

北京城区PM_{2.5}各组分污染特征及来源分析

安欣欣, 曹阳, 王琴, 富佳明, 王陈婧, 景宽, 刘保献



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年5月

第43卷 第5期
Vol.43 No.5

目次

北京城区 PM _{2.5} 各组分污染特征及来源分析	安欣欣, 曹阳, 王琴, 富佳明, 王陈婧, 景宽, 刘保献 (2251)
基于时空混合效应模型的京津冀 PM _{2.5} 浓度变化模拟	范丽行, 杨晓辉, 宋春杰, 李梦诗, 段继福, 王卫, 李夫星, 李伟妙 (2262)
2000~2018 年京津冀城市群 PM _{2.5} 时空演变及其与城市扩张的关联	赵安周, 相恺政, 刘宪锋, 张向蕊 (2274)
海-陆大气交汇作用下青岛冬季大气 PM _{2.5} 污染特征与来源解析	虞雄, 杨凌霄, 张婉, 齐安安, 王滢铭, 王鹏程, 黄琦, 赵彤, 张雄飞, 徐鹏, 张天琪, 王文兴 (2284)
硫酸盐非均相机制对颗粒物污染的影响: 上海典型污染事件的 WRF-Chem 模拟	张茹涵, 张皓然, 冯伟航, 汤克勤, 马亚平, 王红丽, 黄成, 胡建林, 张宏亮, 李楠 (2294)
省会城市不同功能区大气 PM _{2.5} 化学组分季节变化及来源分析	孙友敏, 范晶, 徐标, 李彦, 韩红, 张桂芹 (2304)
太原市冬季不同污染程度下 PM _{2.5} 的化学组成、消光特征及氧化潜势	任娇, 赵荣荣, 王铭, 张欢欢, 尹诗杰, 薛永刚 (2317)
郑州市冬季大气 PM _{2.5} 金属元素来源及健康风险评价	姚森, 王乾恒, 薛妍, 史来文, 张俊美, 杨书申 (2329)
淄博市冬季 PM _{2.5} 载体金属元素污染特征、生态风险评价及来源分析	白雯宇, 徐勃, 郭丽瑶, 殷宝辉, 马银红, 李丽明, 杨文, 赵雪艳 (2336)
承德市 PM _{2.5} 中多环芳烃的季节分布特征、来源解析及健康风险评价	贺博文, 聂赛赛, 李仪琳, 郭睿瑶, 姚波, 崔建升, 冯亚平, 王帅, 侯晓松 (2343)
珠三角大气中二噁英污染水平与区域迁移	付建平, 谢丹平, 黄锦琼, 杨艳艳, 冯桂贤, 周长风, 廖海婷, 青亮, 张漫雯, 吴明亮, 张素坤 (2355)
华北平原南部农村地区黑碳气溶胶浓度及来源	张玲, 孔少飞, 郑煌, 胡尧, 曾昕, 程溢, 祁士华 (2363)
基于模式过程分析技术天津地区 PM _{2.5} 污染气象成因分析	郝团, 蔡子颖, 韩素芹, 杨旭, 樊文雁, 姚青, 邱晓滨 (2373)
基于排放量和大气反应活性的 VOCs 污染源分级控制	陈鹏, 张月, 邢敏, 李珊珊 (2383)
基于复杂网络的中国臭氧拓扑特征	菅娜, 陈建华, 李冬, 王迪, 薛志钢 (2395)
基于前体物多情景排放的兰州市 2030 年夏季臭氧预测	陈天雷, 吴敏, 潘成珂, 常莉敏, 李洪, 刘鹏, 高宏, 黄韬, 马建民 (2403)
基于源反演和气溶胶同化方法天津空气质量模式预报能力改进	蔡子颖, 唐邈, 肖致美, 杨旭, 朱玉强, 韩素芹, 徐虹, 邱晓滨 (2415)
基于空气质量监测数据的钢铁行业污染源识别方法	石耀耀, 胡京南, 褚咏昕, 段青春, 胡丙鑫, 殷丽娜, 吕玲玲 (2427)
重污染天气应对“绩效分级、差异化管控”措施首次实践效果后评估	曾景海, 王灿 (2436)
黄河流域水污染风险分区	周夏飞, 曹国志, 於方, 杨威杉, 徐泽升 (2448)
黄河流域甘肃段工业行业水污染物空间排放特征	李雪迎, 杨曦, 乔琦, 刘丹丹, 张玥, 赵若楠, 白璐 (2459)
黄河沉积物重金属时空分布与污染评价	王韬轶, 潘保柱, 韩语, 王雨竹, 李晨辉, 杜蕾 (2467)
APCS-MLR 结合 PMF 模型解析厦门杏林湾近郊流域沉积物金属来源	沈宸宇, 闫钰, 于瑞莲, 胡恭任, 崔建勇, 颜妍, 黄华斌 (2476)
河流底泥 DOM、营养盐与重金属空间分异特征及响应关系	肖艳春, 于会彬, 宋永会 (2489)
太原市汾河河岸带土壤重金属分布特征、评价与来源解析	胡杰, 赵心语, 王婷婷, 苟奎贤, 王春玲 (2500)
洪泽湖溶解态有机质与重金属汞的结合特性	胡斌, 王沛芳, 张楠楠, 包天力, 金秋彤 (2510)
富营养化驱动下西凉湖百年生态演化轨迹	郑佳楠, 徐敏, 郑文秀, 朱可欣, 王荣, 张恩楼 (2518)
基于 DGT 技术的黄河上游典型水库沉积物氮磷释放与污染源解析	马玉坤, 朱翔, 庞晴晴, 孔明, 韩天伦, 彭福全, 谢磊, 汪龙眠, 徐斌, 何斐 (2527)
暴雨前后河南北部河流水质分异特征及其污染源解析	张彦, 邹磊, 梁志杰, 姜明, 李平, 黄仲冬, 齐学斌 (2537)
鄱阳湖流域水葫芦 (<i>Eichhornia crassipes</i>) 对水体微塑料的吸附截留效应	李文刚, 吴希恩, 简敏菲, 刘淑丽, 刘海球, 丁惠君 (2548)
太湖塑料添加剂时空分布和生态风险评价	刘舒娇, 丁剑楠, 石波哲, 张军毅, 庄严, 邹华 (2557)
骆马湖表层沉积物微塑料的分布、来源及储量	姚明轩, 白雪, 徐振佳, 李凤杰, 陆滢, 李畅, 华祖林 (2566)
太湖不同介质中磷的污染特征及其治理启示	蔡梅, 陆志华, 王元元, 钱旭 (2575)
辽河四平段流域河流沉积物微生物群落多样性和结构分析	李鹏洋, 安启睿, 王新皓, 孙思宇, 李青乾, 郑娜 (2586)
面源污染诱导嘉陵江沉积物中细菌群落结构与功能异变	薛玉琴, 徐飞, 刘坤和, 王佳颖, 竹兰萍, 朱志豪, 张拓 (2595)
微塑料对沉积物细菌群落组成和多样性的影响	李汶璐, 王志超, 杨文煊, 张博文, 李卫平 (2606)
白洋淀冬季沉积物好氧反硝化菌垂直分布特征及群落构建	张甜娜, 陈召莹, 张紫薇, 周石磊, 孟佳靖, 陈哲, 张一凡, 董宛佳, 崔建升 (2614)
人工诱导水库分层水体提前混合对细菌群落结构和代谢活性的影响	高悦, 黄廷林, 李楠, 齐允之, 司凡, 杨斌 (2624)
鄱阳湖典型区铜锈环螺体内微塑料分布特征	江为群, 胡启武, 简敏菲, 邹龙, 刘淑丽 (2633)
负载多壁碳纳米管的多孔 Ti/SnO ₂ -Sb-Ni 电极电催化氧化双酚 A	符远航, 刘安迪, 黄伟斌, 唐彬彬, 张进忠 (2640)
磁性 Mn _{0.6} Zn _{0.4} Fe ₂ O ₄ 催化 H ₂ O ₂ 降解亚甲基蓝效能及机制	徐冬莹, 余静, 郝旗, 杨迎春, 方淑红 (2650)
两种纳米颗粒对沸石吸附环丙沙星的影响	蒋兰翠, 孟昭福, 刘贤, 刘欣, 王新欣, 曹雪雯 (2662)
AMD 污泥复合材料吸附 As(V) 的机制及其影响因素	张亚辉, 张瑞雪, 吴攀, 陈世万, 杨艳, 安丽, 傅渝然, 张子豪 (2673)
三氯生及其降解中间产物对活性污泥中微生物群落变化和硝化反硝化功能基因的影响	卢英源, 董小琦, 彭星星, 贾晓珊 (2685)
污染场地风险管控可持续评价指标体系构建及关键影响因素分析	李笑诺, 易诗懿, 陈卫平 (2699)
基于生态功能的滨海湿地土壤质量综合评价方法构建及实证分析	张雪, 孔范龙, 姜志翔 (2709)
铜山矿区周边农田土壤重金属来源解析及污染评价	陈航, 王颖, 王澍 (2719)
典型铁、锰矿物对稻田土壤砷形态与酶活性的影响	周一敏, 黄雅媛, 刘凯, 赵儒乐, 李冰玉, 雷鸣 (2732)
两种油菜施肥水溶性壳聚糖修复典型铅污染农田土壤	孟晓飞, 郑国砥, 陈同斌, 杨俊兴, 郭俊梅, 刘杰 (2741)
基于贝叶斯理论的小麦籽粒镉超标风险预测	王天齐, 李艳玲, 杨阳, 牛硕, 王美娥, 陈卫平 (2751)
紫色土旱坡地油菜/玉米轮作下氮流失的年度变化特征	徐曼, 高明, 余添, 朱浩宇, 邓华, 王子芳 (2758)
不同原料生物炭的理化特性及其作炭基肥缓释载体的潜力评价	邢莉彬, 成洁, 耿增超, 张宏伟, 梁宏旭, 王强, 孙倩倩, 李艳 (2770)
木醋液酸化生物炭与氮素配施对盐渍土壤活性氮及氨挥发的影响	申书伟, 张丹丹, 王敏鸽, 王旭东 (2779)
生物可降解地膜覆盖对关中地区小麦-玉米农田温室气体排放的影响	郭怡婷, 罗晓琦, 王锐, 陈海心, 冯浩 (2788)
戴云山南坡不同海拔森林土壤微生物群落结构特征和影响因素	何中声, 王紫薇, 朱静, 陈佳嘉, 谷新光, 江蓝, 陈博, 吴则焰, 刘金福, 陈文伟 (2802)
模拟增温和降雨增加对撂荒草地土壤胞外酶活性及计量特征的影响	王兴, 钟泽坤, 简俊楠, 张硕宏, 杨改河, 任成杰, 冯永忠, 任广鑫, 王晓娇, 韩新辉 (2812)
中国主要城市的城市化对局地增温的贡献	李宇, 周德成, 闫章美, 张良侠 (2822)
《环境科学》征订启事 (2293)	
《环境科学》征稿简则 (2426)	
信息 (2585, 2672, 2708)	

珠三角大气中二噁英污染水平与区域迁移

付建平, 谢丹平*, 黄锦琼, 杨艳艳*, 冯桂贤, 周长风, 廖海婷, 青宪, 张漫雯, 吴明亮, 张素坤

(生态环境部华南环境科学研究所, 广州 510655)

摘要: 采用高分辨气相色谱/高分辨质谱法对珠三角地区 2019 年 11 月冬季期间和 2020 年 8 月夏季期间大气环境中 17 种氯取代二噁英的现状水平进行了测定, 并在此基础上对其空间分布、指纹特征、指示性单体和区域迁移特征也进行了分析。结果表明, 夏季和冬季二噁英的浓度平均值分别为 $1.40 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $5.14 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$, 而毒性当量(以 I-TEQ 计)平均值分别为 $0.087 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $0.076 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 。同时, 9 个城市夏季和冬季二噁英的空间分布不一致, 这可能由各地区采样期间的气象条件和排放源的影响导致。OCDD、1,2,3,4,6,7,8-HpCDD、OCDF 和 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF 是夏季和冬季的主要指纹特征单体; 而 2,3,4,7,8-PeCDF 和 1,2,3,4,7,8-HxCDF 是主要的毒性贡献单体, 且贡献率越大, 其与总毒性当量的线性相关性越强。由后向轨迹模拟结果发现, 夏季受东南偏南季风影响, 气团由海上迁移至陆地, 导致夏季二噁英浓度较低, 且高浓度区域主要受本地排放源影响; 而冬季受东北季风影响, 福建和广东东部地区携带污染物的气团发生陆源迁移到珠三角区域, 导致冬季二噁英浓度较高, 且高浓度区域受外源污染输入和本地源综合影响。

关键词: 珠三角; 二噁英(PCDD/Fs); 环境空气; 指纹特征; 后向轨迹

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)05-2355-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.202107094

Pollution Level and Regional Migration of PCDD/Fs in Ambient Air from Pearl River Delta, China

FU Jian-ping, XIE Dan-ping*, HUANG Jin-qiong, YANG Yan-yan*, FENG Gui-xian, ZHOU Chang-feng, LIAO Hai-ting, QING Xian, ZHANG Man-wen, WU Ming-liang, ZHANG Su-kun

(South China Institute of Environmental Sciences, Ministry of Ecology and Environment, Guangzhou 510655, China)

Abstract: The current situation of 2,3,7,8-chlorine-substituted PCDD/Fs was examined using high-resolution gas chromatography/high-resolution mass spectrometry (HRGC/HRMS) in winter and summer ambient air from November 2019 to August 2020 around the Pearl River Delta. Further analysis was carried out on the spatial behavior, fingerprint features, indicated monomers, and regional migrations. The results revealed that the mean mass values were $1.40 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ and $5.14 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$, whereas the average toxic equivalent quantities (measured by I-TEQ) were $0.087 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ and $0.076 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ in summer and winter, respectively. Simultaneously, there were differences in the spatial distribution of PCDD/Fs among nine cities between summer and winter, which might have been caused by meteorological conditions and emission sources during the sampling period. OCDD, 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD, OCDF, and 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF were the major congeners; moreover, 2,3,4,7,8-PeCDF and 1,2,3,4,7,8-HxCDF were the primary toxic contributors, in which the stronger linear correlation indicated a greater contribution. According to the simulated results of back trajectory, air masses influenced by the south-southeast monsoon migrated from the ocean to land and caused the lower mass concentration in summer; simultaneously, the highly contaminated districts were mainly affected by local emission sources. However, the air masses carrying pollutants influenced by the northeast monsoon migrated from Fujian and eastern Guangdong province to the Pearl River Delta, which caused the higher concentration in winter, and external and local emission sources influenced the highly contaminated regions.

Key words: Pearl River Delta; PCDD/Fs; ambient air; fingerprint character; back trajectory

二噁英(PCDD/Fs)是多氯代二苯并呋喃(PCDFs)和多氯代二苯并二噁英(PCDDs)的总称, 是一类具有致畸、致癌和致突变的持久性有机污染物。二噁英是人类在生产和生活过程中无意识释放的副产物, 如垃圾焚烧、废物焚烧、钢铁生产、水泥生产、再生金属冶炼和遗体火化等过程均能释放二噁英^[1~7]。大气环境作为自由开放的体系, 能广泛接受各种排放源释放的二噁英。大气中的二噁英在各种因素的综合影响下能跨区域发生长距离迁移, 并经干湿沉降作用从大气环境进入水体和土壤环境, 对生态环境产生一定影响。同时, 大气作为人类赖以生存的环境, 大气中的二噁英通过呼吸作用而在人体内蓄积, 对人类健康产生影响。研究区域大

气环境二噁英污染水平对指导行业二噁英减排、强化环境保护和保障人体健康具有重要意义。

珠三角作为世界加工制造基地, 已成为世界产业转移的首选地区之一。随着珠三角地区二噁英排放行业增多以及广东地区环保管理力度持续加大, 大气中二噁英的浓度水平也可能发生变化。目前, 对珠三角 9 个城市的大气中二噁英的研究报道较少, 主要集中在广州、深圳和东莞等地^[8,9], 而其他几个城市的

收稿日期: 2021-07-12; 修订日期: 2021-09-26

基金项目: 广东省环保专项资金项目(PM-zx443-201703-132)

作者简介: 付建平(1983~), 男, 硕士, 高级工程师, 主要研究方向为环境中痕量持久性有机污染物检测分析及其环境行为, E-mail: fujianping@scies.org

* 通信作者, E-mail: xiedanping@scies.org; yangyanan@scies.org

研究几乎处于空白. 本文首次系统对珠三角地区 9 个城市冬季和夏季大气中二噁英进行监测研究, 全面了解并掌握珠三角地区不同季节二噁英现状水平、组分特征和迁移转化规律, 以期为管理部门开展区域性二噁英管控提供基础数据和技术支撑.

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究选取珠三角区域覆盖的广州、深圳、珠海、东莞、惠州、佛山、中山、江门和肇庆这 9 个城市共 22 个点位作为大气中二噁英的监测站点, 其中广州 4 个监测站点, 深圳和江门各 3 个站点, 其余 6

个城市各 2 个站点, 监测站点布设情况如图 1 所示. 样品采集按照《环境空气和废气二噁英类的测定 同位素稀释高分辨气相色谱-高分辨质谱法》(HJ 77.2-2008) 要求执行, 采样时间为 2019 年 11 月和 2020 年 8 月, 分别代表冬季和夏季两个季节. 采样器为大流量采样器(MEGA, HORNET, 流量为 $300 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$), 分别用石英纤维滤膜和聚氨基甲酸酯泡沫收集颗粒相和气相, 现场采样前添加 ^{13}C 标记的采样内标, 采样结束后将两相态合并作为一个样品, 两个季节分别采集 22 个样品, 并按照 10% 比例分别采集 2 个采样空白. 在整个采样期间, 对环境气温、大气压、风速、风向和天气状况等气象参数进行记录.

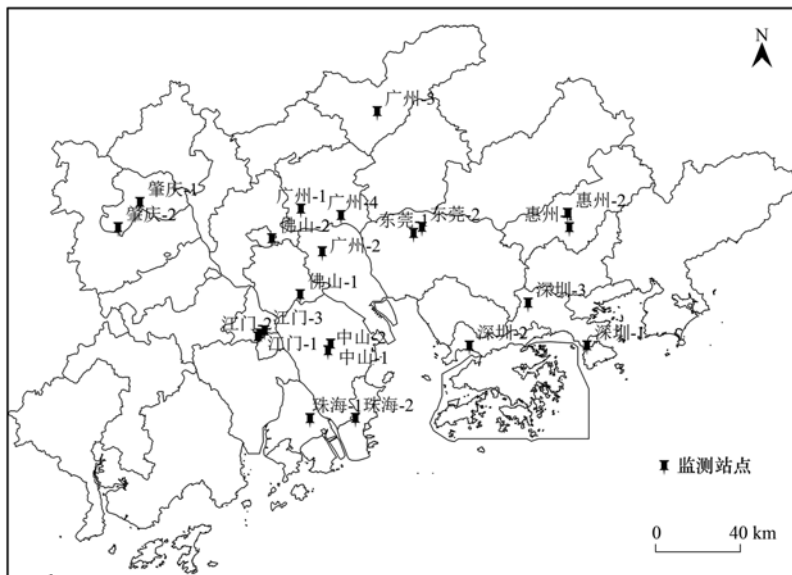


图 1 监测站点分布情况

Fig. 1 Locations of sampling sites

1.2 样品处理

样品提取:将石英纤维滤膜和聚氨基甲酸酯泡沫装入索氏抽提装置, 并加入 ^{13}C 标记的提取内标, 用甲苯连续索氏提取 24 h 后, 将提取液旋转蒸发浓缩至约 2 mL.

样品净化:将浓缩液用复合层析柱进行净化, 层析柱中填料从上到下依次分别为: 2 g 无水硫酸钠、40 g 酸性硅胶(中性硅胶: 浓硫酸 = 3: 2, 质量比)、3 g 中性硅胶、4 g 碱性硅胶(中性硅胶: $1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 氢氧化钠溶液 = 2: 1, 质量比)、3 g 中性硅胶、3 g 碱性氧化铝、1 g 弗罗里硅藻土和 2 g 无水硫酸钠. 净化前用 80 mL 的正己烷进行预淋洗层析柱, 添加样品后依次用 120 mL 正己烷和 25 mL 混合液(正己烷: 二氯甲烷 = 95: 5, 体积比)洗脱, 并弃之; 再用 100 mL 二氯甲烷淋洗, 并收集. 洗脱液经旋转蒸发浓缩至 2 mL 后转移至微量进样瓶, 用高纯氮气继续浓缩至 50 μL 后加入 ^{13}C 标记的进样内标, 待仪器

分析.

1.3 仪器分析

气相条件:采用高分辨气相色谱/高分辨质谱仪(HRGC/HRMS)对二噁英进行分析. **色谱条件:**采用 DB-5MS (60 m $\times$ 0.25 mm $\times$ 0.25 μm) 色谱柱分离二噁英. **色谱柱升温程序:**初温 140°C , 保持 2 min 后以 $8^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 220°C , 再以 $1.4^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 260°C 后以 $4^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 310°C , 保持 4 min. 采用不分流进样, 进样量为 1 μL .

质谱条件:分辨率 $\geq 10\,000$; 离子源为 EI 源, 离子源温度为 280°C , 采用选择性离子(SIM)测定, 电离能为 45 eV, 离子化电流为 900 μA .

1.4 质量保证与质量控制

通过设置采样空白和实验空白进行质量控制, 并采用同位素内标稀释定量法进行定量分析, 样品测定结果以扣除采样空白为准. 检测结果表明, 空白样品采样内标和提取内标的回收率分别介于

76%~120%和41%~107%,目标物的含量均低于方法检出限.实际样品的采样内标和提取内标回收率范围为110%~125%和54%~121%,且环境空气样品中二噁英的检测限范围为0.003~0.064 pg·m⁻³,符合《环境空气和废气 二噁英类的测定 高分辨气相色谱-高分辨质谱法》(HJ 77.2-2008)的有关要求.

2 结果与讨论

2.1 珠三角区域二噁英浓度水平及空间分布

研究区域夏季和冬季大气中二噁英浓度水平如表1所示.夏季和冬季二噁英浓度分别为0.036~6.98 pg·m⁻³和0.56~44.1 pg·m⁻³,对应浓度平均值分别为1.40 pg·m⁻³和5.14 pg·m⁻³,夏季二噁英浓度低于冬季.夏季和冬季二噁英毒性当量(以I-TEQ计,下同)分别为0.000 14~0.36 pg·m⁻³和0.012~0.31 pg·m⁻³,对应毒性当量平均值分别为0.087 pg·m⁻³和0.076 pg·m⁻³,夏季毒性当量略高于冬季.研究区域冬、夏季毒性当量均低于日本环境空气质量标准(0.6 pg·m⁻³).结合采样期间天气情况分析发现,夏季以阵雨和阴天为主,冬季则以阴晴为主,这可能是导致夏季二噁英的浓度低于冬季的原因之一.大气中污染物浓度与降雨情况呈负相关,且夏季较高的大气混合高度以及降雨量有利于大气中颗粒物经大气扩散和干湿沉降等作用而被消除^[10,11].夏季温度高于冬季,而大气压和风速略低于冬季,夏季大气中低氯代二噁英的饱和蒸气压高

于冬季,这可能引起夏季低氯代二噁英毒性当量略高于冬季.此外,夏季主导风向和风速有利于污染物扩散和稀释,冬季则引起污染物聚集,且污染物浓度随环境温度升高而降低^[12].

研究区域大气中二噁英的空间分布如图2所示.从中可知,夏季期间肇庆地区的二噁英最高,浓度平均值为4.68 pg·m⁻³;其次是中山地区,浓度平均值为3.39 pg·m⁻³;深圳、珠海、江门和佛山这4个地区二噁英的浓度相对较低,对应的浓度平均值分别为1.31、1.26、0.81和0.79 pg·m⁻³;惠州、广州和东莞这3个地区的二噁英浓度最低,且差别较小,对应的浓度平均值分别为0.53、0.50和0.49 pg·m⁻³.冬季期间东莞地区的二噁英最高,浓度平均值为35.8 pg·m⁻³;其次是惠州、佛山、珠海和广州这4个地区,对应的浓度平均值为3.26、3.01、2.77和2.12 pg·m⁻³;中山、深圳、肇庆、江门这4个地区最低,对应的浓度平均值为1.90、1.61、1.34和1.15 pg·m⁻³.对二噁英空间分布结果分析发现,各城市夏季和冬季大气环境中二噁英分布存在差异.除肇庆和中山地区夏季二噁英高冬季低外,其他城市均为夏季低冬季高,其中东莞夏季最低,冬季最高.该差异可能与采样期间当地气象因素、污染源的分布及其污染源排放情况有关.与其他研究结果相比(如表2),本研究结果与国内外其他研究具有相似的季节变化特征.本研究广州地区大气中二噁英浓度显著低于其他有关该地区的研究结果,其可能原因是不同采样时间气象条件差异和

表1 夏、冬季气象条件与二噁英浓度水平¹⁾

Table 1 Meteorological condition and concentrations in summer and winter			
类别	夏季	冬季	
气象参数	主导风向	东南风和西南风	
	天气情况	阵雨、阴天为主	
	温度/℃	25.8~36.1(30.5)	
	大气压/kPa	99.1~101.2(100.6)	
	风速/m·s ⁻¹	0~2.3(1.4)	
采样体积/m ³		309.3~322.1(312.2)	
∑PCDFs 浓度/pg·m ⁻³		0.010~5.96(0.88)	
∑PCDDs 浓度/pg·m ⁻³		0.027~2.60(0.52)	
∑PCDFs/∑PCDDs		0.3~6.0(1.5)	
PCDD/Fs 总浓度/pg·m ⁻³		0.036~6.98(1.40)	
PCDD/Fs 毒性当量/pg·m ⁻³		0.000 14~0.36(0.087)	
		0.012~0.31(0.076)	

1) 括号内为平均值

表2 国内外其他地区不同季节二噁英浓度水平¹⁾

Table 2 Level of PCDD/Fs around the world							
季节	中国城市			外国			
	重庆 ^[13]	广州 ^[14]	天津 ^[15]	韩国 ^[16]	瑞士 ^[17]	波兰 ^[18]	意大利 ^[19]
夏季	0.017~0.074	6.1	0.069	0~0.13	0.044	0.039~1.1	0.005~0.036
冬季	0.078~0.21	14.3	0.51	0~0.62	0.023	0.71~3.2	0.018~0.038

1) 重庆和广州对应单位为pg·m⁻³;天津、韩国、瑞士和意大利对应单位(以I-TEQ计)为pg·m⁻³;波兰对应单位(以WHO-TEQ计)为pg·m⁻³

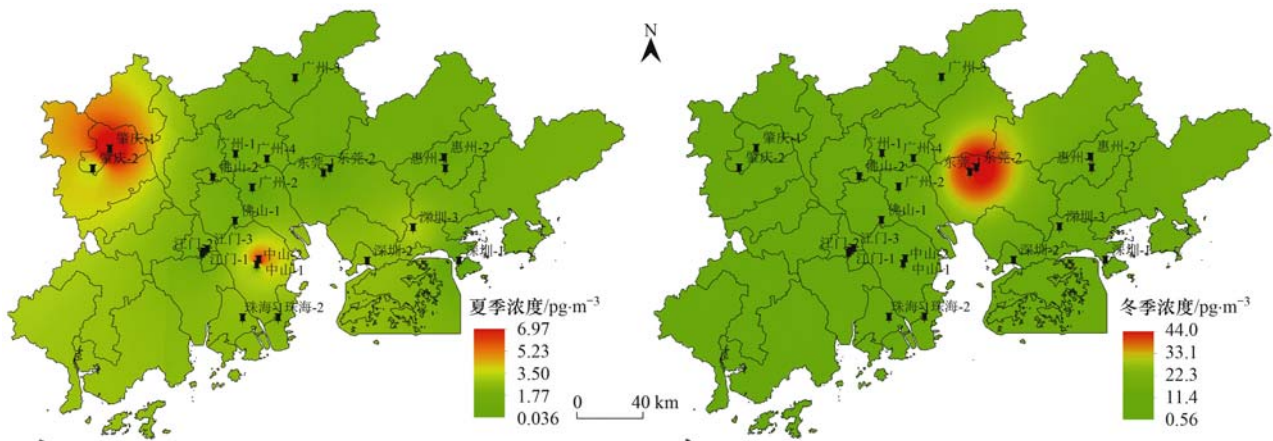


图2 珠三角夏季和冬季二噁英的空间分布

Fig. 2 Spatial behavior of PCDD/Fs in summer and winter

近年环保力度加大促进广东产业结构调整. 总体而言, 本研究结果处于同类研究结果的中等水平.

2.2 珠三角区域二噁英指纹特征

指纹特征通常可以用来识别二噁英的可能来源和推测其可能的形成机制^[20,21]. 本研究对9个城市夏季和冬季大气环境中17种二噁英单体的指纹特征分析结果如图3所示. 夏季大气环境中二噁英以OCDD、1,2,3,4,6,7,8-HpCDD、OCDF和1,2,3,4,6,7,8-HpCDF这4种高氯代单体为主, 对应的质量分数平均值分别为27.7%、11.0%、13.9%和15.9%. 冬季环境空气中二噁英以OCDD、1,2,3,4,6,7,8-HpCDD、OCDF和1,2,3,4,6,7,8-HpCDF这4种高氯代单体为主, 对应的质量分数平均值分别为50.4%、10.6%、11.6%和9.5%. 可见珠三角9个城市夏季和冬季大气环境中二噁英具有相似的指纹特征. 有报道指出, 城市生活垃圾焚烧和医疗废物焚烧等企业周边环境空气中上述4种单体的质量分数虽有差异, 但

均以这4种高氯代二噁英为主要单体^[22~25]. Lee等^[26]的研究指出, 以上这4种单体主要来源为无铅汽油机动车或柴油车排放. 虽然本研究区域9个城市环境空气中这4种二噁英单体的指纹特征与已有研究基本相似, 但由于大气环境中的二噁英来源较为复杂且多变, 难以判断其主要贡献源, 因此对珠三角区域二噁英的来源判断仍需进一步研究.

9个城市大气环境中不同氯原子取代数量对二噁英同系物分布情况的研究结果如图4所示. 夏季和冬季大气中二噁英同系物的分布规律比较相似, 即二噁英同系物的质量分数均随氯原子取代数增加而增大. 付建平等^[27]和余丽萍^[28]的研究指出, 大气气相中二噁英随氯原子取代数增加而减少, 而颗粒相中二噁英随着氯原子取代数增加而增大. 根据现有研究结果^[27,28], 初步判断本研究区域夏季和冬季大气环境中二噁英可能吸附于大气中颗粒相中. 为全面掌握研究区域大气中二噁英在不同相态的分布规律, 有必要在后续研究工作过程中按颗粒态和气

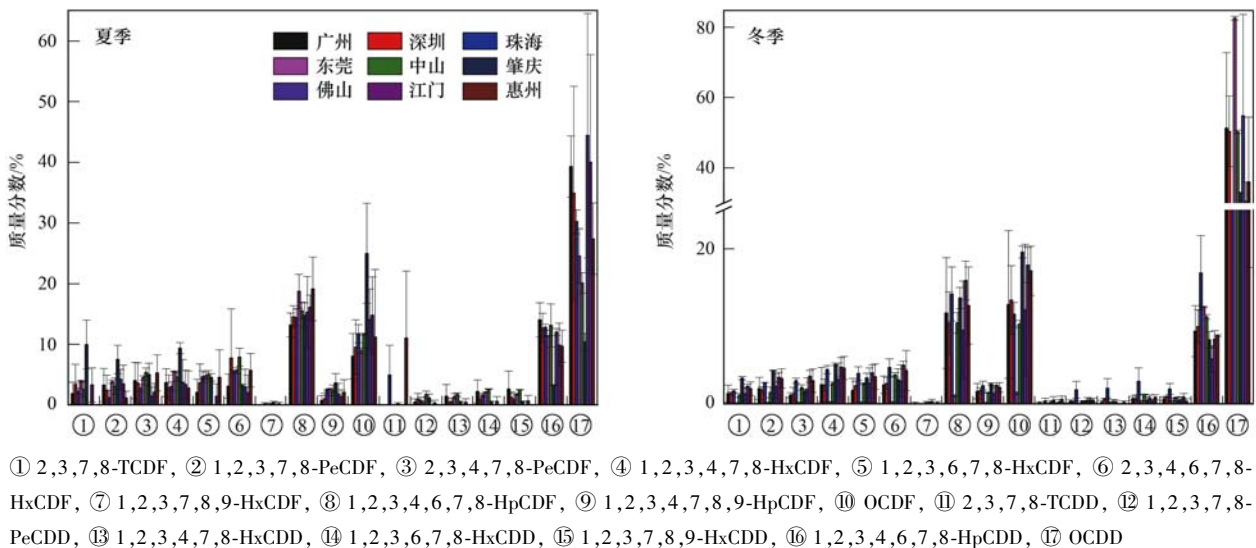


图3 夏季和冬季17种二噁英指纹分布特征

Fig. 3 Profiles of PCDD/Fs in ambient air during summer and winter

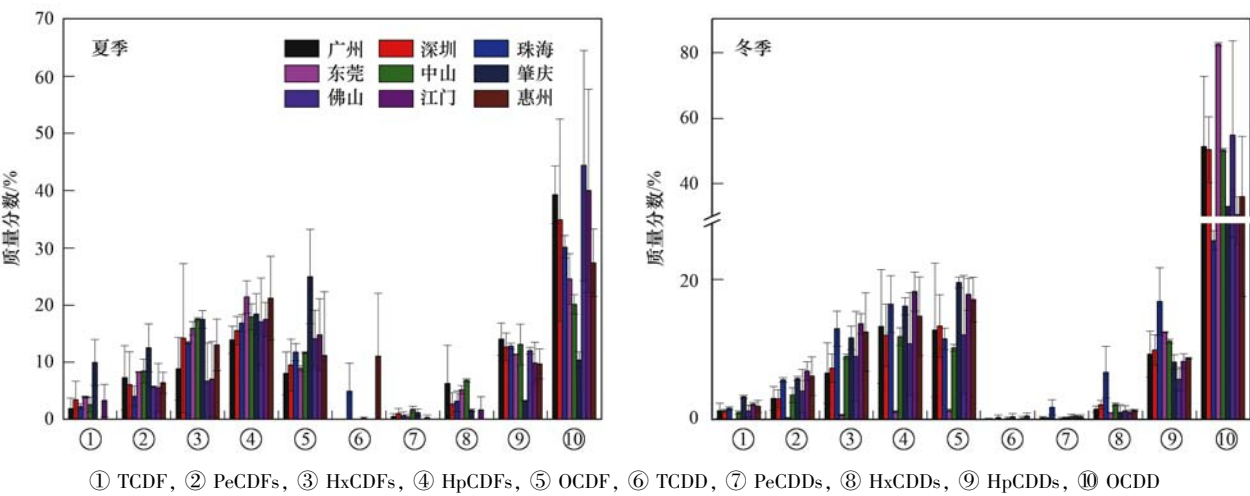


图 4 夏季和冬季二噁英同系物分布特征

Fig. 4 Profiles of homologs in ambient air during summer and winter

相进行深入探索。

2.3 珠三角区域指示性单体特征

对二噁英毒性当量的指示性单体进行识别对实现快速预测和初步判断某区域大气环境中二噁英毒性当量水平具有重要意义。大量研究表明,某些二噁英单体(如五氯代和六氯代单体)对总毒性当量的贡献率越大,彼此之间存在较好的相关性^[29-34]。结合本研究区域9个城市的22个环境空气中17种单体二噁英毒性当量对总毒性当量的贡献分析发现,2,3,4,7,8-PeCDF和1,2,3,4,7,8-HxCDF这2种单体对总毒性当量的贡献较大,可作为总毒性当量的指示性单体。夏季这2种指示性单体对总毒性当量的贡献率平均值分别为33.4%和9.2%;冬季的贡献率平均值分别为28.0%和10.2%。

夏季和冬季以上2种指示性单体与对应的总毒性当量的线性相关性情况如图5所示。夏季2,3,4,7,8-PeCDF和1,2,3,4,7,8-HxCDF这2种指示性单体与总毒性当量的线性相关系数(R^2)分别为0.91和0.82,而冬季对应的线性相关系数分别

为0.88和0.78。通过分析可以发现,对总毒性当量贡献越大的指示性单体,其线性相关系数越大,线性相关性就越强。本研究的结论与现有其他研究具有一定的相似性^[35,36]。因此,可以将2,3,4,7,8-PeCDF和1,2,3,4,7,8-HxCDF这2种指示性单体用于快速预测和初步判断研究区域大气环境中二噁英的总毒性当量分布情况。

2.4 二噁英区域迁移特征

后向轨迹模型(HYSPLIT模型)作为一种模拟大气环境中污染物环境行为的重要工具,已广泛应用于大气环境中污染物的迁移扩散行为特征研究^[37-41]。因此,本研究采用该模型对珠三角地区夏季和冬季大气环境中二噁英的迁移特征和可能输入源进行探讨。珠三角属于典型亚热带季风气候,气团运动轨迹受季节变化对二噁英影响较大。珠三角地区风场受亚洲季风影响较为显著,且秋冬季以东北季风为主,而夏季以东南季风为主。同时,该区域纬度较低,且三面环山,一面临海,受城市热岛环流和陆海风造成的大气层中尺度环流,会造成近地面

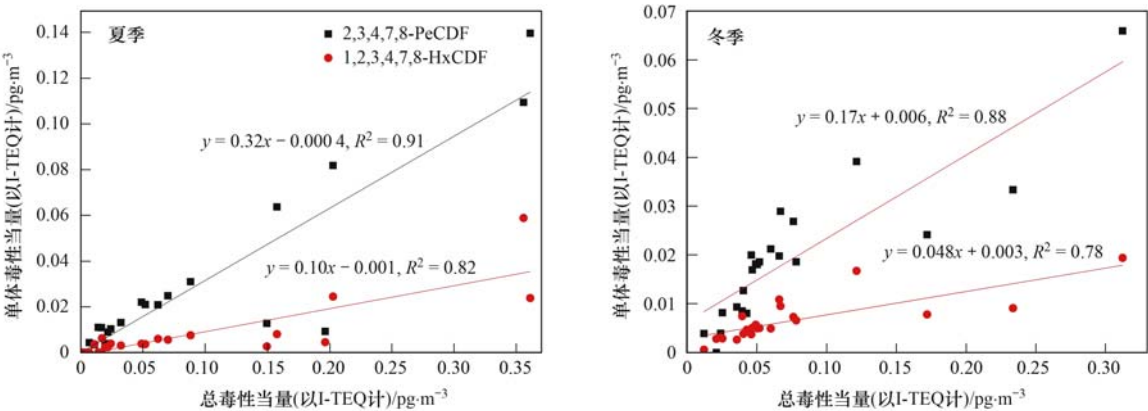


图 5 指示性单体与总毒性当量相关性分析

Fig. 5 Correlation analysis between main congeners and total toxic equivalent

污染物堆积,导致其输送和扩散产生极大影响^[42,43].根据该区域特殊地理位置状况和典型气候特征,在此讨论夏季和冬季期间浓度较高的3个地区二噁英的迁移传输特性.

由夏季的后向轨迹模拟结果进行分析可知[图6(a)],研究区域夏季主要受东南偏南季风的影响,导致气团主要由南海向陆地进行迁移.由于海洋上空的气团受陆上排放的污染物影响较小,且通过长距离的输送迁移至陆地时可能发生沉降和扩散作用,从而导致夏季期间珠三角区域大气中二噁英浓度较低.同时,当气团达到陆地时,受陆地排放源影响,部分城市的二噁英受气团影响继续随夏季主导风向发生迁移,从而导致肇庆、中山和深圳这3个地区大气中的二噁英浓度相对较高,其他6个地区相对较低.由此可以推断,夏季大气中二噁英浓度较高地区主要受本地排放源影响,且对其他地区大气中二噁英的影响相对较小.

而珠三角冬季的后向轨迹模拟结果[图6(b)]与夏季具有明显的区别.因冬季受东北季风的影响,珠三角地区的污染气团以福建龙岩、广东省内梅州、河源和潮汕等东部地区的陆源输入为主,从而导致这些地区排放的二噁英有可能随气团发生中长距离迁移到珠三角区域,从而致使该区域冬季二噁英浓度高于夏季.进一步分析发现,冬季期间东莞、惠州和佛山这3个地区二噁英浓度相对较高,其可能受东北向的外源污染输入和本地排放源影响较大,其他6个地区受外源污染输入影响相对较小. Chi等^[44]的研究指出,中国台湾地区马祖岛冬季和春季期间因受到东北季风的影响且距离大陆较近,从而推断导致该点位大气中二噁英受大陆人为排放源的影响而浓度值升高. Zhou等^[45]的研究对北京地区二噁英的后向轨迹模拟结果表明,气团在季风的影响下,可能导致东北地区的二噁英迁移至北京.

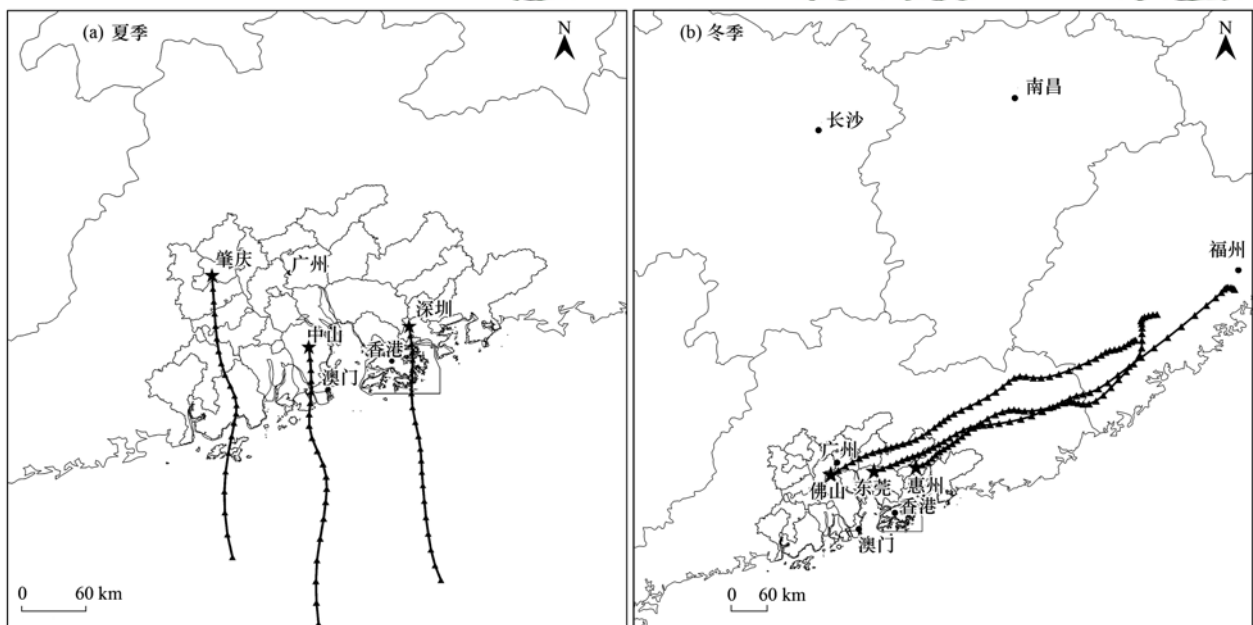


图6 夏季和冬季气团后向轨迹

Fig. 6 Simulated results of back trajectory

3 结论

(1) 珠三角夏季和冬季二噁英浓度分别为 $0.036 \sim 6.98 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ (平均值 $1.40 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) 和 $0.56 \sim 44.1 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ (平均值 $5.14 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$), 夏季二噁英浓度低于冬季. 夏季和冬季二噁英毒性当量分别为 $0.00014 \sim 0.36 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ (平均值 $0.087 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$) 和 $0.012 \sim 0.31 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ (平均值 $0.076 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$), 夏季毒性当量浓度略高于冬季. 这可能受现场采样期间的气象条件和二噁英的理化性质的综合影响.

(2) 9个城市夏季和冬季二噁英空间分布存在

差异,夏季肇庆最高,中山次之,深圳、珠海、江门和佛山这4个地区相对较低,惠州、广州和东莞这3个地区最低;冬季东莞最高,其次是惠州、佛山、珠海和广州4个地区,中山、深圳、肇庆、江门这4个地区最低. 其他季节二噁英污染水平与空间分布特征将在后续工作进行深入研究.

(3) 夏季和冬季大气中二噁英均以 OCDD、1,2,3,4,6,7,8-HpCDD、OCDF 和 1,2,3,4,6,7,8-HpCDF 这4种单体为主. 夏季和冬季二噁英同系物的浓度值随均氯原子取代数增加而增大;夏季和冬季二噁英的指示性单体是 2,3,4,7,8-PeCDF 和

1,2,3,4,7,8-HxCDF,且指示性单体贡献率越大,与总毒性当量的线性关系越强。

(4)珠三角夏季和冬季大气中二噁英受季风影响比较明显。后向轨迹模拟显示,夏季受东南偏南季风影响,南海上空气团迁移至陆地,导致夏季大气中二噁英浓度低于冬季,肇庆、中山和深圳这3个地区可能受本地排放源影响而浓度较高;冬季受东北向季风影响,福建和广东东部地区气团发生陆源中长距离迁移,导致冬季大气中二噁英浓度高于夏季,东莞、惠州和佛山这3个高浓度区域可能受外源污染输入和本地排放源综合影响。

参考文献:

- [1] 徐帅玺,林晓青,陈彤,等. 钢铁行业不同物料的二噁英生成分布及机理探讨[J]. 环境科学学报, 2018, **38**(7): 2818-2824.
- Xu S X, Lin X Q, Chen T, *et al.* PCDD/F formation and distribution of various materials from steel industry [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(7): 2818-2824.
- [2] 龙红明,吴雪健,李家新,等. 烧结过程二噁英的生成机理与减排途径[J]. 烧结球团, 2016, **41**(3): 46-51.
- Long H M, Wu X J, Li J X, *et al.* Formation mechanism of dioxins in sintering process and their emission reduction approaches [J]. *Sintering and Pelletizing*, 2016, **41**(3): 46-51.
- [3] 张婧,倪余文,张海军,等. 水泥窑除尘器捕集灰中 PCDD/Fs、PCBs 和 PCNs 的分布特征[J]. 环境科学, 2009, **30**(2): 568-573.
- Zhang J, Ni Y W, Zhang H J, *et al.* Patterns of PCDD/Fs, PCBs and PCNs homologues in fly ash from cement kilns [J]. *Environmental Science*, 2009, **30**(2): 568-573.
- [4] 唐娜,李馥琪,罗伟铿,等. 废物焚烧及工业金属冶炼烟气中二噁英的排放水平及同系物分布[J]. 安全与环境学报, 2018, **18**(4): 1496-1502.
- Tang N, Li F Q, Luo W K, *et al.* Concentrations and congener distributions of PCDD/Fs in the flue gas from combustion and metallurgical processing [J]. *Journal of Safety and Environment*, 2018, **18**(4): 1496-1502.
- [5] 陈佳,陈彤,王奇,等. 中国危险废物和医疗废物焚烧处置行业二噁英排放水平研究[J]. 环境科学学报, 2014, **34**(4): 973-979.
- Chen J, Chen T, Wang Q, *et al.* PCDD/Fs emission levels of hazardous and medical waste incineration in China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2014, **34**(4): 973-979.
- [6] 尹文华,于晓巍,韩静磊,等. 遗体火化二噁英类排放水平及影响因素[J]. 环境科学, 2015, **36**(10): 3596-3602.
- Yin W H, Yu X W, Han J L, *et al.* Emission of PCDD/Fs from crematories and its influencing factors [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(10): 3596-3602.
- [7] 尹文华,李旭东,冯桂贤,等. 火化机中二噁英的排放特征和指示物的研究[J]. 环境科学学报, 2017, **37**(12): 4670-4676.
- Yin W H, Li X D, Feng G X, *et al.* Emission characteristics of PCDD/Fs from crematories and identification of I-TEQ indicator in flue gases [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(12): 4670-4676.
- [8] 苏原,张素坤,任明忠,等. 广州大气二噁英污染水平及其季节变化特征[J]. 环境科学研究, 2014, **27**(8): 813-819.
- Su Y, Zhang S K, Ren M Z, *et al.* Pollution levels and seasonal variability of atmospheric PCDD/Fs in Guangzhou [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2014, **27**(8): 813-819.
- [9] 彭金铃,张建清,陆少游,等. 深圳市大气细颗粒物中二噁英污染水平及人群暴露风险分析[J]. 卫生研究, 2015, **44**(4): 570-575.
- Peng J L, Zhang J Q, Lu S Y, *et al.* Levels of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in airborne fine particulate matter and inhalation risk assessment for local residents of Shenzhen [J]. *Journal of Hygiene Research*, 2015, **44**(4): 570-575.
- [10] 金维明. 降水量变化对大气污染物浓度影响分析[J]. 环境保护科学, 2012, **38**(2): 23-26, 52.
- Jin W M. Analysis on impact of precipitation variation on atmospheric pollutants concentration [J]. *Environmental Protection Science*, 2012, **38**(2): 23-26, 52.
- [11] 肖潇,陈德翼,陈佩,等. 某典型电子垃圾拆解地不同季节大气 PCDD/Fs 污染水平及分布特征[A]. 见: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,中国环境科学学会,清华大学,2011.
- [12] 汤羹,马宪国. 上海气象因素对 PM_{2.5} 等大气污染物浓度的影响[J]. 能源研究与信息, 2016, **32**(2): 71-74.
- Tang G, Ma X G. Influence of meteorological conditions in Shanghai on the concentration of PM_{2.5} and other air pollutants [J]. *Energy Research and Information*, 2016, **32**(2): 71-74.
- [13] 张晓岭,卢益,朱明吉,等. 重庆市大气二噁英污染水平及季节变化[J]. 环境科学, 2014, **35**(1): 22-29.
- Zhang X L, Lu Y, Zhu M J, *et al.* Concentrations of PCDD/Fs in the atmosphere of Chongqing City and its seasonal variation [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(1): 22-29.
- [14] 杜国勇,苏原,任明忠,等. 气象因素对广州市大气中二噁英污染特征的影响[J]. 环境科学, 2014, **35**(8): 2857-2863.
- Du G Y, Su Y, Ren M Z, *et al.* Effect of meteorological factors on characteristics of PCDD/F pollution in Guangzhou [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(8): 2857-2863.
- [15] Ding L, Li Y M, Wang P, *et al.* Seasonal trend of ambient PCDD/Fs in Tianjin City, northern China using active sampling strategy [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2012, **24**(11): 1966-1971.
- [16] Shin S K, Jin G Z, Kim W I, *et al.* Nationwide monitoring of atmospheric PCDD/Fs and dioxin-like PCBs in South Korea [J]. *Chemosphere*, 2011, **83**(10): 1339-1344.
- [17] Bogdal C, Müller C E, Buser A M, *et al.* Emissions of polychlorinated biphenyls, polychlorinated dibenzo-p-dioxins, and polychlorinated dibenzofurans during 2010 and 2011 in Zurich, Switzerland [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(1): 482-490.
- [18] Umlauf G, Christoph E H, Eisenreich S J, *et al.* Seasonality of PCDD/Fs in the ambient air of Malopolska Region, southern Poland [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2010, **17**(2): 462-469.
- [19] Mosca S, Torelli G N, Tramontana G, *et al.* Concentration of organic micropollutants in the atmosphere of Trieste, Italy [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2012, **19**(6): 1927-1935.
- [20] Zhang G, Hai J, Cheng J. Characterization and mass balance of dioxin from a large-scale municipal solid waste incinerator in China [J]. *Waste Management*, 2012, **32**(6): 1156-1162.
- [21] Zhao Y Y, Zhan J Y, Liu G R, *et al.* Evaluation of dioxins and dioxin-like compounds from a cement plant using carbide slag from chlor-alkali industry as the major raw material [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2017, **330**: 135-141.
- [22] 马云娟,谭志,张国斐,等. 东莞垃圾焚烧厂周边环境

- PCDD/Fs 分布特征[J]. 环境科学与技术, 2014, **37**(120): 95-100.
- Ma Y J, Tan Z, Zhang G F, *et al.* Concentrations and profiles of PCDD/Fs in environment around a municipal solid waste incinerator in Dongguan [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **37**(120): 95-100.
- [23] 杨艳艳, 韩静磊, 尹文华, 等. 医疗废物焚烧厂周边环境空气中二噁英浓度分布及其健康风险评估[J]. 环境科学学报, 2019, **39**(12): 4215-4225.
- Yang Y Y, Han J L, Yin W H, *et al.* Concentrations distribution of PCDD/Fs and its health risk assessment in ambient air around a medical waste incinerator (MWI) [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(12): 4215-4225.
- [24] Zhang C C, Li X X, Zhou Z G. Spatial and temporal variation, source profile of PCDD/Fs in the atmosphere of a municipal waste incinerator in China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, **184**, doi: 10.1016/j.ecoenv.2019.109615.
- [25] 齐丽, 任玥, 李楠, 等. 垃圾焚烧厂周边大气二噁英含量及变化特征——以北京某城市生活垃圾焚烧发电厂为例[J]. 中国环境科学, 2016, **36**(4): 1000-1008.
- Qi L, Ren Y, Li N, *et al.* Concentrations, spatial and seasonal variations of PCDD/Fs in ambient air around a municipal solid waste incinerator—a case study in Beijing [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(4): 1000-1008.
- [26] Lee W S, Chang-Chien G P, Wang L C, *et al.* Source identification of PCDD/Fs for various atmospheric environments in a highly industrialized city [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(19): 4937-4944.
- [27] 付建平, 韩静磊, 于晓巍, 等. 几种可能来源对广东某地空气中二噁英的影响[J]. 环境科学, 2017, **38**(2): 502-509.
- Fu J P, Han J L, Yu X W, *et al.* Possible sources of PCDD/Fs in atmosphere of a certain district in Guangdong [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(2): 502-509.
- [28] 余莉萍. 广州大气中二噁英的浓度分布和几种典型二噁英排放源的初步研究[D]. 广州: 中国科学院研究生院(广州地球化学研究所), 2007.
- Yu L P. Preliminary Study on levels of PCDD/Fs in atmosphere of Guangzhou and typical emission sources of PCDD/Fs, China [D]. Guangzhou: Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, 2007.
- [29] 陈德冀, 彭平安, 胡建芳, 等. 生物质燃烧的二噁英排放特性[J]. 环境化学, 2011, **30**(7): 1271-1279.
- Chen D Y, Peng P A, Hu J F, *et al.* The emission characteristics of dioxins in biomass burning [J]. *Environmental Chemistry*, 2011, **30**(7): 1271-1279.
- [30] 赵金平, 钟英立, 徐小静, 等. 南方地区典型生物质燃烧锅炉二噁英排放污染特征[J]. 中国环境科学, 2017, **37**(9): 3473-3480.
- Zhao J P, Zhong Y L, Xu X J, *et al.* Research on pollution characteristic of dioxin emitted from typical biomass combustion boiler in southern region [J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(9): 3473-3480.
- [31] 王伟, 高兴保. 生活垃圾焚烧飞灰中的二噁英分布及指示异构体的识别[J]. 环境科学, 2007, **28**(2): 445-448.
- Wang W, Gao X B. PCDD/Fs Distribution in MSWI fly ash and identification of the indicated isomer [J]. *Environmental Science*, 2007, **28**(2): 445-448.
- [32] 高洪才, 倪余文, 张海军, 等. 不同垃圾焚烧设备中二噁英的排放特征和 I-TEQ 指示物的研究[J]. 环境科学, 2009, **30**(5): 1545-1550.
- Gao H C, Ni Y W, Zhang H J, *et al.* PCDD/F emission characteristics in different waste incineration facilities and evaluation of 23478-PeCDF as I-TEQ indicator of PCDD/F in flue gases [J]. *Environmental Science*, 2009, **30**(5): 1545-1550.
- [33] 胡远志, 姚智兵, 史新宇, 等. 两种典型生活垃圾焚烧设施中二噁英的排放特征和影响因素[A]. 见: 2017 中国环境科学学会科学与技术年会论文集[C]. 厦门: 中国环境科学学会, 2018.
- [34] 刘丽君, 韩静磊, 付建平, 等. 广州城区大气 PM₁₀ 中二噁英季节分布特征及健康风险评估[J]. 环境与健康杂志, 2016, **33**(5): 415-420.
- Liu L J, Han J L, Fu J P, *et al.* Distribution characteristics and health risk assessment of PCDD/Fs in ambient PM₁₀ in Guangzhou [J]. *Journal of Environment and Health*, 2016, **33**(5): 415-420.
- [35] 付建平, 青宪, 冯桂贤, 等. 基于污泥掺烧的某生活垃圾焚烧厂烟道气、飞灰及炉渣中的二噁英特征[J]. 环境科学学报, 2017, **37**(12): 4677-4684.
- Fu J P, Qing X, Feng G X, *et al.* Characteristics of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans (PCDD/Fs) in flue gas, fly ash and bottom slag from a municipal solid waste incineration (MSWI) plant based on co-firing of sewage sludge [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(12): 4677-4684.
- [36] 李楠, 刘爱民. 大气中二噁英类污染物的一种快速测定方法[A]. 见: 中国环境科学学会 2010 年学术年会论文集[C]. 上海: 中国环境科学学会, 2010.
- [37] Bi C L, Chen Y T, Zhao Z Z, *et al.* Characteristics, sources and health risks of toxic species (PCDD/Fs, PAHs and heavy metals) in PM_{2.5} during fall and winter in an industrial area [J]. *Chemosphere*, 2020, **238**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.124620.
- [38] Lee S J, Park H, Choi S D, *et al.* Assessment of variations in atmospheric PCDD/Fs by Asian dust in Southeastern Korea [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(28): 5876-5886.
- [39] Peng X L, Choi M P W, Wong M H. Receptor modeling for analyzing PCDD/F and dioxin-like PCB sources in Hong Kong [J]. *Environmental Modeling & Assessment*, 2007, **12**(3): 229-237.
- [40] Zhao S P, Yin D Y, Qu J J. Identifying sources of dust based on CALIPSO, MODIS satellite data and backward trajectory model [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2015, **6**(1): 36-44.
- [41] 青宪, 冯桂贤, 杨艳艳, 等. 基于后向轨迹对城市大气中二噁英长距离迁移来源的探讨[J]. 环境科学学报, 2013, **33**(11): 2959-2964.
- Qing X, Feng G X, Yang Y Y, *et al.* Long-range transport source of dioxin in the urban atmosphere based on backward trajectories [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, **33**(11): 2959-2964.
- [42] 陆希, Chow K C, Yao T, 等. 珠三角地区海陆风环流的季节性特点[A]. 见: 第 32 届中国气象学会年会 S13 气候环境变化与人体健康[C]. 天津: 中国气象学会, 2015.
- [43] Huang J P, Fung J C H, Lau A K H, *et al.* Numerical simulation and process analysis of typhoon-related ozone episodes in Hong Kong [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2005, **110**, doi: 10.1029/2004JD004914.
- [44] Chi K H, Lin C Y, Wang S H, *et al.* Evaluation of the distributions of ambient PCDD/Fs at remote locations in and around Taiwan [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **78**: 203-210.
- [45] Zhou Z G, Zhao B, Qi L, *et al.* Distribution of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in the atmosphere of Beijing, China [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2014, **14**(4): 1269-1278.

CONTENTS

Chemical Characteristics and Source Apportionment of PM _{2.5} in Urban Area of Beijing	AN Xin-xin, CAO Yang, WANG Qin, <i>et al.</i> (2251)
Modeling of PM _{2.5} Concentrations in the Beijing-Tianjin-Hebei Region Using a Space-time Linear Mixed Effects Model	FAN Li-hang, YANG Xiao-hui, SONG Chun-jie, <i>et al.</i> (2262)
Spatio-temporal Evolution Patterns of PM _{2.5} and Relationship with Urban Expansion in Beijing-Tianjin-Hebei Urban Agglomeration from 2000 to 2018	ZHAO An-zhou, XIANG Kai-zheng, LIU Xian-feng, <i>et al.</i> (2274)
Characteristics and Source Analysis of PM _{2.5} in Qingdao in Winter Under the Action of Sea-Land-Atmosphere Convergence	TUO Xiong, YANG Ling-xiao, ZHANG Wan, <i>et al.</i> (2284)
Impacts of Heterogeneous Uptake Pathway on Sulfate Formation: A Case Study in Shanghai Based on WRF-Chem	ZHANG Ru-han, ZHANG Hao-ran, FENG Wei-hang, <i>et al.</i> (2294)
Source Apportionment and Seasonal Changes in PM _{2.5} Chemical Components from Different Functional Areas of a Provincial Capital City	SUN You-min, FAN Jing, XU Biao, <i>et al.</i> (2304)
Chemical Compositions, Light Extinction Effect, and Oxidative Potential of PM _{2.5} Under Different Pollution Levels During Winter in Taiyuan	REN Jiao, ZHAO Rong-rong, WANG Ming, <i>et al.</i> (2317)
Source Apportionment and Health Risk Assessment of Metal Elements in Ambient PM _{2.5} in the Winter of Zhengzhou	YAO Sen, WANG Qian-heng, XUE Yan, <i>et al.</i> (2329)
Characteristics, Ecological Risk Assessment, and Sources of the Polluted Metallic Elements in PM _{2.5} During Winter in Zibo City	BAI Wen-yu, XU Bo, GUO Li-yao, <i>et al.</i> (2336)
Seasonal Distribution Characteristics, Source Analysis, and Health Risk Evaluation of PAHs in PM _{2.5} in Chengde	HE Bo-wen, NIE Sai-sai, LI Yi-lin, <i>et al.</i> (2343)
Pollution Level and Regional Migration of PCDD/Fs in Ambient Air from Pearl River Delta, China	FU Jian-ping, XIE Dan-ping, HUANG Jin-qiong, <i>et al.</i> (2355)
Concentrations and Sources of Black Carbon Aerosols in Rural Areas of Southern North China Plain	ZHANG Ling, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, <i>et al.</i> (2363)
Research on Causes of Severely Polluted Weather in Tianjin Based on Process Analytical Technology	HAO Jian, CAI Zi-ying, HAN Su-qin, <i>et al.</i> (2373)
Classification Control of Volatile Organic Compounds (VOCs) Emission Pollution Sources Based on Emission Amounts and Atmospheric Reactivity	CHEN Peng, ZHANG Yue, XING Min, <i>et al.</i> (2383)
Complex Networks Reveal the Characteristics of Ozone in China	YING Na, CHEN Jian-hua, LI Dong, <i>et al.</i> (2395)
Ozone Simulation of Lanzhou City Based on Multi-scenario Emission Forecast of Ozone Precursors in the Summer of 2030	CHEN Tian-lei, WU Min, PAN Cheng-ke, <i>et al.</i> (2403)
Improvement of Environmental Model Prediction Based on Inversion and Aerosol Assimilation	CAI Zi-ying, TANG Miao, XIAO Zhi-mei, <i>et al.</i> (2415)
Method of Identifying Air Pollution from Iron and Steel Industry Based on Ambient Air Quality Monitoring Data Analysis	SHI Yao-peng, HU Jing-nan, CHU Yang-xi, <i>et al.</i> (2427)
Assessment of "Differentiated Response Requirement Based on Performance Grading" Policy During Heavy Air Pollution Alert	ZENG Jing-hai, WANG Can (2436)
Risk Zoning of Water Pollution in the Yellow River Basin	ZHOU Xia-fei, CAO Guo-zhi, YU Fang, <i>et al.</i> (2448)
Emission Characteristics of Industrial Water Pollutants in Gansu Section of the Yellow River Basin	LI Xue-ying, YANG Xi, QIAO Qi, <i>et al.</i> (2459)
Spatial-temporal Distribution and Pollution Assessment of Heavy Metals in Sediments of the Yellow River	WANG Tao-yi, PAN Bao-zhu, HAN Xu, <i>et al.</i> (2467)
APCS-MLR Combined with PMF Model to Analyze the Source of Metals in Sediment of Xinglin Bay Suburban Watershed, Xiamen	SHEN Chen-yu, YAN Yu, YU Rui-lian, <i>et al.</i> (2476)
Spatial Differentiation Characteristics and Response Relationship of DOM, Nutrients, and Heavy Metals in River Sediments	XIAO Yan-chun, YU Hui-bin, SONG Yong-hui (2489)
Distribution Characteristics, Evaluation, and Source Analysis of Heavy Metals in Soils of Fenhe Riparian Zone in Taiyuan City	HU Jie, ZHAO Xin-yu, WANG Ting-ting, <i>et al.</i> (2500)
Binding Affinity Between Heavy Metal Hg and Dissolved Organic Matter in Hongze Lake	HU Bin, WANG Pei-fang, ZHANG Nan-nan, <i>et al.</i> (2510)
Ecosystem Evolutionary Trajectory of Lake Xiliang over the Past Century Driven by Eutrophication	ZHENG Jia-nan, XU Min, ZHENG Wen-xiu, <i>et al.</i> (2518)
Sediment Release and Pollution Source Analysis of Typical Reservoirs in the Upper Reaches of the Yellow River Based on DGT Technology	MA Yu-shen, ZHU Xiang, PANG Qing-qing, <i>et al.</i> (2527)
Differential Characteristics and Source Identification of Water Quality of the Rivers in Northern Henan Before and After Rainstorm	ZHANG Yan, ZOU Lei, LIANG Zhi-jie, <i>et al.</i> (2537)
Adsorption and Interception Effects of <i>Eichhornia crassipes</i> on Microplastics in Water of the Poyang Lake Basin	LI Wen-gang, WU Xi-en, JIAN Min-fei, <i>et al.</i> (2548)
Spatiotemporal Distribution and Ecological Risk Assessment of Plastic Additives in Taihu Lake	LIU Shu-jiao, DING Jian-nan, SHI Jun-zhe, <i>et al.</i> (2557)
Distribution Characteristics, Sources, and Storage of Microplastics in Surface Sediments of Luoma Lake	YAO Ming-xuan, BAI Xue, XU Zhen-jia, <i>et al.</i> (2566)
Pollution Characteristics of Phosphorus in Different Media in Taihu Lake and Its Treatment Enlightenment	CAI Mei, LU Zhi-hua, WANG Yuan-yuan, <i>et al.</i> (2575)
Analysis on Diversity and Structure of Microbial Community in River Sediment of Siping Section of Liaohe River	LI Peng-yang, AN Qi-rui, WANG Xin-hao, <i>et al.</i> (2586)
Non-point Source Pollution (NPSP) Induces Structural and Functional Variation in Bacterial Communities in Sediments of Jialing River	XUE Yu-qin, XU Fei, LIU Kun-he, <i>et al.</i> (2595)
Effects of Microplastics on Bacterial Community Composition and Diversity in Sediments	LI Wen-lu, WANG Zhi-chao, YANG Wen-huan, <i>et al.</i> (2606)
Vertical Distribution Characteristics and Community Construction of Aerobic Denitrification Bacteria from the Sediments of Baiyangdian Lake During the Winter Freezing Period	ZHANG Tian-na, CHEN Zhao-ying, ZHANG Zi-wei, <i>et al.</i> (2614)
Effect of Induced Mixing on Bacterial Community Structure and Metabolic Activity in Reservoir	GAO Yue, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (2624)
Distribution Characteristics of Microplastics in <i>Bellamyia aeruginosa</i> in Typical Area of Poyang Lake	JIANG Wei-qun, HU Qi-wu, JIAN Min-fei, <i>et al.</i> (2633)
Electrocatalytic Oxidation of Bisphenol A by Porous Ti/SnO ₂ -Sb-Ni Electrode Loaded with Multi-wall Carbon Nanotubes	FU Yuan-hang, LIU An-di, HUANG Wei-bin, <i>et al.</i> (2640)
Efficiency and Mechanism of Degradation of Methylene Blue with H ₂ O ₂ Catalyzed by Magnetic Mn _{0.4} Zn _{0.4} Fe ₂ O ₄ @SiO ₂	XU Dong-ying, YU Jing, HAO Qi, <i>et al.</i> (2650)
Effect of Two Types of Nanoparticles on the Adsorption of Ciprofloxacin on Zeolite	JIANG Lan-cui, MENG Zhao-fu, LIU Xian, <i>et al.</i> (2662)
Adsorption Mechanisms and Effect Factors of As(V) by AMD Sludge Composite Material	ZHANG Ya-hui, ZHANG Rui-xue, WU Pan, <i>et al.</i> (2673)
Shifts in Microbial Community and Variation in Functional Genes for Nitrification and Denitrification in Activated Sludge Affected by Triclosan and Its Transformed Intermediates	LU Ying-yuan, DONG Xiao-qi, PENG Xing-xing, <i>et al.</i> (2685)
Construction of Sustainability Evaluation Index System for Contaminated Site Risk Management and Analysis on Key Influential Factors	LI Xiao-nuo, YI Shi-yi, CHEN Wei-ping (2699)
Construction and Empirical Analysis of a Comprehensive Evaluation Method of Coastal Wetland Soil Quality Based on Ecological Functions	ZHANG Xue, KONG Fan-long, JIANG Zhi-xiang (2709)
Source Analysis and Pollution Assessment of Heavy Metals in Farmland Soil Around Tongshan Mining Area	CHEN Hang, WANG Ying, WANG Shu (2719)
Effects of Typical Iron and Manganese Minerals on Arsenic Speciation and Enzyme Activities in Paddy Soil	ZHOU Yi-min, HUANG Ya-yuan, LIU Kai, <i>et al.</i> (2732)
Phytoremediation Efficiency of Two Cultivars of <i>Brassica napus</i> L. Under Water-soluble Chitosan Treatment in Typical Pb-contaminated Farmland Soils	MENG Xiao-fei, ZHENG Guo-di, CHEN Tong-bin, <i>et al.</i> (2741)
Risk Prediction of Cadmium and Lead in Wheat Grains Based on Bayes Theorem	WANG Tian-qi, LI Yan-ling, YANG Yang, <i>et al.</i> (2751)
Interannual Variation Characteristics of Nitrogen Loss Under Rapeseed/Maize Rotation in Purple Soil Sloping Field	XU Man, GAO Ming, YU Luo, <i>et al.</i> (2758)
Physicochemical Properties of Biochars Prepared from Different Feedstocks and Evaluation of Its Potential as A Slow-release Carriers for Biochar-based Fertilizers	XING Li-bin, CHENG Jie, GENG Zeng-chao, <i>et al.</i> (2770)
Effects of Combined Application of Wood Vinegar-Acidified Biochar and Nitrogen on Active Nitrogen and Ammonia Volatilization in Saline Soil	SHEN Shu-wei, ZHANG Dan-dan, WANG Min-ge, <i>et al.</i> (2779)
Effects of Biodegradable Plastic Film Mulching on Greenhouse Gas Emissions Under Wheat-Maize Rotation System in the Guanzhong Plain	GUO Yi-ting, LUO Xiao-qi, WANG Rui, <i>et al.</i> (2788)
Forest Soil Microbial Community Structure Characteristics and Its Influencing Factors at Different Elevations on the Southern Slope of Daiyun Mountain	HE Zhong-sheng, WANG Zi-wei, ZHU Jing, <i>et al.</i> (2802)
Effects of Simulated Warming and Increased Precipitation on Soil Extracellular Enzyme Activity and Enzymatic Stoichiometry of Abandoned Grassland	WANG Xing, ZHONG Ze-kun, JIAN Jun-nan, <i>et al.</i> (2812)
Contribution of Urbanization to Local Warming in Major Cities of China	LI Yu, ZHOU De-cheng, YAN Zhang-mei, <i>et al.</i> (2822)