

长江三角洲典型地区农田土壤中多氯联苯残留状况

安琼, 董元华, 王辉, 陈芳, 张劲强

(中国科学院南京土壤研究所, 南京 210008)

摘要: 选择地处长江三角洲的苏南某市为试区, 对该市农田土壤中 18 种 PCBs 同系物的残留量进行了调研, 以揭示非污染区农田土壤中 PCBs 的残留现状, 以及各种同系物在农田土壤中的分布特征. 结果表明: PCBs 残留总量介于数十至数千 $\text{ng} \cdot \text{kg}^{-1}$ 水平, 除 PCB₇₇ 未检出外, 其它 17 种 PCBs 同系物有不同程度地检出, 残留量及检出率最高的分别是 PCB₁₃₈ 和 PCB₁₈₀. 土壤的不同利用方式对 PCBs 残留量有一定影响, 水稻土中 PCBs 残留量最高, 传统菜地中 PCBs 残留量最低. 不同利用方式土壤中同系物残留的分布状况具有不同的特征, 而同系物的分布特征从一定程度上能反映污染物的来源: 稻土中 PCBs 主要来源于灌溉水, 而传统蔬菜地 PCBs 主要来源为大气降尘, 大棚土壤中 PCBs 则主要来自于农用化学品.

关键词: 农田土壤; 多氯联苯; 残留量; 分布; 同系物

中图分类号: X53 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2006)03-0528-05

Residues of PCBs in Agricultural Fields in the Yangtze Delta, China

AN Qiong, DONG Yuan-hua, WANG Hui, CENG Fang, ZHANG Jin-qiang

(Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China)

Abstract: Residues of 18 congeners of PCBs in agricultural fields located at the Yangtze Delta were investigated. The results show that residues of $\sum$ PCBs ranged from tens to thousands $\text{ng} \cdot \text{kg}^{-1}$. Except PCB₇₇, all other PCB congeners were detected at different residue level. PCB₁₃₈ showed the highest residue, and PCB₁₈₀ had the highest occurrence. Soil utilization had some influence on $\sum$ PCBs. The order of residue level in different utilization listed as follows: paddy soil > vegetable soil > green house soil > traditional kailiyard soil. Distribution character of PCB congeners may reflect the source of pollutants, namely PCBs in paddy soil resulted from irrigation water, PCBs in kailiyard soil came from atmosphere deposition and PCBs in green house soil originated from agrochemical utilization.

Key words: agricultural soil; PCB; residue; distribution; congener

多氯联苯 (PCBs) 属于的持久性有机污染物 (POPs), 鉴于 POPs 的 5 种特征: 持久性, 抗生物降解性, 脂肪溶性, 明显的生物毒性, 并可在环境中以各种形式进行长距离传播^[1], 特别是由于其亲脂性和抵抗生物降解性, 在环境中长期滞留, 威胁着人类和野生动物的健康, 成为公众最为关注的全球性污染物^[2]. 有关 PCBs 在沉积物中残留的报道, 以水体底泥的资料较多^[3~6], 也有工业区及公园土壤的报道^[7]. 涉及 PCBs 同系物在农田土壤中的残留及分布状况的研究报告鲜见报道.

PCBs 已有 70 余年的生产历史, 全球总产量约 1.3×10^6 t, 86% 作为变压器油、传热剂、溶剂油等用于北半球温带的工业区^[8], 其中极少部分通过原始扩散或空气-地表交换以及长程大气传输 (Long-range atmospheric transport, LRAT) 而迁移至其它地区, 绝大部分维持在北半球温带地区. 土壤可固定 PCBs, 尤其是土壤的深翻细作、生物扰动, 将部分限制性 PCBs 反复进行空气-土壤交换. 因此, 研究人员希望预知 PCBs 环境归趋, 就必须更好地研究 PCBs

在非污染环境中分布状况, PCBs 是否已使非污染环境受到较大的影响等.

本研究通过对非污染区农田土壤中 PCBs 残留状况的调查, 在中等尺度范围内了解非污染区农田中 PCBs 的残留现状及典型同系物的分布特征, 侧重于探讨影响 PCBs 在农田土壤残留因素.

1 材料与方法

1.1 供试土样

选择地处长江三角洲的苏南某市 (东经 $121^{\circ}02' \sim 121^{\circ}17'$, 北纬 $31^{\circ}25' \sim 31^{\circ}42'$) 为试验区, 该市自 20 世纪以来, 一直是重要的水稻和棉花生产区, 农药用量较大, 耕地土壤中有机氯农药 ($\sum$ OCP) 残留量介于 $23.2 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1} \sim 1126.7 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 之间, 均

收稿日期: 2005-03-17; 修订日期: 2005-05-17

基金项目: 国家重点基础研究发展规划 (973) 项目 (2002CB410805);
中国科学院知识创新工程方向性项目 (KZCX3-SW-427);
江苏省环保科技项目 (2004020, 2002012)

作者简介: 安琼 (1955~), 女, 副研究员, 主要从事有机污染物的土壤环境生态学研究, E-mail: qan@issas.ac.cn

值为 $174.4 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 残留的主要组分为 p, p' -DDE 和 p, p' -DDT, 占 $\sum \text{OCP}$ 的 82% 以上^[9], 近年来中小型化工企业发展迅速。

以网格法在试区农田土壤范围内均匀布点为采样点, 并用 GPS 定位。采得土样 34 个, 其中大棚菜地土壤样 5 个, 蔬菜基地土壤样 6 个, 传统菜地土壤样 12 个; 网格中无菜地者取水稻土, 共 11 个。多点 (6~10 点) 采集耕层 (0~20 cm) 土壤, 混匀, 置入布质土样袋。土样风干, 磨碎, 过 60 目筛, 收集入广口瓶中待用。

1.2 试验材料

苯、正己烷及丙酮 (AR), 均在配有分馏柱的全玻璃装置中重蒸, 馏出液收集入棕色玻璃瓶中待用; 硅胶 (色层用, 100~200 目), 130 °C 烘 8 h, 冷至室温, 置于玻璃瓶中加水 3% 摇匀, 脱活, 密封放置过夜, 备用, 一周内有效。

1.3 标准物

本研究选择的 18 种 PCBs 同系物中含 3 个氯原子的 1 种, 含 4 个氯原子的 5 种, 5 个氯原子的 5 种, 6 个氯原子的 4 种, 7 个氯原子的 2 种, 8 个氯原子的 1 种, 按 IUPAC 命名分别为 PCB₂₈, PCB₅₂, PCB₇₀, PCB₇₄, PCB₆₆, PCB₇₇, PCB₈₇, PCB₉₉, PCB₁₀₁, PCB₁₁₈, PCB₁₂₆, PCB₁₅₃, PCB₁₄₁, PCB₁₃₈, PCB₁₆₇, PCB₁₈₅, PCB₁₈₀, PCB₁₉₄。标准物购于 ChemSevic 公司。准确称取各种标准物分别先用少量重蒸苯溶解, 再以正己烷配制浓度各约为 $2000 \mu\text{g} \cdot \text{mL}^{-1}$ 的标准储备液, 取各种储备液适量, 以正己烷稀释成混合标准母液, 取混合标准母液以正己烷逐步稀释, 配制校正曲线工作液, 其浓度范围为 $0.5 \sim 100.0 \text{ ng} \cdot \text{mL}^{-1}$ 。

1.4 试验仪器

Agilent6890N 气相色谱仪, 配双柱-双微池电子俘获检测器 (GC/μECD) 系统, 7683 自动进样器和色谱工作站。双柱为: ①毛细管柱 DB-5, 内径 0.32 mm, 长 30 m; ②毛细管柱 DB-1701, 内径 0.32 mm, 长 30 m, 柱 ①和 ②通过 Y 型管与分流/不分流进样口连接。气相色谱仪在样品测试前, 进行必要的校准、核对和条件化, 并且需进同一浓度标样 5~7 次, 直到测定结果的 $\text{RSD} < 5\%$, 始进行样品测试, 以确保色谱仪的准确性。

1.5 方法

准确称取待测土样 20.0 g, 置入索氏提取器中, 以体积分数 1:1 的正己烷/丙酮 60 mL 浸泡过夜, 然后水浴 65 °C 提取 6 h, 提取液旋转浓缩至约 2 mL, 加

正己烷 10 mL 进行溶剂替换, 进一步浓缩至约 2 mL, 为上柱液, 待硅胶柱分离。配有活塞的玻璃层析柱 (8 mm × 300 mm), 底部置少许脱脂棉, 加入 15 mL 正己烷, 再依次填入 2 g 无水硫酸钠, 3 g 脱活硅胶, 2 g 无水硫酸钠, 敲实柱体排出气泡, 放出洗柱正己烷, 待液面降至无水硫酸钠刚要露出时, 将上柱液转入柱中, 用 1 mL × 3 正己烷洗涤容器, 使转移完全, 控制流出速度为约为 $1 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$, 加入 16 mL 正己烷为洗脱液, 收集洗脱液, 浓缩至约 2 mL, 以 N_2 吹干, 准确加入 1 mL 正己烷, 在涡旋器涡旋 1 min, 为待测液, 供 GC 测定。

本方法对所选择的 18 种 PCBs 同系物的回收率范围为: 84.1%~97.8%, 最低检测限 (DML) 范围为: $0.3 \sim 2.3 \text{ ng} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

1.6 色谱分析条件

色谱工作条件: 载气 He , 流速 $1.5 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$, 进样口温 240 °C; 检测器温 300 °C, 辅助气高纯氮气, 流速 $60 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$; 柱温 140 °C, 保持 2 min, 以 $2.5 \text{ }^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 的速度升温至 250 °C, 再以 $15 \text{ }^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 的速度升温至 275 °C 保持 7 min; 进样量 3 μL。PCBs 同系物在 2 根毛细管色谱柱上具有不同的保留时间, 而且出峰顺序亦有不同, 只有在 2 根柱上保留时间与标准样都完全吻合的组分才可确认为 PCBs。样品的定量可选择待测组分在 1 根柱上的响应值以外标法定量。

2 结果与讨论

2.1 试区农田土壤 PCBs 残留一般状况

试区农田所有耕层土壤样品中, 除未检出 PCB₇₇ 外, 其它 17 种 PCBs 同系物有不同程度地检出 (表 1), 残留量均值较高的几种同系物依次是: PCB₁₃₈ > PCB₁₂₆ > PCB₁₀₁ > PCB₁₁₈ > PCB₁₅₃; 检出率较高的几种同系物依次是: PCB₁₈₀ > PCB₁₃₈ > PCB₁₈₅ > PCB₁₅₃; 检出率最低是 PCB₇₇, 其次是 PCB₁₆₇, 其余同系物的检出率约在 30% 左右。PCBs 同系物中含氯原子数越多, 其蒸气压和水溶性越小, 而亲脂性越高, 在土壤中的积累和在食物链中的传递富集性就越突出, 当然, 通过大气长途传递的趋势就减弱。似乎本试区土壤中低氯取代物检出率较低, 但检出量中等, 高氯取代物反之, 检出率高, 检出量低。Gawlik 等人曾报道^[10] 过在中国长江下游底泥中检出 PCB₂₈ (0.11 ± 0.01) $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$, PCB₅₂ (0.09 ± 0.003) $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$, PCB₁₀₁ (0.07 ± 0.003) $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$,

PCB₁₃₈ (0.06 ± 0.003) $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$, PCB₁₅₃ (0.06 ± 0.003) $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 与本研究所得结果相比, 就几何均值而言, 除 PCB₂₈ 残留量相近外, 试区农田土壤中 PCBs 残留量比长江底泥中的相应值略高。

表 1 试区农田土壤中 PCBs 残留状况/ $\text{ng} \cdot \text{kg}^{-1}$

Table 1 Residues of 18 congeners in agricultural soils of test area/ $\text{ng} \cdot \text{kg}^{-1}$

同系物	试区($n=34$)			
	几何均值	范围	标准差	检出率/%
PCB ₂₈	135.1	ND~ 275.9	67.8	29.4
PCB ₅₂	110.9	ND~ 358.1	65.0	26.5
PCB ₆₆	190.3	ND~ 477.3	102.1	29.4
PCB ₇₀	96.8	ND~ 173.0	51.2	23.5
PCB ₇₄	172.0	ND~ 261.7	83.2	29.4
PCB ₇₇	ND	ND	ND	0.0
PCB ₈₇	55.0	ND~ 137.4	32.6	32.4
PCB ₉₉	109.5	ND~ 194.5	58.0	35.3
PCB ₁₀₁	296.2	ND~ 1455.7	290.8	35.3
PCB ₁₁₈	253.6	ND~ 924.1	182.5	35.3
PCB ₁₂₆	925.6	ND~ 3790.7	651.3	26.5
PCB ₁₃₈	249.1	ND~ 1305.8	322.8	85.3
PCB ₁₄₁	54.3	ND~ 105.7	26.4	20.6
PCB ₁₅₃	217.0	ND~ 1280.1	219.4	44.1
PCB ₁₆₇	123.7	ND~ 226.8	35.9	5.9
PCB ₁₈₀	63.6	ND~ 226.9	64.2	97.1
PCB ₁₈₅	89.4	ND~ 354.7	68.5	64.7
PCB ₁₉₄	30.5	ND~ 74.2	20.2	47.1

Falandysz 等人^[11]介绍过在波兰 Katowice 土壤中主要有机污染物是 PCBs, 其平均残留浓度为(380 ± 300) $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$; Manz 等人^[12]对德国农业土壤中 PCBs 残留状况研究的结果表明: PCB₂₈、PCB₅₂、PCB₁₀₁、PCB₁₃₈和 PCB₁₈₀5 种同系物残留总量范围为 $0.95 \sim 3.84 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$; 英国的农业土壤中的 PCBs 残留水平范围是 $1.7 \sim 1199 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$, 平均值约为 $6.5 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$; Sanger1999 年也曾报道过^[13], 美国南加州农业土壤中 PCBs 的残留量为 $4.6 \sim 8.2 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$. 本试区土壤中 PCBs 残留量低于上述结果, 也远低于荷兰农业土壤 PCBs 容许含量的标准值 $20 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$. 此外, 造成试区农田土壤中 PCBs 残留量和检出率都较低的根本原因是: 中国作为一农业国, 历史上曾大量使用有机氯农药, 而 PCBs 不仅使用量少, 使用时间短, 而且使用区域也十分有限^[14]. 试区农田土壤中持久性有机氯污染物主要是有机氯农药 DDTs, 其检出率为 100%, 与 DDTs 相比, PCBs 残留量低了近 3 个数量级. 综上所述, 对苏南农田, 或对于非污染区农田土壤而言, POPs 残留物以 DDTs 为主. 国外类似研究结果也证明了这一结论. 如 Grimalt 等人在欧洲的研究结果^[15]表明:

DDTs ($1.7 \sim 13 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) 是土壤中最多的有机污染物, 其次是 PCBs ($0.41 \sim 1.5 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) 和 HCB ($0.15 \sim 0.91 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$), DDTs 比 PCBs 高出 1 个数量级, 即使是在高山湖泊的沉淀物中, 占优势的有机物污染物也是 DDTs ($3.3 \sim 28 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$), 其次为 PCBs ($2.3 \sim 15 \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$). Negoita 等^[16]就南极站所采集的 11 个土壤样品的研究结果也得到相类似的结论.

2.2 土壤的利用方式对 PCBs 残留的影响及污染来源的分析

土壤的不同利用方式对 $\sum \text{PCBs}$ 有一定影响, 水稻土最高, 依次为蔬菜基地, 大棚蔬菜地, 传统菜地 $\sum \text{PCBs}$ 残留量最低. 水稻土中除 PCB₇₇、PCB₁₂₆ 和 PCB₁₆₇ 3 种同系物未检出外, 其它组分均有不同程度的检出. 大棚土壤正好相反, 含氯原子少的, 蒸气压高, 易通过大气传播的低氯取代 PCBs 同系物完全未检出(表 2), 所检出的多为高氯取代物. 水稻田土壤中 $\sum \text{PCBs}$ 残留量较高的最直接原因可能是由于灌溉水遭受污染所致. 水稻的种植需要大量的灌溉水, 即使灌溉水中含有极微量的 PCBs, 也可因大量水的利用而带来比旱地土壤更多的 PCBs. 据了解, 长江三角洲局部地表水中曾检出微量的 PCBs, 可能来源于化工厂废弃物, 或所谓的清洗厂(清洗化工品贮存罐、桶等容器)的清洗废液. 假定 $\sum \text{PCB}$ 残留量最低的传统菜地土壤中 $\sum \text{PCB}$ 残留完全来自大气降尘(忽略少量灌溉水的贡献), 则水稻土中 $\sum \text{PCB}$ 来源于灌溉水的份额为:

$$a = \frac{C_p - C_l}{C_p} \times 100\%$$

式中, a 为灌溉水的 $\sum \text{PCB}$ 份额

C_p 为水稻田土壤中 PCBs 残留总量

C_l 为传统菜地土壤中 PCBs 残留总量

据上式计算, 试区水稻田 PCBs 来自灌溉水份额为 66.2%. 由于大棚和蔬菜基地上农用化学品的使用量远远高于传统菜地, 因而可推测: 除大气降尘和灌溉水的带入外, 农用化学品(添加剂、代谢产物或杂质)也可能是土壤 PCBs 重要的提供者. 如此, 不难解释蔬菜基地土壤中 PCBs 残留量比传统菜地高的现象, 也可以说明大棚菜地土壤中 PCBs 以不易通过大气传播的高氯取代同系物为主的残留物分布现状.

以残留量和检出率较高的几种 PCBs 同系物的残留量在 PCBs 残留总量中所占百分比代表该同系

物在 PCBs 残留中分布状况, 结果表明土壤的不同利用方式对 PCBs 同系物在土壤中的分布有明显影响(图 1). 在传统菜地土壤中分布最为广泛是 PCB₁₈₅, 蔬菜基地为 PCB₁₃₈, 大棚菜地为 PCB₁₃₈, 与蔬菜地不同的是水稻土中各种同系物分布较为均

衡. PCBs 在不同利用方式土壤中分布的差异主要因耕种和管理措施的不同, 带入的污染物不同. 因此有理由认为水稻与蔬菜地土壤中的 PCBs 污染物来源不同, 水稻土中 PCBs 主要来源于灌溉水, 而蔬菜地 PCBs 主要来源为大气降尘, 大棚土壤中 PCBs 则主

表 2 不同利用方式农田土壤中 PCBs 残留状况/ $\text{ng}\cdot\text{kg}^{-1}$

同系物	传统菜地($n=12$)	蔬菜基地($n=6$)	大棚($n=5$)	水稻田($n=11$)
PCB ₂₈	29.0±77.7	ND	ND	73.5±81.4
PCB ₅₂	ND	ND	ND	90.8±99.7
PCB ₆₆	3.4±12.6	ND	ND	168.7±134.7
PCB ₇₀	ND	ND	ND	88.0±63.7
PCB ₇₄	ND	ND	ND	155.6±88.1
PCB ₇₇	ND	ND	ND	ND
PCB ₈₇	14.3±38.4	ND	ND	41.8±33.2
PCB ₉₉	14.5±39.1	ND	ND	100.9±62.9
PCB ₁₀₁	5.7±17.7	7.5±21.3	ND	337.2±490.9
PCB ₁₁₈	8.4±31.4	163.7±319.7	ND	170.0±175.8
PCB ₁₂₆	136.0±442.0	80.0±226.4	562.1±1424.5	ND
PCB ₁₃₈	184.6±315.4	486.9±529.2	174.5±110.5	160.6±103.4
PCB ₁₄₁	ND	ND	ND	39.5±38.5
PCB ₁₅₃	10.7±31.8	228.4±444.5	ND	116.2±133.7
PCB ₁₆₇	1.5±5.5	28.4±80.2	ND	ND
PCB ₁₈₀	61.4±58.8	104.5±94.3	51.8±36.8	38.3±48.8
PCB ₁₈₅	64.5±41.1	58.1±56.5	114.2±124.7	38.5±45.3
PCB ₁₉₄	18.8±24.9	15.2±15.0	16.6±20.7	17.2±19.2
∑PCBs	553.5	1 172.8	919.2	1 636.8

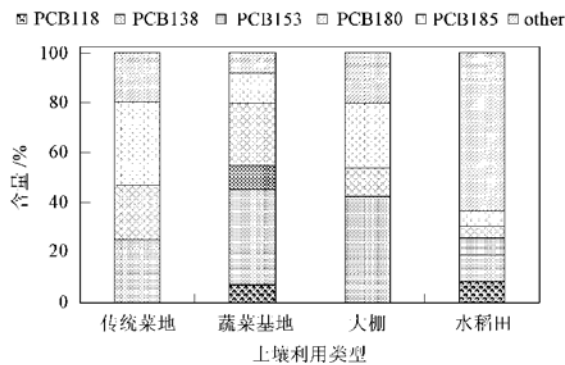


图 1 不同利用土壤中典型同系物的分布状况
Fig. 1 Distribution of predominant congeners in different application soils

要来自于农用化学品.

Backe^[17]等人曾报道在瑞典南部不同采样区土壤中 PCBs 的浓度表现出很大的变异, PCBs 土壤浓度范围为 2.3~332 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 尽管 PCBs 的浓度并未显示出与土壤质地明显的相关性, 但不同样点土壤中 PCBs 同系物组成不同, 即 PCBs 同系物具有明显地域特征. 值得注意的是: 在本试区, 几乎所有利用

类型土壤中 PCB₁₃₈的含量在 PCBs 总含量中所占份额均是十分突出的. 这种现象与 2000 年在试区附近湿地鼋头渚所研究的结果^[18]有明显不同, 该研究主要探讨在鼋头渚湿地繁殖的夜鹭卵中 PCBs 残留物分布状况, 其结果表明在鼋头渚地区夜鹭卵中残留量最高的是 PCB₁₁₈, 占 PCBs 残留总量的 30% 左右, 而 PCB₁₃₈的残留量相当低, 仅为 PCB₁₁₈的几分之一, 且检出率不到 50%. 从地域及环境状况而言, 可以认为本试区与鼋头渚的污染物基本是同源性的, 且 PCBs 同系物具有相同的地域特征, 因此有理由怀疑, 鼋头渚夜鹭卵中的 PCBs 是否来自产卵期的觅食地.

3 结论

(1) 在长江三角洲苏南试区农田土壤中普遍检出 PCBs 残留物, 其残留量范围在数十至数千 $\text{ng}\cdot\text{kg}^{-1}$ 的水平, 远低于欧、美农田土壤中 PCBs 的含量. 残留量较高的同系物依次是: PCB₁₃₈> PCB₁₂₆> PCB₁₀₁> PCB₁₁₈> PCB₁₅₃; 检出率较高是: PCB₁₈₀> PCB₁₃₈> PCB₁₈₅> PCB₁₅₃; 检出率最低是 PCB₇₇,

其次是 PCB₁₆₇, 其余同系物的检出率约在 30% 左右。

(2) 土壤的不同利用方式对多氯联苯残留量有明显影响; 水稻田土壤中 PCBs 残留量最高(1 636.8 ng·kg⁻¹), 其次为蔬菜基地和大棚菜地(分别为 1 172.8 ng·kg⁻¹和 919.2 ng·kg⁻¹), 传统菜地最低(553.5 ng·kg⁻¹)。水稻土中能检出绝大多数同系物; 大棚土壤中所检出的 PCBs 同系物多为高氯取代物。不同利用方式土壤中同系物分布特征的不同, 反映了耕作和管理措施的不同, PCBs 进入土壤的途径不同。水稻土中 PCBs 主要来源于灌溉水(灌溉水对土壤 PCBs 的贡献高达 66.2%), 而蔬菜地 PCBs 主要来源为大气降尘, 大棚土壤中 PCBs 则主要来自于农用化学品。

参考文献:

- [1] Meginn A P. POPs Culture[J]. World Watch, 2000, Mar-Apr: 26~ 36.
- [2] Colborn T, Smolen M J, Rolland R. Environmental neurotoxic effects: The search for new protocols in functional teratology[J]. Toxicol. Ind. Health, 1998, **14**: 9~ 13.
- [3] Vigano L, Arillo A, Aurigi S, *et al.* Concentrations of PCBs, DDTs, and TCDD Equivalents in Cyprinids of the Middle Po River, Italy[J]. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 2000, **38**: 209~ 216.
- [4] Menone M L, Aizpún de Moreno J E, Moreno V J *et al.* Organochlorine pesticides and PCBs in a southern atlantic coastal lagoon watershed, Argentina[J]. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 2001, **40**: 355~ 362.
- [5] Wilson S C, Alcock R E, Sewart A P, *et al.* Persistence of organic contaminants in sewage sludge-amended soil: a field experiment[J]. Journal of Environmental Quality, 1997, **26** (6): 1467~ 1477.
- [6] Yelena Sapozhnikova, Ola Bawardi, Daniel Schlenk. Pesticides and PCBs in sediments and fish from the Salton Sea California, USA[J]. Chemosphere, 2004, **55**: 797~ 809.
- [7] Motelay-Massei A., Ollivon D, Garban B, *et al.* Distribution and spatial trends of PAHs and PCBs in soils in the Seine River basin, France[J]. Chemosphere, 2004, **55**: 555~ 565.
- [8] Ockende W A, Breivik K, Meijer S N, *et al.* The global recycling of persistent organic pollutants is strongly retarded by soils[J]. Environ. Pollut., 2003, **121**(1): 75~ 80.
- [9] 安琼, 董元华, 王辉, 等. 苏南农田土壤有机氯农药残留状况[J]. 土壤学报, 2004, **41**(3): 414~ 419.
- [10] Gawlik B. M., Martens D, Henkelmann B, *et al.* River sediment (S-37) —a new analytical quality control material ensuring comparability of chlorinated hydrocarbon analysis during an international environmental study in China[J]. Fresenius. J. Anal. Chem., 2000, **367**: 232~ 240.
- [11] Falandysz J, Brudnowska B, Kawano M, *et al.* Polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides in soils from the southern part of Poland[J]. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 2001, **40**: 173~ 178.
- [12] Manz M, Wenzel K D, Dietze U, *et al.* Persistent organic pollutants in agricultural soils of central Germany[J]. The Science of the Total Environment, 2001, **277**: 187~ 198.
- [13] Sanger D M, Holland A F, Scott G I. Tidal creek and salt marsh sediments in south Carolina coastal estuaries: II. distribution of organic contaminants[J]. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 1999, **37**: 458~ 471.
- [14] 储少岗, 徐晓白, 童逸平. 多氯联苯在典型污染地区环境中的分布及其环境行为[J]. 环境科学学报, 1995, **15**(4): 423~ 431.
- [15] Grimalt J O, Van Drooge B L, Ribes A, *et al.* Persistent organochlorine compounds in soils and sediments of European high altitude mountain lakes[J]. Chemosphere, 2004, **54**(10): 1549~ 1561.
- [16] Negoita T G, Covaci A, Gheorghe A, *et al.* Distribution of polychlorinated biphenyls (PCBs) and organochlorine pesticides in soils from the East Antarctic coast[J]. J. Environ. Monit., 2003, **5**(2): 281~ 286.
- [17] Backe C, Cousins I T, Larsson P. PCB in soils and estimated soil-air exchange fluxes of selected PCB congeners in the south of Sweden[J]. Environ. Pollut., 2004, **128** (1-2): 59~ 72.
- [18] 安琼, 董元华, 王辉, 等. 不同年龄夜鹭卵中多氯联苯污染状况及分布特征[J]. 环境科学, 2004, **25**(2): 157~ 161.