tsinghua University, Ministry of Environmental Protection Stockholm Convention Compliance Office, China Environmental Science Society of Persistent Organic Pollutants Committee, *et al.* (Eds.). Proceedings of the Persistent Organic Pollutants Forum 2011 and the 6th National Symposium on Persistent Organic Pollutants [C]. Harbin: Chinese Chemical Society, 2011. 359-360.
- [24] 徐玥, 赵斌, 刘东廷, 等. 我国腾冲大气 PAHs 的可能来源分析[J]. 中国环境科学, 2011, **31**(5): 714-718.
- Xu Y, Zhao B, Liu D T, *et al.* Potential sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) at Tengchong, Southwestern China[J]. China Environmental Science, 2011, **31**(5): 714-718.
- [25] 张利飞, 杨文龙, 董亮, 等. 利用 PUF 被动采样技术研究长三角城市群大气中多环芳烃的时空分布及来源[J]. 环境科学, 2013, **34**(9): 3339-3346.
- Zhang L F, Yang W L, Dong L, *et al.* PUF passive air sampling of polycyclic aromatic hydrocarbons in atmosphere of the Yangtze River Delta, China: spatio-temporal distribution and potential sources[J]. Environmental Science, 2013, **34**(9): 3339-3346.
- [26] Esen F, Cindoruk S S, Tasdemir Y. Bulk deposition of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in an industrial site of Turkey[J]. Environmental Pollution, 2008, **152**(2): 461-467.
- [27] 周变红, 张承中, 王格慧. 西安城区大气中多环芳烃的季节变化特征及健康风险评估[J]. 环境科学学报, 2012, **32**(9): 2324-2331.
- Zhou B H, Zhang C Z, Wang G H. Seasonal variation and health risk assessment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the urban area of Xi'an [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2012, **32**(9): 2324-2331.
- [28] 李秋歌, 赵欣, An L, 等. 南京大气中多环芳烃的污染趋势及分布[A]. 见: 清华大学持久性有机污染物研究中心, 国家环境保护总局斯德哥尔摩公约履约办公室, 中国化学会环境化学专业委员会, 等. 第一届持久性有机污染物全国学术研讨会暨 2006 持久性有机污染物论坛论文集[C]. 北京: 中国环境科学学会, 2006. 45-49.
- Li Q G, Zhao X, An L, *et al.* Pollution trend and distribution of PAHs in Nanjing atmosphere [A]. In: Persistent Organic Pollutants (POPs) Research Center, Tsinghua University, Ministry of Environmental Protection Stockholm Convention Compliance Office, China Environmental Science Society of Persistent Organic Pollutants Committee, *et al.* (Eds.). Proceedings of the Persistent Organic Pollutants Forum 2006 and the 6th National Symposium on Persistent Organic Pollutants [C]. Beijing: China Environmental Science Society, 2006. 45-49.
- [29] 李军, 张干, 祁士华. 广州市大气中多环芳烃分布特征、季节变化及其影响因素[J]. 环境科学, 2004, **25**(3): 7-13.
- Li J, Zhang G, Qi S H. Characteristics and seasonal variations and influence factors on polycyclic aromatic hydrocarbons in Guangzhou City[J]. Environmental Science, 2004, **25**(3): 7-13.
- [30] 李伟芳, 彭跃, 赵丽娟, 等. 东北地区城市大气颗粒物中多环芳烃的污染特征[J]. 中国环境监测, 2013, **29**(1): 13-17.
- Li W F, Peng Y, Zhao L J, *et al.* Study on the pollution characteristics of particulate PAHs in the urban northeast region of China [J]. Environmental Monitoring in China, 2013, **29**(1): 13-17.
- [31] 于国光, 王铁冠, 王玮, 等. 内蒙古鄂尔多斯市大气气溶胶中的多环芳烃[J]. 中国环境科学, 2008, **28**(1): 12-17.
- Yu G G, Wang T G, Wang W, *et al.* Studies on PAHs in aerosol of E'erdusi City [J]. China Environmental Science, 2008, **28**(1): 12-17.
- [32] 陈晓秋, 张建华, 俞是聃, 等. 交通路口大气气溶胶的污染状况以及多环芳烃的污染特征研究[J]. 分析测试技术与仪器, 2007, **13**(3): 194-198.
- Chen X Q, Zhang J H, Yu S D, *et al.* The pollution state of atmospheric aerosol and pollution property of PAHs in atmospheric aerosol at the traffic crossing [J]. Analysis and Testing Technology and Instruments, 2007, **13**(3): 194-198.
- [33] 汤莉莉, 牛生杰, 樊曙先, 等. 瓦里关及西宁 PM₁₀ 和多环芳烃谱分布的观测研究[J]. 高原气象, 2010, **29**(1): 236-243.
- Tang L L, Niu S J, Fan S X, *et al.* Observational study of spectral distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and PM₁₀ in Waliguan and Xining [J]. Plateau Meteorology, 2010, **29**(1): 236-243.
- [34] 石春娥, 姚叶青, 邱明燕, 等. 合肥市 PM₁₀ 浓度的后向轨迹-聚类分析-统计分析[A]. 见: 中国气象学会 2006 年年会论文集[C]. 成都: 中国气象学会, 2006. 37-45.
- Shi C E, Yao Y Q, Qiu M Y, *et al.* Backward trajectory-cluster analysis-statistical analysis of the concentration of PM₁₀ in Hefei [A]. In: Proceedings of the Annual Meeting of the Chinese Meteorological Society [C]. Chengdu: China Meteorological Society, 2006. 37-45.
- [35] Nisbet I C T, LaGoy P K. Toxic equivalency factors (TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) [J]. Regulatory Toxicology and Pharmacology, 1992, **16**(3): 290-300.

CONTENTS

Estimating the Secondary Organic Aerosol Concentration and Source Apportionment During the Summer and Winter in the Nanjing Industrial District	LIU Jing-da, AN Jun-lin, ZHANG Yu-xin, <i>et al.</i> (1733)
Modeled Deposition of Fine Particles in Human Airway in Northern Suburb of Nanjing	LIANG Jing-shu, AN Jun-lin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (1743)
Concentration Characteristics and Influencing Factors of Atmospheric Particulate Matters in Spring on Weizhou Island, Beihai, Guangxi Province	GAO Yuan-guan, ZHANG Kai, WANG Ti-jian, <i>et al.</i> (1753)
Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Atmosphere of Dajiuhe, Shennongjia, China	JIN Meng-yun, XING Xin-li, KE Yan-ping, <i>et al.</i> (1760)
Spatial Distribution Characteristics of NMHCs in Spring in Cangzhou City	DUAN Jing-chun, ZHOU Xue-ming, ZHANG He-feng, <i>et al.</i> (1769)
Emission Characteristics of Residential Coal Combustion Flue Gas in Beijing	LIANG Yun-ping, ZHANG Da-wei, LIN An-guo, <i>et al.</i> (1775)
Emission Characteristics and Ozone Formation Potential of VOCs from a Municipal Solid Waste Composting Plant	SHAO Zhu-ze, ZHENG Guo-di, WANG Yuan-gang, <i>et al.</i> (1783)
Degradation Characteristics of Composite CVOCs by Non-thermal Plasma	JIANG Li-ying, ZHANG Di, GUO Hai-qian, <i>et al.</i> (1792)
Chemical Compositions and Source Apportionment of Road Dust in Yuncheng	WU Yuan-yuan, LI Ru-mei, PENG Lin, <i>et al.</i> (1799)
Pollution Risk of Heavy Metals in Dust from the Building Along Elevated Road; A Case Study in Changzhou	YAO Jing-bo, WANG Ming-xin, QI Jin-di, <i>et al.</i> (1807)
Characteristics of Stable Isotope in Precipitation and Its Relationship with ENSO in Shanghai	DONG Xiao-fang, DENG Huang-yue, ZHANG Luan, <i>et al.</i> (1817)
Effects of DOC + CDPF on Emission Characteristics of Heavy-duty Diesel Vehicle	ZHANG Yun-hua, LOU Di-ming, TAN Pi-qiang, <i>et al.</i> (1828)
Accumulated Health Risk Assessment of Arsenic in Drinking Water of Major Cities of China	ZHANG Qiu-qiu, PAN Shen-ling, LIU Wei, <i>et al.</i> (1835)
Health Risk Assessment of Microcystins from Drinking Water Source by Monte Carlo Simulation Method	WANG Yang, XU Ming-fang, GENG Meng-meng, <i>et al.</i> (1842)
Potential Risk and Distribution Characteristics of PPCPs in Surface Water and Sediment from Rivers and Lakes in Beijing, China	ZHANG Pan-wei, ZHOU Huai-dong, ZHAO Gao-feng, <i>et al.</i> (1852)
Assessment of the Spatial-temporal Distribution Characteristics and Main Affecting Factors of Chromophoric Dissolved Organic Matter in Spring and Summer at the Changjiang Estuary and Adjacent Areas	SUN Yu-yan, BAI Ying, SU Rong-guo, <i>et al.</i> (1863)
Complexation Between Copper (II) and Colored Dissolved Organic Matter from Municipal Solid Waste Landfill	XIAO Xiao, HE Xiao-song, GAO Ru-tai, <i>et al.</i> (1873)
Effects of Three Bioretention Configurations on Dissolved Nitrogen Removal from Urban Stormwater	LI Li-qing, HU Nan, LIU Yu-qing, <i>et al.</i> (1881)
Influence of Spatial Pattern of Paddy Field on the Losses of Nitrogen and Phosphorus in Three Gorges Reservoir Area	CHEN Cheng-long, GAO Ming, NI Jiu-pai, <i>et al.</i> (1889)
Effects of NO ₃ ⁻ -N Loading on the Early-Period Efficiency of Denitrification and Carbon Releasing in Constructed Wetland Filled with Bark	JIANG Ying-be, LI Yao, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (1898)
Effects of Microbial Fuel Cell Coupled Constructed Wetland with Different Support Matrix and Cathode Areas on the Degradation of Azo Dye and Electricity Production	LI Xue-xiao, CHENG Si-chao, FANG Zhou, <i>et al.</i> (1904)
Effects of Anode Materials on Electricity Generation and Organic Wastewater Treatment of 6 L Microbial Fuel Cells	DING Wei-jun, YU Li-liang, CHEN Jie, <i>et al.</i> (1911)
Effects of Joint-reaction Combined by Ozonation and Coagulation on Aquatic Organic Matters	LIU Hai-long, FU Jing-miao, GUO Xue-feng, <i>et al.</i> (1918)
Disinfection Action of Ultraviolet Radiation and Chlorination on <i>Escherichia coli</i> and Poliovirus	XU Li-mei, ZHANG Chong-miao, WANG Xiao-chang, <i>et al.</i> (1928)
Adsorption of Phosphate from Aqueous Solution on Hydrous Zirconium Oxides Precipitated at Different pH Values	WANG Xing-xing, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (1936)
Performance of Polymer-based Titanium and Zirconium Oxides Composite Adsorbent for Simultaneous Removal of Phosphorus and Fluorine from Water	CHEN Jia-kai, NIE Guang-ze, LIU Zhi-ying, <i>et al.</i> (1947)
Effect of Different Adding Means of Ignited Water Purification Sludge on Phosphorus Adsorption and Forms	ZHU Pei-ying, LI Da-peng, YU Sheng-nan (1957)
Law of Pollutant Erosion and Deposition in Urban Sewage Network	SANG Lang-tao, SHI Xuan, ZHANG Tong, <i>et al.</i> (1965)
Fate of Eleven Phthalic Acid Esters in Aerobic Sewage Treatment System	ZHOU Lin-jun, GU Wen, LIU Ji-ning, <i>et al.</i> (1972)
Characteristics of Denitrification Inhibiting Sulfate Reducing Process	JIN Peng-kang, YANG Zhen-rui, LI Rong, <i>et al.</i> (1982)
Enhanced Short-cut Denitrification by Fe ⁽⁰⁾ -activated Carbon and Its Influencing Factors	LÜ Yong-tao, LIU Ting, ZENG Yu-lian, <i>et al.</i> (1991)
Comparison of Operating Performance of Partial Nitritation Systems with Two Different Inhibition Strategies	LI Hui-juan, PENG Dang-cong, CHEN Guo-yan, <i>et al.</i> (1997)
Effect of Substrate Ratio on Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX in ABR	LÜ Gang, XU Le-zhong, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (2006)
Effects of Temperature on the Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Removal and Microbial Community in SCSC-S/Fe	FAN Jun-hui, HAO Rui-xia, ZHU Xiao-xia, <i>et al.</i> (2012)
Analysis on Performance and Microbial Community Dynamics of a Strengthened Circulation Anaerobic Reactor Treating Municipal Wastewater	YANG Bo, XU Hui, FENG Xiu-ping, <i>et al.</i> (2021)
Aerobic Degradation Characteristics of the Quinoline-Degrading strain <i>Ochrobactrum</i> sp. and Its Bioaugmentation in Coking Wastewater	XU Wei-chao, WU Cui-ping, ZHANG Yu-xiu, <i>et al.</i> (2030)
Manganese Oxidation Characteristics and Oxidation Mechanism of a Manganese-Oxidizing Bacterium <i>Arthrobacter</i> sp. HW-16	WAN Wen-jie, XUE Zhi-jun, ZHANG Ze-wen, <i>et al.</i> (2036)
Effect of Temperature on Nitrogen Removal Performance of Marine Anaerobic Ammonium Oxidizing Bacteria	ZHOU Tong, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (2044)
Nitrogen Removal Performance and Microbial Community Analysis of Activated Sludge Immobilization	XU Xiao-yi, YOU Xiao-lu, LÜ Chen-pei, <i>et al.</i> (2052)
Microbial Structure of an Enhanced Two-phase High-solid Anaerobic Digestion System Treating Sludge	CAO Zhi-ping, WU Jing, ZUO Jian-e, <i>et al.</i> (2059)
Comparative Studies on Soil Actinobacterial Biodiversity After Re-vegetation in the Urban and Rural Hydro-fluctuation Zone of the Three Gorges Reservoir Region	QIN Hong, REN Qing-shui, YANG Wen-hang, <i>et al.</i> (2065)
Nitrous Oxide Emissions and Its Influencing Factors from an Agricultural Headwater Ditch During a Maize Season in the Hilly Area of Central Sichuan Basin	TIAN Lin-lin, ZHU Bo, WANG Tao, <i>et al.</i> (2074)
Effect of Dicyandiamide on N ₂ O Emission in Fallow Paddy Field and Rape Cropping	WU Yan-zheng, ZHANG Miao-miao, QIN Hong-ling, <i>et al.</i> (2084)
Characteristics of Biochar-mediated N ₂ O Emissions from Soils of Different Surface Conditions	ZOU Juan, HU Xue-yu, ZHANG Yang-yang, <i>et al.</i> (2093)
Characteristics of Soil Respiration and Soil Organic Carbon in Fava Bean Farmland Under Ridge Tillage and Straw Mulching in Southwest China	XIONG Ying, WANG Long-chang, DU Juan, <i>et al.</i> (2102)
Prediction of Distribution of Soil Cd Concentrations in Guangdong Province, China	SUN Hui, GUO Zhi-xing, GUO Ying, <i>et al.</i> (2111)
Spatial Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of Suya Lake	ZHANG Peng-yan, KANG Guo-hua, PANG Bo, <i>et al.</i> (2125)
Effects of the Active Components of Humic Acids and Their Proportions on the Dynamics of Lead Transformation and Availability in Purple Alluvial Soil	WANG Qing-qing, JIANG Zhen-mao, WANG Jun, <i>et al.</i> (2136)
Enrichment Characteristics of Heavy Metals in Particulate Organic Matter of Purple Paddy Soil	LI Qiu-yan, ZHAO Xiu-lan (2146)
Enhanced Sorption of Cetrizine to Loessial Soil Amended with Biochar	WU Zhi-juan, BI Er-ping (2154)
Characteristics and Mechanism of Copper Adsorption from Aqueous Solutions on Biochar Produced from Sawdust and Apple Branch	WANG Tong-tong, MA Jiang-bo, QU Dong, <i>et al.</i> (2161)
Adsorption of Pb ²⁺ and Cd ²⁺ from Aqueous Solution Using Vermicompost Derived from Cow Manure and Its Biochar	DU Wen-hui, ZHU Wei-qin, PAN Xiao-hui, <i>et al.</i> (2172)
Performance and Mechanism Study of Visible Light-driven C ₃ N ₄ /BiOBr Composite Photocatalyst	BAO Yue, ZHOU Min-yun, ZOU Jun-hua, <i>et al.</i> (2182)