

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.2
第40卷 第2期

目次

冬季山谷风和海陆风对京津冀地区大气污染分布的影响	李青春, 李炬, 郑祚芳, 王耀庭, 于淼 (513)
珠三角地区利用 PM _{2.5} 反演气溶胶数浓度谱方法	李菲, 谭浩波, 邓雪娇, 邹宇, 刘礼, 蔡明甫, 张芷言, 周声圳 (525)
广州冬季气溶胶中水溶性有机物和类腐殖质的吸光性和荧光光谱特性	范行军, 余旭芳, 操涛, 王艳, 肖新, 谢越, 李飞跃, 宋建中, 彭平安 (532)
扬州市 PM _{2.5} 中重金属来源及潜在健康风险评估	董世豪, 谢扬, 皇甫延琦, 史旭荣, 易睿, 史国良, 冯银厂 (540)
聊城市冬季 PM _{2.5} 中正构烷烃和糖类的污染特征及来源解析	刘晓迪, 孟静静, 侯战方, 衣雅男, 魏本杰, 伏梦璇 (548)
博斯腾湖流域大气多环芳烃污染特征、干沉降通量及来源	宋世杰, 黄韬, 赵留元, 毛潇萱, 穆熙, 高宏, 马建民 (558)
某集约化肉鸡饲养场 PM _{2.5} 中抗生素抗性基因的分布特征	刘菲, 许霞, 屠博文, 汪楚乔, 江晓栋, 王利平, 薛银刚 (567)
水汽源地和局地蒸发对大气降水氢氧稳定同位素组分的影响	胡勇博, 肖薇, 钱雨妃, 刘强, 谢成玉, 张秀芳, 张文庆, 温学发, 刘寿东, 李旭辉 (573)
滇池大气沉降氮磷形态特征及其入湖负荷贡献	任加国, 贾海斌, 焦立新, 王一茹, 杨苏文, 武倩倩, 高秋生, 崔志丹, 郝子峰 (582)
基于地统计学分析的太湖颗粒态和溶解态氮、磷营养盐时空分布特征及来源分析	吕伟伟, 姚昕, 张保华, 高光, 邵克强 (590)
湖泊蓝藻水华对连通河道水质的影响	余茂蕾, 洪国喜, 许海, 朱广伟, 朱梦圆, 权秋梅 (603)
异龙湖沉积物重金属人为污染与潜在生态风险	李小林, 刘恩峰, 于真真, 张恩楼, 王荣, 沈吉 (614)
珠江河口悬浮物中重金属时空变化特征及其影响因素	杜佳, 王永红, 黄清辉, 戴琦, 杨远东 (625)
北运河粪源微生物分布特征及健康风险评价	陈磊, 李蕾芳, 邱晓沙, 张普, 戴莹, 肖月晨, 沈珍瑶 (633)
氧化还原循环过程中沉积物磷的形态及迁移转化规律	郝文超, 王从锋, 杨正健, 刘德富, 纪道斌, 赵萍, 丹勇, 胡子龙 (640)
磁性赭铁改性膨润土添加对河道底泥磷迁移与形态转化的影响	王艳, 林建伟, 詹艳慧, 张宏华, 张志斌, 何思琪, 赵钰颖, 吴小龙, 俞阳 (649)
钙预处理对磁性赭铁改性膨润土吸附水中磷酸盐的影响	赵钰颖, 林建伟, 张宏华, 张志斌, 詹艳慧, 姜博汇, 何思琪, 俞阳, 吴小龙, 王艳, 陈璐, 李十盛 (658)
NH ₄ ⁺ 对镁改性生物炭除磷效果的影响	郭蒙蒙, 王鹏飞, 侯泽英, 曹晶, 储昭升, 杨永哲 (669)
3 种吸附剂对污水磷污染去除性能与机制比较	吴露, 刘锋, 龙睿, 罗沛, 肖润林, 陈向, 吴金水 (677)
硝酸纤维素膜光降解水中对硝基苯酚的机制	代志峰, 赵同谦, 阴永光, 余加平, 武俐, 邵超, 孙静阳, 罗玉俊 (685)
ZnTiO ₂ -TiO ₂ 复合光催化剂的制备及光催化降解有机污染物机制分析	张文海, 吉庆华, 兰华春, 李静 (693)
高指数晶面 TiO ₂ 对铬的吸附及光催化去除	钟德健, 张建峰, 李尧, 谢晓丹 (701)
Fe ⁰ /海藻酸钙微球还原-Fenton 氧化协同降解酸性红 B	张环, 李爽爽, 魏俊富, 傅敏, 李雪曦, 丁琦, 白蓉 (708)
不同滤料滤池启动期对铁锰离子的去除机制	蔡言安, 毕学军, 张嘉凝, 何静, 董杨, 王海港 (717)
SGO 改性复合纳滤膜的制备及分盐性能	张彦君, 张少峰, 赵长伟, 王军 (724)
一体式铝盐絮体-超滤膜净水效能与机制	薛文静, 李文江, 刘娟, 马百文 (730)
臭氧-CNT 膜改性联用工艺处理高盐废水及膜污染分析	王凯伦, 刘芳, 关羽琪, 祝学东, 董丹, 薛小雷, 马燕林, 栾桂荣, 郭瑾 (738)
多环芳烃及其衍生物在 SBR/MBBR 工艺中的分布与去除	刘淑惠, 周伟君, 周建仁, 赵婧, 王喆 (747)
微气泡曝气生物膜反应器处理低 C/N 比废水脱氮过程	刘春, 王聪聪, 陈晓轩, 张静, 张瑞娜, 张磊 (754)
从枝菌根强化型生态浮床处理煤化工模拟含盐废水	窦文清, 何皓, 宋文萍, 王曙光, 戴东伟 (761)
夏季高温下污水处理厂生物处理系统的硝化性能及强化方法	宋天伟, 盛晓琳, 王家德, 刘锐, 陈吕军 (768)
硝化包埋菌颗粒氨吸附性能及动力学特性	于德爽, 吕廷廷, 陈光辉, 王晓霞, 唐鹏, 黄硕, 刘诚诚, 杜世明 (774)
乙酸钠作为碳源不同污泥源短程反硝化过程亚硝酸盐积累特性	毕春雪, 于德爽, 杜世明, 王晓霞, 陈光辉, 王钧, 巩秀珍, 都叶奇 (783)
DPR-SNED 系统处理低 C/N 城市污水与硝酸盐废水的运行特性	杜世明, 于德爽, 毕春雪, 王晓霞, 陈光辉, 袁梦飞, 甄建国, 张帆, 吕廷廷 (791)
间歇曝气连续流反应器同步硝化反硝化除磷	赵智超, 黄剑明, 李健, 张为堂, 张力航, 吴雪晴, 陈永志 (799)
ABR-MBR 反硝化除磷工艺的启动及稳定运行	韦佳敏, 蒋志云, 程诚, 朱琳, 刘文如, 沈耀良 (808)
进水 C/N 对 SNEDPR 系统脱氮除磷的影响	都叶奇, 于德爽, 甄建国, 王晓霞, 陈光辉, 唐鹏, 王钧, 毕春雪, 巩秀珍, 黄硕, 刘诚诚 (816)
ABR 除碳-CANON 耦合工艺除碳脱氮特性	李田, 印雯, 王昕竹, 沈耀良, 吴鹏, 宋吟玲 (823)
不同曝气密度对 CANON 工艺启动的影响	李冬, 高雪健, 张杰, 曹正美, 郭跃洲, 李帅 (829)
调控温度和沉降时间实现 ANAMMOX 颗粒快速启动及其稳定运行	李海玲, 李冬, 张杰, 刘博, 李帅 (837)
C/N 和污泥浓度对以 pH 值调控的亚硝化系统影响	张敏, 韦佳敏, 黄慧敏, 姜滢, 郭萌蕾, 陈重军, 沈耀良 (845)
基于活性微生物特征的供水管壁生物膜生长特性	王杨, 朱斌, 童俊, 白晓慧 (853)
黄山土壤细菌群落和酶活性海拔分布特征	姚兰, 胡立煌, 张焕朝, 方炎明, 王良梅 (859)
基于高通量测序分析的生物修复石油污染土壤菌群结构变化	祁燕云, 吴蔓莉, 祝长成, 叶茜琼, 徐会宁 (869)
硝化作用对盐碱湿地 N ₂ O 排放的影响及其环境因子分析	杨曲, 高伟峰, 刘凤琴, 王文锋, 马建华, 徐卓, 梁红, 高大文 (876)
长期定位施用牛粪对夏玉米-冬小麦体系农田 N ₂ O 和 NO 排放的影响	聂皇华, 张家升, 和周明, 安梅, 杨学云, 顾江新 (885)
地膜覆盖和施氮对菜地 N ₂ O 排放的影响	倪雪, 郝庆菊, 陈世杰, 李晓茜, 石孝均, 江长胜 (893)
双季稻品种根际特征与甲烷排放差异及其关系	肖志祥, 傅志强, 徐华勤, 苏姗, 郭昱, 张浪, 唐剑武 (904)
多年施用生物炭对河南烤烟种植区土壤呼吸的影响	李亚森, 丁松爽, 殷全玉, 李佳轶, 周迪, 刘国顺 (915)
桂林毛村不同土地利用方式下土壤呼吸空间变异特征	丁梦凯, 胡晓农, 曹建华, 吴夏, 黄芬, 王奇岗, 闵佳 (924)
工业发达城市土壤重金属时空变异与源解析	李峰, 刘思源, 李艳, 史舟 (934)
膨润土对不同类型农田土壤重金属形态及生物有效性的影响	林海, 靳晓娜, 董颖博, 罗明科, 赵一鸣 (945)
缙云山不同林分下土壤有机碳及矿化特征	陈仕奇, 吕盛, 高明, 黄容 (953)
复杂地形条件下根系对土壤有机碳的贡献	张彦军, 郭胜利 (961)
不同水平外源碳在稻田土壤中转化与分配的微生物响应特征	王季斐, 童瑶瑶, 祝贞科, 陈珊, 邓扬悟, 葛体达, 吴金水 (970)
宝鸡市植被叶子重金属分布规律及生态风险评价	张俊辉, 林青, 姜珊, 刘滨, 李东兴, 王彦虎 (978)
生物炭对污泥堆肥及其利用过程重金属有效态的影响	周楫, 余亚伟, 蒋越, 杨雨滢, 张成 (987)
污泥停留时间对餐厨垃圾与剩余污泥中温厌氧混合发酵系统的影响	袁宏林, 马静, 邢保山, 温俊伟, 韩宇乐, 李倩, 王晓昌 (994)
热碱-分步酶水解-厌氧消化工艺处理秸秆畜禽粪混合物料及其甲烷高值化条件	卞爱琴, 远野, 张璐璐, 付强, 陈天明, 何磊, 丁成, 王爱杰 (1003)
《环境科学》征订启事 (547)	
《环境科学》征稿简则 (828)	
信息 (581, 933, 952)	

博斯腾湖流域大气多环芳烃污染特征、干沉降通量及来源

宋世杰¹, 黄韬^{1*}, 赵留元¹, 毛潇萱¹, 穆熙¹, 高宏¹, 马建民^{1,2}

(1. 兰州大学资源环境学院甘肃省环境污染预警与控制重点实验室, 兰州 730000; 2. 北京大学城市与环境学院地表过程分析与模拟教育部重点实验室, 北京 100871)

摘要: 本研究使用大气被动采样器(PAS-PUF)和干沉降被动采样器(PAS-DD), 分别于2016年采暖期和2017年非采暖期对新疆博斯腾湖流域及周边地区15种USEPA优控多环芳烃(PAHs)大气浓度和干沉降进行了观测, 并对其污染特征和来源进行了研究. 结果表明, 采暖期和非采暖期博斯腾湖流域PAHs大气浓度范围分别为6.38~245.43 ng·m⁻³和2.33~74.76 ng·m⁻³; 采暖期与非采暖期均呈现出居民区>湖泊周边>塔中的空间分布. 采暖期和非采暖期PAHs大气干沉降通量范围分别为0.45~18.10 μg·(m²·d)⁻¹和0.25~8.15 μg·(m²·d)⁻¹; 采暖期居民区PAHs干沉降通量比湖泊周边和塔中采样点高, 但在非采暖期塔中采样点高于其它采样点. 整体而言, 博斯腾湖流域大气及干沉降中PAHs在采暖期显著高于非采暖期, 在采暖期与非采暖期均以菲(Phe)、芴(Flu)、荧蒽(Flua)和芘(Pyr)等3~4环PAHs为主. 比值法源解析结果显示, 博斯腾湖流域大气和干沉降中PAHs主要来源于煤炭和生物质燃烧; HYSPLIT前向和后向轨迹模拟结果表明, 非采暖期居民区较高PAHs排放通过大气传输到达博斯腾湖区, 经大气干沉降进入水体, 可能会对博斯腾湖水生环境造成影响.

关键词: 博斯腾湖流域; 大气; 多环芳烃(PAHs); 干沉降; 来源

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)02-0558-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201806153

Pollution Characteristics, Dry Deposition Fluxes, and Sources for Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Bosten Lake Watershed

SONG Shi-jie¹, HUANG Tao^{1*}, ZHAO Liu-yuan¹, MAO Xiao-xuan¹, MU Xi¹, GAO Hong¹, MA Jian-min^{1,2}

(1. Key Laboratory for Environmental Pollution Prediction and Control, Gansu Province, College of Earth and Environmental Sciences, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China; 2. Laboratory for Earth Surface Processes, College of Urban and Environmental Sciences, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: Passive air samplers (PAS-PUF) and passive dry deposition (PAS-DD) samplers were applied in the Bosten Lake watershed located in Xinjiang to estimate the atmospheric concentrations and dry deposition fluxes for 15 US EPA priority polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) during a heating period in 2016 and no-heating period in 2017, respectively. The results showed that the atmospheric PAHs concentrations in the Bosten oasis area ranged from 6.38 ng·m⁻³ to 245.43 ng·m⁻³ during the heating period and 2.33 ng·m⁻³ to 74.76 ng·m⁻³ during the non-heating period. The highest atmospheric PAHs concentrations were found in the residential area, followed by regions near Bosten Lake and Tazhong. The atmospheric dry deposition fluxes of PAHs in the Bosten Lake watershed ranged from 0.45 μg·(m²·d)⁻¹ to 18.10 μg·(m²·d)⁻¹ during the heating period and 0.25 μg·(m²·d)⁻¹ to 8.15 μg·(m²·d)⁻¹ during the non-heating period. During the heating period, the atmospheric dry deposition fluxes in the residential area were significantly higher than those in the regions near Bosten Lake and Tazhong. However, the atmospheric PAHs dry deposition flux in Tazhong was much higher than that in other sites during the heating and no-heating periods. In general, the atmospheric PAHs dry deposition fluxes during the heating period were significantly higher than those during the non-heating period. PAH composition for the atmosphere and dry deposition were dominated by 3 and 4 ring congeners, especially by phenanthrene, fluorine, fluoranthene, and pyrene during two sampling periods. In addition, the congener diagnostic ratio shows that coal and biomass combustion were possible sources of atmospheric PAHs in the Bosten Lake watershed. The forward and backward trajectory analysis based on the HYSPLIT model demonstrated that the higher atmospheric PAH emissions from the residential area would be transported to Bosten Lake, which can affect the aquatic environment of this lake by dry deposition.

Key words: Bosten Lake watershed; atmosphere; polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs); dry deposition; source

多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)是由两个或两个以上苯环组成的芳烃化合物, 是一类持久性有机污染物 (persistent organic pollutants, POPs)^[1], 因其具有毒性, 广泛存在于环境中会对生态系统和人体健康产生影响^[2]. 环境中PAHs的来源主要分为天然源和人为源, 其中人为源主要由生物质和化石燃料在人类生产或生活中不

完全燃烧产生^[3]. 许多研究表明, 大气中PAHs的类型和浓度与当地能源结构密切相关, 排放也表现出季节性变化^[4].

收稿日期: 2018-06-17; 修订日期: 2018-08-02

基金项目: 国家自然科学基金项目(41503089, 41671460)

作者简介: 宋世杰(1995~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为有机污染物区域环境过程, E-mail: songshj17@lzu.edu.cn

* 通信作者, E-mail: huangt@lzu.edu.cn

博斯腾湖流域地处我国西北干旱区, 位于世界第二大沙漠的边缘^[5], 自古以来是丝绸之路上的重要节点, 同时博斯腾湖也是国家 5A 级旅游景区, 作为新疆南疆地区最重要的生态系统, 博斯腾湖的生态和环境安全对整个南疆的生态、社会、经济和人民生活的改善和发展均有突出的意义. 早期对天山南侧积雪中 PAHs 的研究发现, 燃煤和生物质燃烧是积雪中 PAHs 的主要来源, 并且 PAHs 含量随海拔升高而增加, 并存在潜在风险, 可能是由于该地区频繁的人类活动和长途运输排放的 PAHs 经大气沉积进入天山积雪中^[1, 6]. 另外, 博斯腾湖沉积岩芯中 PAHs 近年来也呈上升趋势^[7]. 博斯腾湖流域是一个典型的绿洲-沙漠交错带, 生态环境脆弱. 然而, 对于绿洲地区大气中的多环芳烃鲜有报道, 可能源于偏远地区大气 PAHs 污染研究由于缺乏电力和人力等因素而受限于采样技术. 另外, 不同于我国中东部地区的气候条件, 西北地区总悬浮颗粒物 (total suspended particulate, TSP) 及降尘污染较为严重, 因此干沉积对大气污染物的清除具有重要作用, 而关于博斯腾湖流域及周边地区大气 PAHs 干沉降的研究尚未发现公开报道.

大气被动采样技术 (passive air sampler, PAS) 由于其简易的设计及可在边远地区和条件恶劣的地区使用, 因而广泛应用于大气中有机污染物的采样^[8]. 考虑到操作使用、价格以及处理等多方面原因, 聚氨酯软性泡沫材料的被动采样装置 (PAS-PUF) 近年被广泛应用^[9]. 本研究利用大气被动采样技术 (PAS-PUF) 和干沉降被动采样技术 (passive dry deposition, Pas-DD) 分别研究博斯腾湖流域大气 PAHs 和干沉降通量的污染特征和季节差异, 并探讨其主要来源, 以期对博斯腾湖流域及周边地区大气 PAHs 的污染排放控制及治理提供理论依据, 也为该地区人群健康和大气环境管理提供基础科学数据.

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究共布设 7 个被动采样点, 主要覆盖博斯腾湖及周边经济活动较频繁的地区, 形成一个居民区-湖泊-沙漠剖面^[5]. 其中和静县 (HJX)、焉耆县 (YQX) 和博湖县 (BHX), 人口较为密集, 作为居民区采样点; 选择博斯腾湖东部 (BHD)、博斯腾湖南部 (BHN) 和博斯腾湖北部 (BHB) 布设采样点以监测湖泊周围环境的污染水平; 在塔里木油田作业区 (TZ) 布设采样点以考察该地区污染对博斯腾湖流域 PAHs 污染的潜在影响. 采样点周围均无直接的人类活动干扰, 具体采样点见图 1.

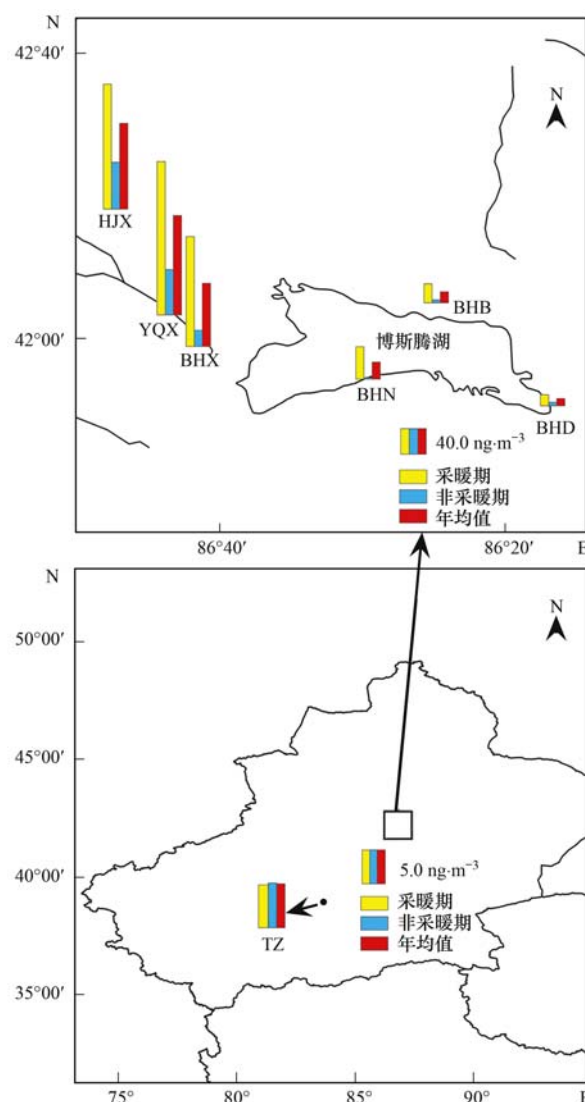


图 1 博斯腾湖流域大气 PAHs 浓度时空分布

Fig. 1 Spatial distributions and seasonal variations in ambient atmospheric PAHs concentrations in the Bosten Lake watershed

大气和干沉降样品的采集使用加拿大环境部 Tom Harner 团队研发和改进的大气被动采样器 (PAS-PUF)^[10] 和大气被动干沉降采样器 (PAS-DD)^[11], 图 2 中展示了两种采样器的结构. 样品采集时间为 2016-11-01 ~ 2017-01-10 (采暖期) 和 2017-07-22 ~ 2017-10-16 (非采暖期). 使用聚氨酯泡沫塑料 (PUF 规格为: 直径 14 cm, 厚度 1.35 cm, 体积为 207 cm³, 表面积为 365 cm², 密度为 21 300 g·m⁻³) 采集大气和干沉降中化合物. 其中 PAS-PUF 主要以吸附气相有机物为主, 但也会有少许颗粒相物质被捕集, PAS-PUF 的观测结果主要反映的是大气气相 PAHs 的污染水平. PAS-DD 采样器的平行板相较于 PAS-PUF 双圆顶外壳具有更开放的设计, 能够捕获沉积速率较高的粗颗粒 (粒径, < 200 ~ 250 μm), 颗粒物通过 PUF 表面的细孔而被捕集于 PUF 内, 并很少会出现再悬浮以及化学解析的现

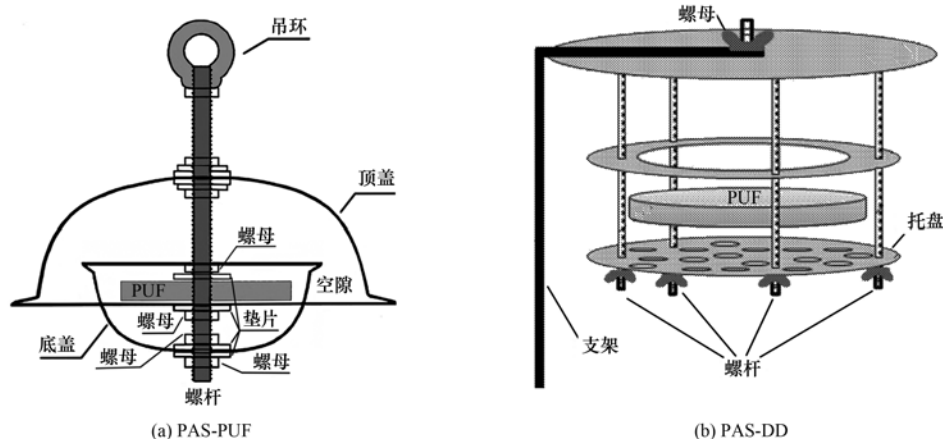


图2 PAS-PUF 和 PAS-DD 构造示意

Fig. 2 Schematic of the PAS-PUF and Pas-DD

象^[11]. 采样速率参考 Shoeib 等^[10]和 Wilford 等^[12]的研究报道. 采样前, PUF 经过 3 次 48 h 索氏提取净化处理, 先后使用丙酮 (Ace)、二氯甲烷 (DCM)、正己烷 (Hex) 溶剂. 采样结束后, PUF 密封, -20°C 保存至分析, 在每个采样时段将 2 个干净的 PUF 带至现场, 打开密封包装, 作为现场空白随即带回.

1.2 仪器与试剂

仪器: Trace1300GC-ISQLT 气相色谱-质谱联用仪 (配备 EI 离子源), Thermo Fisher 公司; 色谱柱为 Thermo Fisher TG-5MS ($30\text{ m} \times 0.25\text{ mm} \times 0.25\text{ }\mu\text{m}$); 旋转蒸发器, EYELA 公司 OSB-2100 型; 氮吹仪, Organomation 公司 N-EVAP 型; 超声波清洗器, KQ-500E 型; 150 mL 烧瓶; 150 mL 索氏提取器; 2 mL 棕色样品瓶; 20 mL 棕色样品瓶; 层析柱 (规格: 长 15 cm, 内径 8 mm).

试剂: RBS 碱性洗液 (购自 Rue Bollinckxstraat); 无水 Na_2SO_4 (AR, 购自国药); Al_2O_3 (购自阿拉丁); SiO_2 (100 目, 购自 Merck); 二氯甲烷 (DCM)、正己烷 (Hex)、丙酮 (Ace) 均为色谱纯 (购自 OCEANPAK 公司, 纯度 99.99%); 16 种优控 PAHs 混标; 6 组分氘代 PAHs (1,4-Dcb-D8、蔡-d8、萘-d10、菲-d10、d12 和蒽-d12, 购自 Accustandard 公司); 六甲基苯 (纯品, 购自 Dr. Ehrenstorger 公司).

1.3 样品前处理与仪器分析

样品 PUF 置于 150 mL 索氏提取器, 同时加入 6 组分氘代 1 000 ng 作为回收率指示物以控制样品处理过程中目标物的损失. 使用 DCM 索氏提取 24 h, 将抽提液旋转蒸发至 2 mL, 用 Hex 置换溶液, 浓缩至约 1 mL. 浓缩液过中性 Al_2O_3 - SiO_2 柱分离净化, 浓缩样用 DCM、Hex 混合液 (1:1, 体积比) 淋洗, 收集 20 mL 淋洗液于棕色样品瓶中, 氮吹浓缩

至 0.5 mL, 转样至进样瓶内, 氮吹浓缩至 200 μL , 加入内标 200 ng 六甲基苯后, 使用 GC-MS 测定 15 种 PAHs, 分别为萘烯 (Acy)、萘 (Ace)、芴 (Flu)、菲 (Phe)、蒽 (Ant)、荧蒽 (Flua)、芘 (Pyr)、苯并 [ghi] 蒽 (BaA)、蒽 (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 (IP)、二苯并 [a,h] 蒽 (DiB)、苯并 [ghi] 芘 (BghiP). 进样口温度 280°C , 恒流无分流进样为 1.0 μL , 高纯氮恒流 $1.2\text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$, 离子源温度 250°C . 色谱柱升温程序: 60°C 保留 5 min, 以 $3^{\circ}\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 的速度升温至 290°C , 保留 5 min. 样品测定选择离子扫描 (SIM), 特征离子和保留时间进行定性, 用内标法定量.

1.4 质量控制与质量保证

样品定量采用内标 6 点校正曲线, 各组标准曲线 R^2 除个别外均大于 0.99. 为保证观测数据的准确性, 在实验室分析阶段增加实验室空白及平行样, 实验室空白均未检出, 平行样未超过 $\pm 10\%$; 在样品处理过程中加入 6 组分氘代 PAHs 作为回收率指示物了解目标物损失情况, 其范围分别为: $54.2\% \pm 7.3\%$ 、 $67.3\% \pm 13.2\%$ 、 $83.3\% \pm 11.7\%$ 、 $100.4\% \pm 17.1\%$ 、 $109.5\% \pm 20.0\%$ 和 $97.7\% \pm 21.4\%$; 并在样品上机测定前加入已知量的六甲基苯作为内标, 以消除进样体积误差对样品测定的影响; 连续分析 7 个空白样品, 取目标物出峰处仪器响应的 3 倍标准偏差作为方法检出限, 得到 PAHs 各组分的方法检出限为 0.05 ~ 0.79 ng.

2 结果与讨论

2.1 大气中 PAHs 污染特征

2.1.1 大气 PAHs 空间分布特征

本研究除个别采样点外所有样品中 16 种 PAHs

均全部检出. 由于萘(Nap)在环境中以气相形式存在, 其辛醇-气分配系数较小, 具有高挥发性, 因此Nap的观测结果具有较大不确定性^[13], 故对Nap没有进行定量检测分析. 从图1可见, 研究区7个采样点大气 $\sum 15\text{PAHs}$ 含量年均浓度范围为 $6.50 \sim 158.93 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 均值为 $65.68 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$. 研究区域大气中PAHs空间分布存在较大差异, 其中焉耆县(YQX)浓度最高, 年均值为 $158.93 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 同样和静县(HJX) ($137.19 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)和博湖县(BHX) ($100.83 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)也有较高浓度. 以上地区较高的人口分布可能是造成局部地区出现高污染的原因, 尤其在我国西部干旱地区水资源对人口空间分布和经济发展有着重要影响, 县城居民区是流域人口主要聚居地^[14, 15], 家用燃煤、汽车尾气及农业生产过程中秸秆的焚烧对居民区大气中PAHs有较高贡献. 塔中(TZ)大气PAHs浓度最低, 为 $6.50 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 与焉耆县(YQX)相差近24.4倍. 塔中(TZ)位于沙漠腹地, 远离人口聚居地, 石油开采是塔中(TZ)仅有的人类活动, 但其周围环境空旷有利于污染物扩散稀释, 该地区的PAHs排放不会对周边的大气环境造成影响. 在湖泊周边采样点博斯腾湖东(BHD)、博斯腾湖南(BHN)和博斯腾湖北(BHB), 大气PAHs也表现出远低于居民区的污染水平, 博斯腾湖北侧为天山山脉, 南边为霍拉山-库鲁克塔格低矮山地^[3], 湖区及周边的人为活动主要以渔业及旅游业为主. 整体而言, 博斯腾湖流域7个采样点表现出居民区>湖泊周边>塔中的空间分布, 较大的PAHs空间分布差异主要受到周边人为活动的影响. 这与沈贝贝等^[16]对博斯腾湖绿洲河流沉积物中PAHs的空间分布研究一致, 居民区附近的环境介质中有较高含量PAHs.

2.1.2 大气PAHs季节性差异

大气PAHs的季节性差异如图1所示, 研究区8个采样点除塔中(TZ)外, PAHs浓度均表现出采暖期高于非采暖期. 博斯腾湖流域PAHs大气平均浓度在采暖期为 $103.84 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 非采暖期为 $23.30 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 采暖期PAHs大气浓度约为非采暖期的4.46倍. 此季节变化与我国北方地区的研究结果一致, 主要是由于在采暖期北方地区冬季家庭采暖造成燃煤量的增加^[17], 造成大气中PAHs浓度升高. 其中, 居民区和静县(HJX)、焉耆县(YQX)和博湖县(BHX)采暖期大气PAHs平均浓度是非采暖期的4.26倍. 值得注意的是, 在博斯腾湖周边的博斯腾湖东(BHD)、博斯腾湖南(BHN)和博斯腾湖北(BHB)大气PAHs的季节变化更为显著, 相较于居民区, 湖泊周边没有明显的大气污染排放, 在采暖

期较大的增加可能来自周边大气污染的扩散和远距离传输对湖泊的潜在影响.

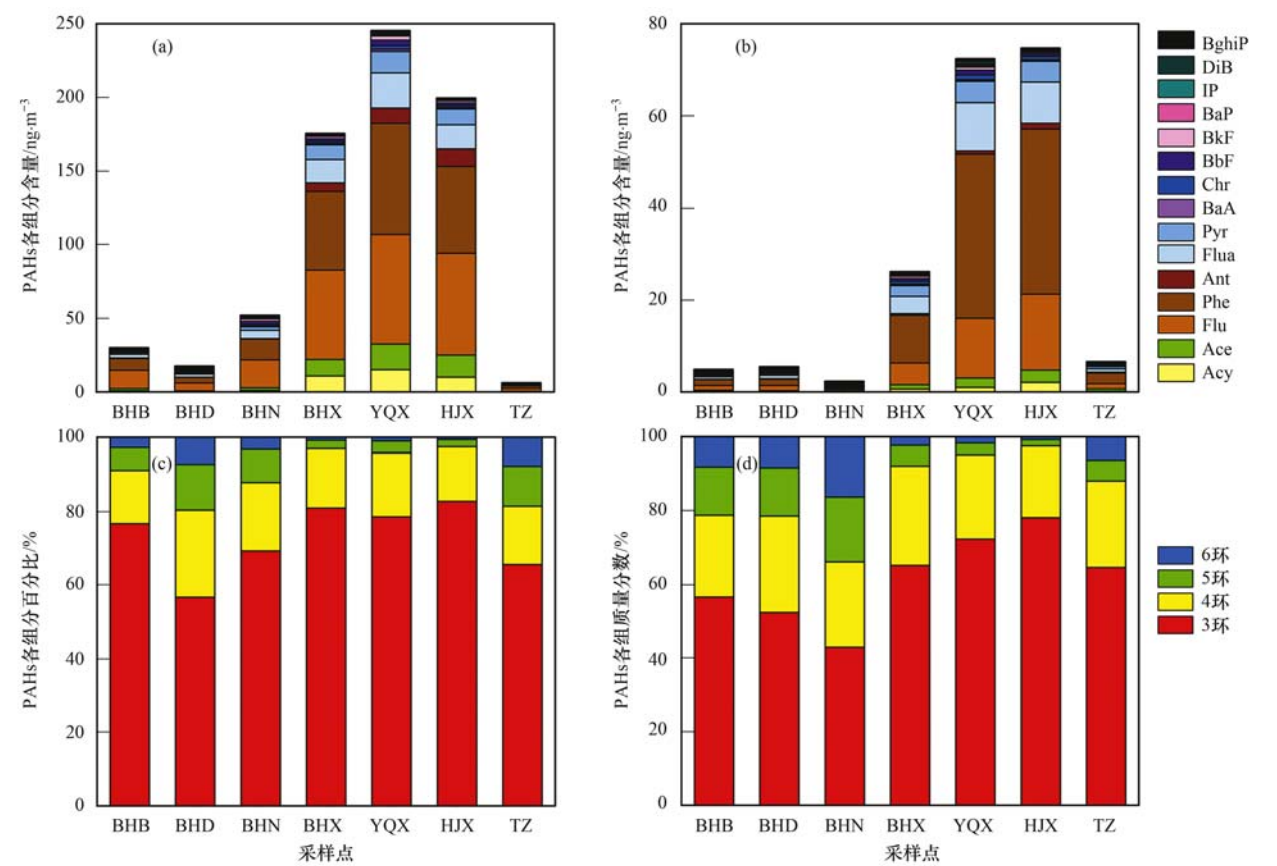
2.1.3 大气PAHs组成特征

各采样点大气中PAHs组成特征如图3所示. 在采暖期, 博斯腾湖流域大气PAHs主要由Phe、Flu、Flua和Pyr组成, 占 $\sum 15\text{PAH}$ 的质量分数为67.87%~84.06%. 将15种PAHs按照分子环数可划分为3环(Acy、Ace、Flu、Phe和Ant)、4环(Flua、Pyr、BaA和Chr)、5环(BbF、BkF、BaP和IP)和6环(DiB、BghiP)PAHs. 如图3(c)所示, 采暖期研究区PAHs大气中的环数分配与国内其他地区的研究结果一致^[17~19], 主要以3环为主, 3环、4环、5环和6环PAHs质量分数平均值分别为78.50%、16.52%、3.60%和1.38%. 在非采暖期观察到与采暖期相同的组成特征, 其中Phe、Flu、Flua和Pyr是主要污染单体PAHs, 占 $\sum 15\text{PAH}$ 质量分数为42.50%~88.08%. 非采暖期3环、4环、5环和6环PAHs质量分数平均值分别为71.38%、22.4%、3.95%和2.28%[图3(d)]. 此外, BaP由于其致癌性, 可作为人类暴露于PAHs的指示物^[20], 博斯腾湖流域采暖期($0.14 \sim 0.89 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)和非采暖期($0.11 \sim 0.38 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)浓度均处于较低水平, 年均浓度为 $0.30 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 占 $\sum 15\text{PAHs}$ 的质量分数为0.56%, 低于国家环境空气质量标准中规定的日均暴露限值 $2.5 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ ^[21].

2.1.4 国内外大气PAHs污染水平对比研究

本研究将博斯腾湖流域大气PAHs浓度与国内外(使用PAS-PUF)已有研究进行了对比, 结果见表1. 可以看出, 绿洲地区PAHs污染水平低于兰州及哈尔滨, 与长江三角洲一些城市(无锡市、苏州市和南通市)的污染水平相当, 但却比珠江三角洲地区(广州、深圳、佛山、东莞、肇庆、珠海、惠州、江门和中山)高, 是神农架大九湖景区污染浓度的两倍. 与国外研究对比, 高于尼泊尔(Kathmandu、Pokhara、Hetauda)和哥伦比亚卡里等地, 但低于土耳其布尔萨.

而在新疆, 对于大气中PAHs的研究主要集中在北疆乌鲁木齐以及石河子等城市大气颗粒物的研究. 如吾拉尔·哈那哈提等^[18]在乌鲁木齐市一个高车流量采样点检测出大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中 $\sum 13\text{PAHs}$ 浓度为 $247.2 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$; 吴甜等^[22]的研究发现石河子市春、夏、秋、冬四季大气总悬浮颗粒物(TSP)中 $\sum 16\text{PAHs}$ 平均浓度分别为108.14、74.05、31.13、48.96 $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$. 此外, 也有学者对南疆塔里



(a)采暖期各组分含量; (b)非采暖期各组分含量; (c)采暖期各环数所占质量分数; (d)非采暖期各环数所占质量分数

图3 博斯腾湖流域大气 PAHs 组成特征

Fig. 3 Composition of atmospheric PAHs in the Bosten Lake watershed

本盆地的喀什 ($390.5 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)、铁干里克 ($388.65 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)、民丰 ($84.54 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$) 和塔中 ($74.07 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$) 大气 TSP 中 $\sum 16\text{PAHs}$ 进行了研究^[14]. 可见博斯腾湖流域大气 PAHs 污染相较于以上地区颗粒物中浓度处于较低水平, 但新疆地

区干旱少雨, 缺乏污染物的大气清除机制, 导致大气颗粒物中更高的 PAHs 浓度. 而本研究中被 动采样器主要采集的是气态及部分细颗粒物^[23], 因此, 对博斯腾湖流域颗粒物中 PAHs 污染还需进一步研究.

表1 国内外大气 PAHs 污染对比

Table 1 Comparison of atmospheric PAHs concentration domestically and overseas

研究区域	采样日期(年·月)	PAHs	浓度范围 / $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$	均值 / $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$	文献
博斯腾湖流域	2016-11 ~ 2017-10	15	6.50 ~ 158.93	65.68	本研究
珠江三角洲	2015-02 ~ 2015-04	15	3.57 ~ 37.2	19.8 ± 9.69	[13]
兰州盆地	2013 夏季	16	—	214	[19]
	2013 冬季	16	—	302	
哈尔滨	2007-01 ~ 2007-04	16	162.65 ~ 463.44	—	[24]
长三角城市	2011-07 ~ 2012-06	15	6.45 ~ 154	56.8 ± 14.8	[25]
神农架大九湖	2012-04 ~ 2013-03	16	6.94 ~ 184.23	30.36	[26]
尼泊尔	2014-08 ~ 2016-08	15	4.1 ~ 38.0	—	[27]
哥伦比亚卡里	2011-05 ~ 2011-09	14	25 ~ 66	—	[28]
土耳其布尔萨	2013-02 ~ 2014-02	15	6.4 ~ 1 100	—	[29]

2.2 PAHs 干沉降通量时空分布特征

2.2.1 PAHs 干沉降通量空间分布特征

博斯腾湖流域 7 个采样点大气 $\sum 15\text{PAHs}$ 干沉降年均通量为 $0.70 \sim 9.22 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 均值

为 $3.19 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 图 4 为博斯腾湖流域大气 PAHs 干沉降通量空间分布, 可以看出, 最大值出现在焉耆县(YQX), 其浓度为 $9.22 \text{ }\mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 而最小值出现在博斯腾湖东(BHD), 其年均通量为

$0.70 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 类似在大气中 PAHs 空间分布, 居民区 PAHs 干沉降通量整体较高, 为 $5.26 \sim 9.22 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 均值为 $7.42 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 博斯腾湖周边较低, 为 $0.70 \sim 2.44 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 均值为 $1.57 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 此外, 在所有采样点中, 塔中 (TZ) PAHs 年均干沉降通量为 $4.30 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 大于湖泊周边, 这主要是由于塔中地处空旷的戈壁沙漠, 干沉降速率较大, 导致该地区干沉降通量较大.

2.2.2 PAHs 干沉降通量季节性差异

从图 4 看出, 大气 PAHs 干沉降通量表现出明显的季节性变化, 在采暖期为 $0.45 \sim 18.10 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 均值为 $6.77 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 非采暖期为 $0.25 \sim 8.15 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 均值为 $2.16 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 研究区属于暖温带大陆性干旱气候, 全年干旱少雨, 夏季干燥炎热, 冬季寒冷^[30].

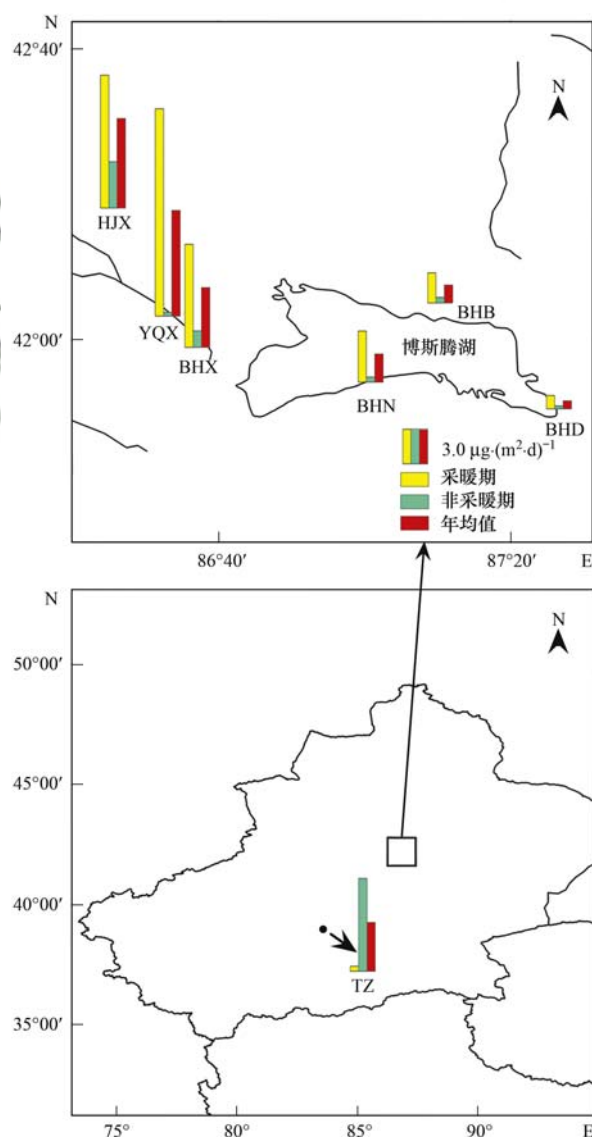


图 4 博斯腾湖流域 PAHs 大气干沉降通量时空分布

Fig. 4 Spatial distributions and seasonal variations in dry deposition fluxes of PAHs in the Bosten Lake watershed

在采暖期, 随着周围环境气温的降低, 居民供暖燃煤的消耗也在不断增加, 从而增加了大气 PAHs 沉降量. 在非采暖期, 大气 PAHs 干沉降通量较低, 与采暖期相差近 3.42 倍. 此外, 博斯腾湖流域非采暖期风速高于采暖期, 有利于污染物的远距离扩散迁移, 并在一定程度上降低 PAHs 通量. 特别地, 塔中 (TZ) 采样点非采暖期干沉降通量达到 $8.15 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 远大于采暖期的 $0.45 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 这可能是由于夏季沙漠地区沙尘天气较为频繁, 导致干沉降通量增加.

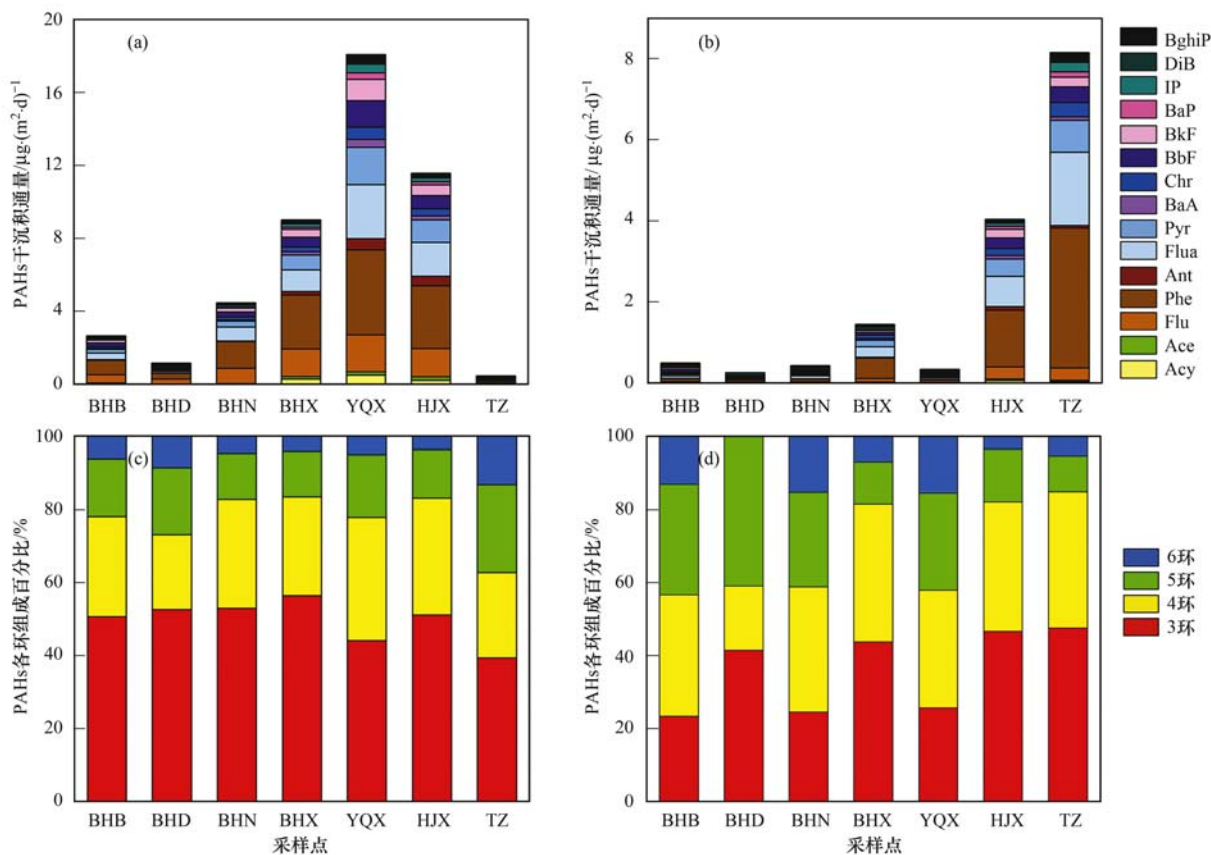
2.2.3 大气 PAHs 干沉降组成特征

博斯腾湖流域大气 PAHs 干沉降组成特征如图 5 所示. 可以看出, 采暖期干沉降中 Phe 为主要单体 PAHs, 占总通量的比例达到 25.78% ~ 32.95%. 此外 Flu、Flua 和 Pyr 也是干沉降通量占比高的单体 PAHs. 3 环为干沉降中主要污染组成, 占 $\sum 15\text{PAHs}$ 的质量分数为 39.44% ~ 56.43%, 4 环 PAHs 次之, 为 20.47% ~ 33.79%. 此外, 采暖期各采样点干沉降中 PAHs 环数和各单体具有相似的百分比分配特征. 在非采暖期, 各采样点干沉降中 PAHs 单体与采暖期表现出相同的组成特征, 主要以 Phe、Flu、Flua 和 Pyr 为主. 非采暖期 PAHs 干沉降同样主要以 3 环和 4 环为主, 其中 3 环占比为 21.37% ~ 47.66%, 4 环为 17.73% ~ 41.81%. 但不同的是, 5 ~ 6 环较采暖期百分比出现上升, 这与国内其他城市 PAHs 干沉降在夏季高环 PAHs 占比上升的变化特征基本一致^[31], 大多数高分子量多环芳烃化合物以固态形式吸附在大气中的细颗粒, 低分子量 3 环 PAHs 主要以气态存在于空气中, 夏季高温有利于气态污染物的扩散迁移.

2.3 PAHs 来源解析

2.3.1 比值法来源解析

来自不同污染源的 PAHs 各组分的比例不同, 不同污染源释放的 PAHs 也有各自的特征指标. 使用特征化合物比值, $\text{IP}/(\text{IP} + \text{BghiP})$ 和 $\text{Flua}/(\text{Flua} + \text{Pyr})$ 可对包括石油燃料、生物质和煤燃烧等排放的潜在 PAHs 污染来源进行判断^[32]: $\text{IP}/(\text{IP} + \text{BghiP})$ 小于 0.2 说明 PAHs 可能来源于石油或与石油有关的污染源, 比值为 0.20 ~ 0.50 之间表示 PAHs 来源于液化化石燃料的燃烧, 比值大于 0.50 时 PAHs 来源于煤燃烧和生物质燃烧; $\text{Flua}/(\text{Flua} + \text{Pyr})$ 小于 0.40, 说明 PAHs 主要来源于石油以及与石油有关的污染, 若比值为 0.40 ~ 0.50 之间则 PAHs 主要来自化石燃料的燃烧, 当比值大于 0.50 时表示 PAHs 来源于生物质和煤的燃烧. 图 6 为采暖期和非采暖期大气中 PAHs 特征化合物比值, 可



(a)采暖期各组分比例; (b)非采暖期各组分比例; (c)采暖期各环数比例; (d)非采暖期各环数比例

图5 博斯腾湖流域大气 PAHs 干沉降组成特征

Fig. 5 Composition of atmospheric dry deposition of PAHs in Bosten Lake watershed

以看出,所有采样点在采暖期和非采暖期 $IP/(IP + BghiP)$ 比值均大于 0.5, $Flua/(Flua + Pyr)$ 比值也大于 0.5,说明博斯腾湖流域大气中 PAHs 主要来源于生物质和煤的燃烧^[25, 32].

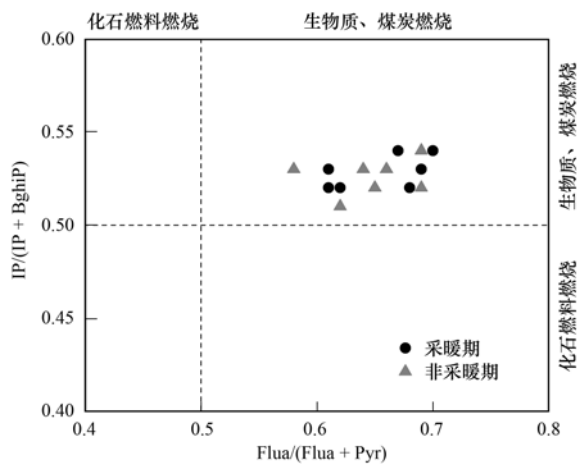


图6 博斯腾湖流域大气 PAHs 特征化合物比值来源解析

Fig. 6 Source analysis based on the characteristic ratios of atmospheric PAH congeners in the Bosten Lake watershed

2.3.2 后向轨迹分析

本研究采用 HYSPLIT 模型,对采暖期和非采暖期研究区大气传输后向轨迹进行模拟及轨迹聚类分析,通过气象轨迹分析研究区域大气中 PAHs 污

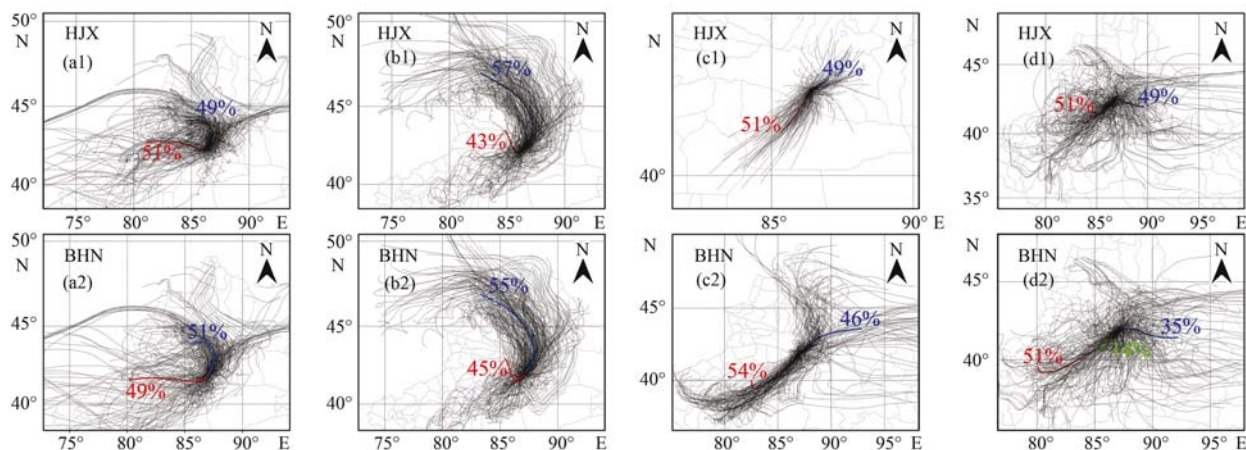
染物的可能来源;对大气传输前向轨迹进行模拟及聚类分析,评估可能受研究区大气 PAHs 污染影响的下风向区域.模拟计算采暖期和非采暖期的后向轨迹和前向轨迹,选取 15 m 作为模拟初始高度,模型高度 10 000 m,轨迹计算起始时间为每日 00:00、06:00、12:00 和 18:00^[33],轨迹起始点选择居民区和静县(HJX)和位于湖泊周边的博斯腾湖南(BHN),轨迹聚类结果如图 7 所示.

后向轨迹聚类结果显示:在采暖期主要受西方向(红色线)和东北方向(蓝色线)气流的影响.其中,来自西方向的气流轨迹,表现出受到来自库尔勒以及塔里木盆地西部区域铁门市、轮胎、库车等地的气流影响^[14],这些气流轨迹分别占和静县(HJX)和博斯腾湖南(BHN)总轨迹的 51% 和 49%;而东北方向的气流主要来自北疆地区如北乌鲁木齐等地绕经天山东口到达博斯腾湖流域,其分别占和静县(HJX)和博斯腾湖南(BHN)总轨迹的 49% 和 51%.在非采暖期主要受到来自西北方向(红色线)和东北方向(蓝色线)气流的影响,其中东北方向的轨迹走向与采暖期相同,分别占和静县(HJX)和博斯腾湖南(BHN)总轨迹的 57% 和 55%;而来自西北方向的聚类轨迹显示受到来自焉耆盆地气流的影

响, 分别占和静县(HJX)和博斯腾湖南(BHN)总轨迹的43%和45%。

前向轨迹聚类结果显示: 在采暖期博斯腾湖流域气流轨迹对东北方向(蓝色线)延伸表现出对新疆东部地区的影响; 对西南方向(红色线)延伸, 则表现出对塔克拉玛干沙漠地区大气环境的影响。而类似地, 在非采暖期, 气流传输轨迹则主要表现出向新疆东南部地区和西南方向的塔克拉

玛干沙漠地区的影响。此外, 还发现在非采暖期和静县(HJX)的前向轨迹(蓝色线)与博斯腾湖南(BHN)后向轨迹(红色线)基本吻合, 表现出在非采暖期居民区较高的 PAHs 排放通过大气传输到达博斯腾湖区, 经大气干沉降进入水体, 可能会对博斯腾湖水生环境造成影响。而在采暖期由于轨迹方向并不契合, 湖区受到来自居民区大气污染传输的影响较小。



(a) 采暖期后向轨迹; (b) 非采暖期后向轨迹; (c) 采暖期前向轨迹; (d) 非采暖期前向轨迹

图7 和静县(HJX)和博斯腾湖南(BHN)大气后向和前向轨迹

Fig. 7 Atmospheric backward and forward trajectory analysis for the HJX and BHN sampling sites in the Bosten Lake watershed

3 结论

(1) 博斯腾湖流域大气中 $\sum 15\text{PAHs}$ 的质量浓度为 $6.50 \sim 158.93 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 均值为 $61.29 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$; 空间分布上呈现出居民区污染最高 ($132.32 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$), 其次为湖泊周边 ($18.78 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) 和塔中 ($6.50 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$); 季节差异性表现为采暖期远大于非采暖期, 并且两个采样期大气中 PAHs 组成以 3~4 环为主, 分别占总 PAHs 的 $80.29\% \sim 97.42\%$ 和 $66.10\% \sim 97.51\%$ 。

(2) 博斯腾湖流域 $\sum 15\text{PAHs}$ 大气干沉降通量为 $0.70 \sim 9.22 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$, 均值为 $2.95 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$; 空间分布上呈现出居民区通量最高 [$7.42 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$], 其次为塔中 [$4.30 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$] 和湖泊周边 [$1.57 \text{ } \mu\text{g} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$]; 季节差异性表现为采暖期远大于非采暖期, 并且两个采样期干沉降中 PAHs 组成以 3~4 环为主, 分别占总 PAHs 的 $62.76\% \sim 83.54\%$ 和 $56.76\% \sim 84.91\%$ 。

(3) 特征比值法源解析结果表明, 博斯腾湖流域采暖期和非采暖期大气中 PAHs 主要来源于生物质和煤的燃烧; 后向轨迹分析表明新疆北部和塔里木盆地西部气团对博斯腾湖流域大气 PAHs 具有潜在影响; 前向轨迹分析表明博斯腾湖流域大气

PAHs 会对博斯腾湖西南及东部地区大气环境造成影响; 另外, 非采暖期来自居民区较高 PAHs 排放通过大气传输到达博斯腾湖区, 经大气干沉降进入水体, 可能会对博斯腾湖水生环境造成影响。

参考文献:

- [1] Bozlaker A, Muezzinoglu A, Odabasi M. Atmospheric concentrations, dry deposition and air-soil exchange of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in an industrial region in Turkey [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2008, **153** (3): 1093-1102.
- [2] Laflamme R E, Hites R A. The global distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in recent sediments [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1988, **42** (3): 289-303.
- [3] Ravindra K, Sokhi R, Van Grieken R. Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons: source attribution, emission factors and regulation [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42** (13): 2895-2921.
- [4] Khairy M A, Lohmann R. Source apportionment and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmospheric environment of Alexandria, Egypt [J]. *Chemosphere*, 2013, **91** (7): 895-903.
- [5] 张华艳. 近 2.5ka 来博斯腾湖流域环境演变与人类文明的关系研究[D]. 乌鲁木齐: 新疆师范大学, 2015.
- [6] Lei X N, Li W W, Lu J J, et al. Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in snow of Mount Nanshan, Xinjiang [J]. *Water and Environment Journal*, 2015, **29** (2): 252-258.
- [7] 沈贝贝, 吴敬禄, 赵中华, 等. 近百年来新疆博斯腾湖多环芳烃的组成及变化特征[J]. *环境科学*, 2016, **37** (2): 507-512.
- Shen B B, Wu J L, Zhao Z H, et al. Over one hundred year sediment record of polycyclic aromatic hydrocarbons in the Lake

- Bosten, Xinjiang[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(2): 507-512.
- [8] 刘威德, 郑晓燕, 王宝盛, 等. 持久性有机污染物被动采样与区域大气传输[M]. 北京: 科学出版社, 2015. 41-55.
- [9] 张干, 刘向. 大气持久性有机污染物 (POPs) 被动采样[J]. *化学进展*, 2009, **21**(2-3): 297-306.
- Zhang G, Liu X. Passive atmospheric sampling of persistent organic pollutants (POPs)[J]. *Progress in Chemistry*, 2009, **21**(2-3): 297-306.
- [10] Shoeib M, Harner T. Characterization and comparison of three passive air samplers for persistent organic pollutants [J]. *Environmental Science & Technology*, 2002, **36**(19): 4142-4151.
- [11] Eng A, Harner T, Pozo K. A prototype passive air sampler for measuring dry deposition of polycyclic aromatic hydrocarbons [J]. *Environmental Science & Technology Letters*, 2014, **1**(1): 77-81.
- [12] Wilford B H, Shoeib M, Harner T, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers in indoor dust in Ottawa, Canada: implications for sources and exposure [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, **39**(18): 7027-7035.
- [13] Zhang J W, Zhao J, Cai J, *et al.* Spatial distribution and source apportionment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in the Pearl River Delta, China [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2018, **9**(5): 887-893.
- [14] 王慧琴. 塔里木盆地 TSP 中碳质气溶胶和多环芳烃污染特征与来源分析及数值模拟[D]. 兰州: 兰州大学, 2016.
- [15] 杨振, 雷军, 段祖亮, 等. 新疆人口的空间分布特征[J]. *地理研究*, 2016, **35**(12): 2333-2346.
- Yang Z, Lei J, Duan Z L, *et al.* Spatial distribution of population in Xinjiang[J]. *Geographical Research*, 2016, **35**(12): 2333-2346.
- [16] 沈贝贝, 吴敬禄, 赵中华, 等. 新疆开都河流域不同环境介质中的有机氯农药和多环芳烃残留及分布特征[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2016, **35**(4): 646-652.
- Shen B B, Wu J L, Zhao Z H, *et al.* Residue and distribution characteristics of organochlorine pesticides and polycyclic aromatic hydrocarbons in different environmental components of the Kaidu River Catchment, Xinjiang [J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2016, **35**(4): 646-652.
- [17] Ma W L, Liu L Y, Jia H L, *et al.* PAHs in Chinese atmosphere part I: concentration, source and temperature dependence[J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **173**: 330-337.
- [18] 吾拉尔·哈那哈提, 迪丽努尔·塔力甫, 买里克扎提·买合木提, 等. 乌鲁木齐市大气可吸入颗粒物中多环芳烃的污染特征及来源解析[J]. *环境污染与防治*, 2015, **37**(1): 35-40.
- Wulaer H, Dilinuer T, Mailikezati M, *et al.* Source apportionment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in inhalable particulate matter at heating and non-heating periods in Urumqi, China[J]. *Environmental Pollution and Control*, 2015, **37**(1): 35-40.
- [19] Wang L, Zhao Y, Yi X, *et al.* Spatial distribution of atmospheric PAHs and their genotoxicity in petrochemical industrialized Lanzhou valley, Northwest China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2017, **24**(14): 12820-12834.
- [20] Ma W L, Li Y F, Qi H, *et al.* Seasonal variations of sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) to a northeastern urban city, China[J]. *Chemosphere*, 2010, **79**(4): 441-447.
- [21] 阚海东. 《环境空气质量标准》(GB3095-2012) 细颗粒物 (PM_{2.5}) 标准值解读[J]. *中华预防医学杂志*, 2012, **46**(5): 396-398.
- [22] 吴甜, 王晓龙, 刘子龙, 等. 石河子市大气总悬浮颗粒物的浓度和其中多环芳烃的分析[J]. *石河子大学学报(自然科学版)*, 2015, **33**(5): 604-609.
- Wu T, Wang X L, Liu Z L, *et al.* Study on the concentration and polycyclic aromatic hydrocarbons components of total suspended particles in Shihezi [J]. *Journal of Shihezi University (Natural Science)*, 2015, **33**(5): 604-609.
- [23] Harner T, Su K, Genualdi S, *et al.* Calibration and application of PUF disk passive air samplers for tracking polycyclic aromatic compounds (PACs) [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **75**: 123-128.
- [24] 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.
- [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] 张腾林, 迪丽努尔·塔力甫, 王新明, 等. 乌鲁木齐市典型城区大气 PAHs 气-粒分配特征[J]. *环境科学研究*, 2016, **29**(10): 1408-1416.
- Zhang T L, Dilnur T, Wang X M, *et al.* Gas-particle partitioning of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban area of Urumqi City, China[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2016, **29**(10): 1408-1416.
- [27] Pokhrel B, Gong P, Wang X P, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere of Nepal: distribution, sources, seasonal trends, and cancer risk [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **618**: 1583-1590.
- [28] Álvarez L, Pozo K, Paéz M I, *et al.* Semivolatile Organic Compounds (SVOCs) in the atmosphere of Santiago de Cali, Valle del Cauca, Colombia along north-south transect using polyurethane foam disk as passive air samplers[J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2016, **7**(6): 945-953.
- [29] Evci Y M, Esen F, Taşdemir Y. Monitoring of long-term outdoor concentrations of PAHs with passive air samplers and comparison with meteorological data [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2016, **71**(2): 246-256.
- [30] 刘强吉, 武胜利. 新疆博斯腾湖流域最高气温趋势分析[J]. *安徽农业科学*, 2015, **43**(27): 178-180.
- Liu Q J, Wu S L. Trends analysis for maximum temperature in the Bosten Lake Basin of Xinjiang [J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2015, **43**(27): 178-180.
- [31] He Q S, Zhang L, Cui Y, *et al.* Particle dry deposition of polycyclic aromatic hydrocarbons and its risk assessment in a typical coal-polluted and basin city, Northern China [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2017, **8**(6): 1081-1089.
- [32] Yunker M B, 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.
- [33] 王戎, 郎畅, 曹军, 等. 基于轨迹计算的污染物归趋概率模型[J]. *环境科学学报*, 2009, **29**(8): 1598-1603.
- Wang R, Lang C, Cao J, *et al.* A probabilistic model for transport of air pollutants based on forward trajectory calculations [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2009, **29**(8): 1598-1603.

CONTENTS

Influence of Mountain Valley Breeze and Sea Land Breeze in Winter on Distribution of Air Pollutants in Beijing-Tianjin-Hebei Region	LI Qing-chun, LI Ju, ZHENG Zuo-fang, <i>et al.</i> (513)
A Method of Aerosol Particle Number Size Distribution Inversed by PM _{2.5} Mass Concentration in PRD	LI Fei, TAN Hao-bo, DENG Xue-jiao, <i>et al.</i> (525)
Light Absorption and Fluorescence Characteristics of Atmospheric Water-soluble Organic Compounds and Humic-like Substances During the Winter Season in Guangzhou	FAN Xing-jun, YU Xu-fang, CAO Tao, <i>et al.</i> (532)
Source Apportionment and Health Risk Quantification of Heavy Metals in PM _{2.5} in Yangzhou, China	DONG Shi-hao, XIE Yang, HUANGFU Yan-qi, <i>et al.</i> (540)
Pollution Characteristics and Source Analysis of <i>n</i> -alkanes and Saccharides in PM _{2.5} During the Winter in Liaohe City	LIU Xiao-di, MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, <i>et al.</i> (548)
Pollution Characteristics, Dry Deposition Fluxes, and Sources for Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Bosten Lake Watershed	SONG Shi-jie, HUANG Tao, ZHAO Liu-yuan, <i>et al.</i> (558)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes in PM _{2.5} of a Concentrated Broiler Feeding Operation	LIU Fei, XU Xia, TU Bo-wen, <i>et al.</i> (567)
Effects of Water Vapor Source and Local Evaporation on the Stable Hydrogen and Oxygen Isotopic Compositions of Precipitation	HU Yong-bo, XIAO Wei, QIAN Yu-fei, <i>et al.</i> (573)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Formation in Atmospheric Deposition in Dianchi Lake and Their Contributions to Lake Loading	REN Jia-guo, JIA Hai-bin, JIAO Li-xin, <i>et al.</i> (582)
Temporal-spatial Distribution of Nitrogen and Phosphorus Nutrients in Lake Taihu Based on Geostatistical Analysis	LÜ Wei-wei, YAO Xin, ZHANG Bao-hua, <i>et al.</i> (590)
Effects of Cyanobacterial Blooms in Eutrophic Lakes on Water Quality of Connected Rivers	YU Mao-lei, HONG Guo-xi, XU Hai, <i>et al.</i> (603)
Contamination and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in the Sediments of Yilong Lake, Southwest China	LI Xiao-lin, LIU En-feng, YU Zhen-zhen, <i>et al.</i> (614)
Temporal and Spatial Characteristics of Heavy Metals in Suspended Particulate Matter in Pearl River Estuary and Its Influencing Factors	DU Jia, WANG Yong-hong, HUANG Qing-hui, <i>et al.</i> (625)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Microorganism Pollutions in the Beiyun River	CHEN Lei, LI Lei-fang, ZHI Xiao-sha, <i>et al.</i> (633)
Speciation and Transformation of Phosphorus in Sediments During the Redox Cycle	HAO Wen-chao, WANG Cong-feng, YANG Zheng-jian, <i>et al.</i> (640)
Effect of Magnetic Zirconium/Iron-Modified Bentonite Addition on Phosphorus Mobilization and Species Transformation in River Sediments	WANG Yan, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (649)
Influence of Calcium Ion Pre-treatment on Phosphate Adsorption onto Magnetic Zirconium/Iron-modified Bentonite	ZHAO Yu-ying, LIN Jian-wei, ZHANG Hong-hua, <i>et al.</i> (658)
Effect of Nitrogen on Magnesium Modified Biochar Adsorption to Phosphorus	ZHI Meng-meng, WANG Peng-fei, HOU Ze-ying, <i>et al.</i> (669)
Removal Performance and Mechanism for Treating Phosphorus in Agricultural Wastewater by Three Adsorbents	WU Lu, LIU Feng, LONG Rui, <i>et al.</i> (677)
Photolysis Mechanism of <i>p</i> -Nitrophenol by Nitrocellulose Membrane in Aqueous Solution	DAI Zhi-feng, ZHAO Tong-qian, YIN Yong-guang, <i>et al.</i> (685)
Preparation of ZnTiO ₃ /TiO ₂ Photocatalyst and Its Mechanism on Photocatalytic Degradation of Organic Pollutants	ZHANG Wen-hai, JI Qing-hua, LAN Hua-chun, <i>et al.</i> (693)
Adsorption and Photocatalytic Removal of Chromium on High-index TiO ₂ Facet	ZHONG De-jian, ZHANG Jian-feng, LI Yao, <i>et al.</i> (701)
Reduction Cooperated Fenton Oxidation of Zero-valent Iron (ZVI) Immobilized in Alginate Microsphere for Degradation of Acid Red B	ZHANG Huan, LI Shuang-shuang, WEI Jun-fu, <i>et al.</i> (708)
Mechanism of Removing Iron and Manganese from Drinking Water Using Manganese Ore Sand and Quartz Sand as Filtering Material	CAI Yan-an, BI Xue-jun, ZHANG Jia-ning, <i>et al.</i> (717)
Preparation of Sulfonated Graphene Oxide Modified Composite Nanofiltration Membrane and Application in Salts Separation	ZHANG Yan-jun, ZHANG Shao-feng, ZHAO Chang-wei, <i>et al.</i> (724)
Purification Efficiency and Mechanism of Integrated Al Salt Flocculation-ultrafiltration Membrane Process	XUE Wen-jing, LI Wen-jiang, LIU Juan, <i>et al.</i> (730)
Threshold Flux and Membrane Fouling Analysis of the Hybrid Pre-ozonation and CNTs Membrane Modification Process	WANG Kai-lun, LIU Fang, GUAN Yu-qi, <i>et al.</i> (738)
Distribution and Removal of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Their Derivatives in SBR/MBBR Process	LIU Shu-hui, TIAN Wei-jun, ZHOU Jian-ren, <i>et al.</i> (747)
Biological Nitrogen Removal Process in a Microbubble-aerated Biofilm Reactor Treating Low C/N Wastewater	LIU Chun, WANG Cong-cong, CHEN Xiao-xuan, <i>et al.</i> (754)
Treatment of Simulated Saline Wastewater from the Coal Chemical Industry Using Ecological Floating Beds Enhanced with Arbuscular Mycorrhiza	DOU Wen-qing, HE Hao, SONG Wen-ping, <i>et al.</i> (761)
Nitrification and Bioaugmentation of Biological Treatment System of Sewage Treatment Plant at High Temperature in Summer	SONG Tian-wei, SHENG Xiao-lin, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (768)
Characteristics of Ammonia Adsorption and Kinetics by Nitrifying Sludge Immobilized Pellets	YU De-shuang, LÜ Ting-ting, CHEN Guang-hui, <i>et al.</i> (774)
Nitrite Accumulation Characteristics of Partial Denitrification in Different Sludge Sources Using Sodium Acetate as Carbon Source	BI Chun-xue, YU De-shuang, DU Shi-ming, <i>et al.</i> (783)
Operating Characteristics of a DPR-SNED System Treating Low C/N Municipal Wastewater and Nitrate-containing Sewage	DU Shi-ming, YU De-shuang, BI Chun-xue, <i>et al.</i> (791)
Simultaneous Nitrification and Denitrifying Phosphorus Removal in Continuous Flow Reactor with Intermittent Aeration	ZHAO Zhi-chao, HUANG Jian-ming, LI Jian, <i>et al.</i> (799)
Start-up and Stable Operation of ABR-MBR Denitrifying Phosphorus Removal Process	WEI Jia-min, JIANG Zhi-yun, CHENG Cheng, <i>et al.</i> (808)
Effect of Influent C/N Ratio on the Nutrient Removal Characteristics of SNEDPR Systems	DU Ye-qi, YU De-shuang, ZHEN Jian-yuan, <i>et al.</i> (816)
Carbon and Nitrogen Removal Characteristics of ABR Decarbonization-CANON Coupling Process	LI Tian, YIN Wen, WANG Xin-zhu, <i>et al.</i> (823)
Effect of Aeration Density on Start-up of CANON Process	LI Dong, GAO Xue-jian, ZHANG Jie, <i>et al.</i> (829)
Adjusting Temperature and Settling Time to Achieve ANAMMOX Particles Rapid Start-up and Stable Operation	LI Hai-ling, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i> (837)
Effect of C/N and Sludge Concentration on the pH-Regulated Nitrification System	ZHANG Min, WEI Jia-min, HUANG Hui-min, <i>et al.</i> (845)
Growth Features of Water Supply Pipeline Biofilms Based on Active Microorganisms	WANG Yang, ZHU Bin, TONG Jun, <i>et al.</i> (853)
Elevational Distribution Characteristics of Soil Bacterial Community and Enzyme Activities in Mount Huangshan	YAO Lan, HU Li-huang, ZHANG Huan-chao, <i>et al.</i> (859)
Microbial Community Structure Shift during Bioremediation of Petroleum Contaminated Soil Using High Throughput Sequencing	QI Yan-yun, WU Man-li, ZHU Chang-cheng, <i>et al.</i> (869)
Effect of Nitrification on N ₂ O Emissions and Their Environmental Factors in Saline-alkali Wetlands	YANG Qu, GAO Wei-feng, LIU Feng-qin, <i>et al.</i> (876)
Effect of Long-term Dairy Manure Amendment on N ₂ O and NO Emissions from Summer Maize-Winter Wheat Cropping Systems	NIE Huang-hua, ZHANG Jia-sheng, HE Zhou-ming, <i>et al.</i> (885)
Effects of Plastic Film Mulching and Nitrogen Fertilizer Application on N ₂ O Emissions from a Vegetable Field	NI Xue, HAO Qing-ju, CHEN Shi-jie, <i>et al.</i> (893)
Differences and Relationship Between Rhizosphere Characteristics and Methane Emissions of Double-cropping Rice Variety	XIAO Zhi-xiang, FU Zhi-qiang, XU Hua-qin, <i>et al.</i> (904)
Effect of Long-Term Biochar Application on Soil Respiration in Flue-Cured Tobacco Planting Fields in Henan Province	LI Ya-sen, DING Song-shuang, YIN Quan-yu, <i>et al.</i> (915)
Spatial Variability in Soil Respiration Under Different Land Use Patterns in Maocun Village, Guilin	DING Meng-kai, HU Xiao-nong, CAO Jian-hua, <i>et al.</i> (924)
Spatiotemporal Variability and Source Apportionment of Soil Heavy Metals in a Industrially Developed City	LI Feng, LIU Si-yuan, LI Yan, <i>et al.</i> (934)
Effects of Bentonite on Chemical Forms and Bioavailability of Heavy Metals in Different Types of Farmland Soils	LIN Hai, JIN Xiao-na, DONG Ying-bo, <i>et al.</i> (945)
Characteristics of Soil Organic Carbon and Mineralization with Different Stands in Jinyun Mountain	CHEN Shi-qi, LÜ Sheng, GAO Ming, <i>et al.</i> (953)
Contribution of Root Biomass to Soil Organic Carbon Under Complex Landforms Conditions	ZHANG Yan-jun, GUO Sheng-li, <i>et al.</i> (961)
Transformation and Distribution of Soil Organic Carbon and the Microbial Characteristics in Response to Different Exogenous Carbon Input Levels in Paddy Soil	WANG Ji-fei, TONG Yao-yao, ZHU Zhen-ke, <i>et al.</i> (970)
Analysis of Heavy Metal Pollution and Ecological Risk Assessment on Vegetation Leaves in Baoji City	ZHANG Jun-hui, LIN Qing, JIANG Shan, <i>et al.</i> (978)
Effect of Biochar on Available Heavy Metals During Sewage Sludge Composting and Land Application of Compost	ZHOU Ji, YU Ya-wei, JIANG Yue, <i>et al.</i> (987)
Influence of Sludge Retention Time on the Performance and Stability of Mesophilic Anaerobic Co-digestion of Food Waste with Waste Activated Sludge	YUAN Hong-lin, MA Jing, XING Bao-shan, <i>et al.</i> (994)
Performance of Treating Straw and Animal Manure Mixture by an Integrated Process of Thermo-alkali-bi-enzyme Hydrolysis-anaerobic Digestion and Conditions of High Methane Yield	BIAN Ai-qin, YUAN Ye, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (1003)