红枫湖钻孔沉积物中滴滴涕的沉积记录

郭建阳[1],吴丰昌[2*],廖海清[2],邓秋静[1],黎文[1],张润宇[1],赵晓丽[2]

(1. 中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室,贵阳 550002; 2. 中国环境科学研究院湖泊生态环境研究中心国家环境保护湖泊污染国家重点实验室,北京 100012)

摘要:采用 GC/MS 方法分析了红枫湖钻孔沉积物中滴滴涕的垂直分布状况,并对其来源和生态风险进行了分析和评估. 红枫湖钻孔沉积物中滴滴涕的含量介于 7.6 ~ 23.7ng/g 之间,且从底层至表层基本上呈下降的趋势. 其中,1981 ~ 1983 年间有一个急剧下降的过程,随后基本上呈缓慢下降的趋势. 沉积物中滴滴涕的组成以 *p*,*p*′-DDTs(*p*,*p*′-DDT、*p*,*p*′-DDE 和 *p*,*p*′-DDD 的总和)为主,*p*,*p*′-DDTs 与 *o*,*p*′-DDTs(*o*,*p*′-DDT、*o*,*p*′-DDE 和 *o*,*p*′-DDD 总和)的比值在 5.1 ~ 8.4 之间,说明沉积物中的滴滴涕主要来源于农药滴滴涕的残留. 又因为沉积物中残留的滴滴涕是以它的代谢产物为主,DDT/(DDD + DDE)的比值为 0.31 ~ 0.84,所以沉积物中的滴滴涕主要源于历史的残留. 此外,DDT/(DDD + DDE)和 DDE/DDD 比值的垂直变化特征显示,尽管我国 1983 年就禁止了滴滴涕在农业上的使用,但直至 1990 年前后,红枫湖流域内仍存在滴滴涕使用的可能. 风险评价的结果显示,红枫湖表层沉积物中 DDE、DDD、DDT 和 DDTs 的含量均介于 ERL 和 ERM 值之间,可能造成潜在的生态风险,因此红枫湖沉积物中滴滴涕的污染仍值得密切关注.

关键词:红枫湖;沉积柱;滴滴涕;来源;风险评价

中图分类号:X524 **文献标识码**:A **文章编号**:0250-3301(2010)06-1589-05

Sediment Record of DDTs in Sediment Core from Hongfeng Reservoir

GUO Jian-yang[1], WU Feng-chang[2], LIAO Hai-qing[2], DENG Qiu-jing[1], LI Wei[1], ZHANG Run-yu[1], ZHAO Xiao-li[2]

(1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China; 2. State Environmental Protection Key Laboratory for Lake Pollution Control, Research Center of Lake Eco-Environment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: In order to reconstruct the chronology of 2,2-his(4-Chlorophenyl)-1,1,1-trichloroethane (DDT) input into the Hongfeng reservoir and assess the pollution issues, the temporal distribution of DDT in sediment core from Hongfeng reservoir was measured using GC/MS method, and the possible sources and potential risk assessment also had been identified. The DDTs (sum of *p*,*p*′- and *o*,*p*′-DDT, DDE and DDD) in sediment core were ranged from 7.6 to 23.7ng/g, and roughly, ever decreased from the bottom to the surface sediment. In detail, a sharp decline of DDTs concentration in sediment was found from 1981 to 1983, followed by a tardy decrease trend to the present. The DDTs in sediment were mainly composed of *p*,*p*′-DDTs (sum of *p*,*p*′-DDT, DDE and DDD). The ratio of *p*,*p*′-DDTs to *o*,*p*′-DDTs (sum of *o*,*p*′-DDT, DDE and DDD) ranged from 5.1 to 8.4, which suggests that the DDTs in sediment were chiefly originated from the technical DDT. Meanwhile, the DDTs in sediments were dominated by the metabolites of DDT (DDD and DDE) and the ratio of DDT/(DDD + DDE) were between 0.31and 0.84, indicating the DDTs in sediment were mostly stemmed from the historical usage. Besides, the vertical profile of the ratios of DDT/(DDD + DDE) and DDE/DDD indicate that possible usage of technical DDT still occurred in the drainage area of Hongfeng reservoir around 1990, although the usage of technical DDT in agriculture has been banned in 1983. The residue levels of DDE, DDD, DDT, and DDTs in surface sediment from Hongfeng reservoir were all between ERL and ERM, suggesting potential risk could occur, and the contamination of DDT in Hongfeng reservoir deserving more concerns.

Key words: Hongfeng reservoir; sediment core; DDTs; sources; risk assessment

滴滴涕(DDT)从 1945 年开始大规模商业使用以来,在提高农业生产和解决全球性的温饱问题以及在发达国家、许多亚洲和拉丁美洲国家根除疟疾的过程中发挥了巨大的作用. 我国是一个农业大国,DDT 的使用虽然较晚,但用量很大. 截止到 1983 年,我国累积使用 DDT 达 40 多万 t,占世界总用量的 33%[1]. 虽然 1983 年我国就禁止 DDT 在农业上的使用,但仍保留了 DDT 在三氯杀螨醇的生产、预防疟疾和防污漆等方面的使用. DDT 是一种典型的持久性有机污染物,具有生物累积性,可以通过食物链的传递和生物放大作用对生态环境和人体健康造成广泛和持久的影响.

收稿日期:2009-07-26;修订日期:2009-09-10

基金项目:国家重点基础研究发展规划(973)项目(2008CB418200);贵州省自然科学基金项目(黔科合 J 字[2007]2029 号)

作者简介:郭建阳(1972 ~),男,博士,助理研究员,主要研究方向为环境地球化学,E-mail:guojianyang@mails.gyig.ac.cn

* 通讯联系人,E-mail:wufengchang@vip.skleg.cn

目前我国对河流湖泊沉积物中的 DDT 已经做了大量的工作. 如太湖[2]、洪湖[3]、海河[4]和珠江[5]等的沉积物中 DDT 做了细致的研究工作,另外对河口和海湾,如大辽河河口[6]、闽江口[7,8]、长江口[9]、珠江口[10]和大亚湾[11]等也做了广泛而深入的研究. 从研究结果来看,我国目前 DDT 的污染状况仍然不容乐观,尤其是在沿海一带. Yuan 等[12]发现九龙江和闽江河口的沉积物中仍有较高的 DDT 残留,珠江河口沉积物中 DDT 的含量也普遍较高[13]. 此外,海河表面沉积物中 DDT 的含量也很高[14],这都说明我国目前 DDT 的污染仍比较严重.

红枫湖(E106°19′~106°28′,N26°26′~26°35′)是贵州省最大的人工湖之一,平均水深 10.5 m,湖面面积 57.2 km^2,总库容 6 亿 m^3. 红枫湖是贵阳市最重要的三大饮用水源地之一,在贵阳市的城市供水系统中发挥着重要的作用. 但由于周边工厂林立,各种污染严重并相互叠加,水资源的保护和管理显得尤为迫切. 目前红枫湖 DDT 污染相关的研究工作还鲜见报道,本研究应用 GC-MS 分析方法,以 ^{137}Cs 同位素定年,目的是为了重新构建红枫湖 DDT 的污染历史,评估红枫湖 DDT 的污染现状,以期为水资源的保护和管理提供科学的依据.

1 材料与方法

1.1 样品的采集

样品于 2006 年 5 月用自重式采样器进行采集,具体采样点如图 1. 沉积物现场用不锈钢刀进行切割,然后装入密封袋,运回实验室后,于 -20℃ 保存至分析.

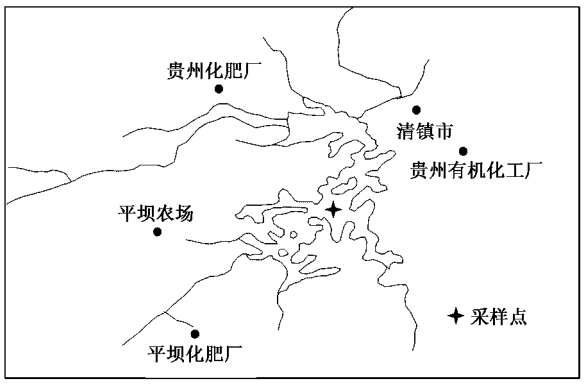

图 1 采样点示意

Fig. 1 Map of sampling site

1.2 试剂和仪器

仪器:DDT 测定使用美国惠普公司生产的气相色谱-质谱联用仪(HP Agilent 6890-5973 GC-MSD),总有机碳(TOC)测定采用德国 Vario EL III 元素分析仪进行分析.

试剂:正己烷、二氯甲烷、甲醇和丙酮等有机溶剂均为分析纯,并经二次蒸馏后使用. 无水 Na_2SO_4 为分析纯. 硅胶(100~200 目)和氧化铝(80~100 目)均为层析用,使用前均用甲醇和二氯甲烷分别抽提 48 h. 有机氯农药标准物质购自 Supelco (Bellefonte, PA, USA),多氯联苯标样以及 *o*,*p*′-DDTs 购自 Accustandards (New Haven, CT, USA). 所有玻璃器皿均用铬酸洗液清洗后,在烘箱中 120℃ 烘干,然后在马弗炉中经 450℃ 焙烧. 使用前用溶剂淋洗.

1.3 样品预处理

样品经冷冻干燥、研磨、过筛,于密封袋中 4℃ 于冰箱中保存备用. 准确称取 5~10 g 样品加入回收率指示物 PCB-30、PCB-65 和 PCB-204 后用 200 mL 正己烷/丙酮(1∶1,体积比)混合溶剂索氏抽提 48 h. 抽提液浓缩并置换为正己烷后,过氧化铝/硅胶层析柱(1∶2)进行分离纯化. DDTs 组分用 70 mL 二氯甲烷/正己烷(3∶7,体积比)的混合溶剂淋洗,淋洗液浓缩并置换溶剂为正己烷后定容为 200 μL. 加入内标 PCB-82 后进行仪器分析.

1.4 仪器分析条件

滴滴涕用美国 HP Agilent 6890-5973 GC-MSD 进行测定,采用内标法和多点校正曲线进行定量分析. 色谱条件:色谱柱为 DB-ms(60 m × 250 μm × 0.25 μm);升温程序:80℃ 保持 1 min,然后以 10 ℃/min 升至 180℃,2 ℃/min 升至 220℃,最后以 8 ℃/min 升至 290℃,保持 30 min. 进样口温度为 280℃;载气为高纯氮气,流量为 1.5 mL/min;采用分流进样,进样量为 1 μL.

1.5 质量保证与质量控制

用方法空白、空白加标、基质加标、基质加标平行样进行质量控制. 空白样品中没有 DDTs(包括 *o*,*p*′-DDE、*o*, *p*′-DDD、*o*, *p*′-DDT、*p*,*p*′-DDE、*p*,*p*′-DDE和 *p*,*p*′-DDT)的检出. 空白加标中 DDTs 的回收率为(82.1 ± 0.8)% ~ (114.6 ± 2.3)%. 基质加标中 DDTs 的回收率为(90.1 ± 7.4)% ~ (124.2 ± 13.7)%. 平行样的相对标准偏差均低于 10%. 回收率指示物的平均回收率分别为 PCB-30:(83.5 ± 8.5)%、PCB-65:(71.6 ± 8.7)%、PCB-204:(79.0 ± 7.7)%. 检测限定义为信噪比的 3 倍,基于 5 g 沉积物(定容为 200 μL),DDTs 的检测限为 0.02~0.2 ng/g(干重浓度,以下均以干重计). 最后结果经空

白扣除和回收率校正.

1.6　沉积物的年代测定

沉积物采用^{137}Cs 放射性同位素进行定年[15]. ^{137}Cs的放射性比活度是通过 Canberra 公司生产的 S-100 多道分析器和高纯锗井型探测器(GCW3022 H-P Ge)所组成的 γ 谱分析系统直接分析 662keV 处的 γ 射线能谱得到. 标准品由中国科学院原子能研究所提供(Catalog No.: 7137 和 Source No.: 586-26-2).

2　结果与讨论

2.1　红枫湖沉积物中 DDTs 的污染状况

红枫湖沉积柱中 DDTs 的浓度见表 1. 红枫湖沉积物中 DDTs(包括 *p*,*p*′-DDT、*p*,*p*′-DDE、*p*,*p*′-DDD、*o*,*p*′-DDT、*o*,*p*′-DDE 和 *o*,*p*′-DDD)均有检出,其干重含量介于 7.6 ~ 23.7 ng/g之间. 沉积物 TOC 的含量为 2.77% ~ 5.54%,相应总有机碳归一化后的 DDTs 浓度范围为 175.5 ~ 857.4 ng/g.

表 1　红枫湖沉积柱中滴滴涕的浓度/ng · g^{-1}

Table 1　Concentrations of DDTs in sediment core from Hongfeng reservoir/ng · g^{-1}

目标物	0 ~ 2cm	2 ~ 4cm	4 ~ 6cm	6 ~ 8cm	8 ~ 10cm	10 ~ 12cm	12 ~ 14cm	14 ~ 16cm	16 ~ 18cm	18 ~ 20cm
o,*p*′-DDE	0.44	0.31	0.43	0.28	0.68	0.50	0.47	0.21	0.36	0.70
p,*p*′-DDE	2.60	1.85	3.10	1.90	3.63	4.31	3.20	2.24	3.44	5.04
o,*p*′-DDD	0.62	0.54	0.69	0.39	0.83	0.50	0.49	0.40	0.67	1.43
p,*p*′-DDD	2.64	1.95	2.93	1.84	3.55	4.20	3.54	2.71	4.82	7.78
o,*p*′-DDT	0.57	0.41	0.60	0.31	0.61	0.67	0.66	0.46	0.59	0.79
p,*p*′-DDT	3.22	2.59	4.29	3.00	5.18	7.28	4.47	3.97	2.33	7.97
∑ DDTs	10.1	7.60	12.0	7.70	14.5	17.5	12.8	10.0	12.2	23.7

从沉积物中滴滴涕的垂直分布来看(见图 2),从底层至表层,沉积物中总有机碳归一化后的 DDTs 含量基本上呈下降的趋势,但不同时期下降的程度不同. 最底层的沉积物样品对应的时间大约为 1981 年,那时正是我国 DDTs 在农业上的使用高峰期,沉积物中 DDTs 的浓度相对较高,相应有机碳归一化后的含量高达 857.4 ng/g. 从 1983 年开始,我国禁止 DDTs 在农业上的使用,因此,1981 ~ 1983 年,沉积物中 DDTs 的含量呈现一个急剧下降的趋势,此后沉积物中 DDTs 的含量基本上呈现缓慢下降的趋势,这基本上反映了我国不同时期使用 DDTs 的特征.

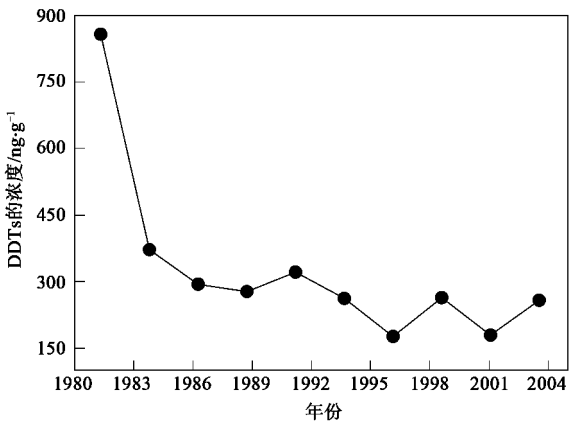

图 2　红枫湖沉积柱中总有机碳归一化后滴滴涕浓度的垂直分布

Fig. 2　Vertical profile of TOC normalized DDTs in sediment core from Hongfeng reservoir

湖泊沉积物中滴滴涕通常有以下 3 个来源:一是过去农业上使用农药滴滴涕的残留;二是部分地区在传染病防治方面使用的滴滴涕;三是近年来使用的杀虫剂三氯杀螨醇中残留的滴滴涕[16~18]. 但不同来源的滴滴涕有不同的特征:农药滴滴涕的组成特征是以 *p*,*p*′-DDT 为主,其中 *p*,*p*′-DDT 和 *o*,*p*′-DDT 的比值约为 5.0[19];而三氯杀螨醇中残留的滴滴涕是以 *o*,*p*′-DDT 为主,其中 *p*,*p*′-DDT 和 *o*,*p*′-DDT 的比值约为 0.15[17]. 从红枫湖沉积物中 DDTs 的组成来看,*p*,*p*′-DDTs(*p*,*p*′-DDT、*p*,*p*′-DDE 和 *p*,*p*′-DDD的总和)和 *o*,*p*′-DDTs(*o*,*p*′-DDT、*o*,*p*′-DDE 和 *o*,*p*′-DDD 总和)的比值在 5.1 ~ 8.4 之间,这说明红枫湖沉积物中 DDTs 主要来源于农药滴滴涕的残留,没有三氯杀螨醇的输入特征. 尽管 DDTs 是持久性有机污染物,但在环境中仍会发生缓慢的降解. 在有氧条件下降解为 DDE,在厌氧条件下则降解为 DDD,DDT 和它的代谢物(DDD 和 DDE)之比值常常用于判断是否有新 DDTs 的输入[20]. 如果 DDT/(DDD + DDE) > 1,说明有新的 DDTs 的输入;如果 DDT/(DDD + DDE) < 1,则沉积物中 DDTs 主要来自过去的输入. 红枫湖沉积物中 DDT/(DDD +

DDE)的比值为 0.31 ~ 0.84(平均值 0.65),这说明红枫湖沉积物中滴滴涕以过去使用的为主,没有新的输入. DDE/DDD 的比值为 0.62 ~ 1.02(平均值 0.88),这说明红枫湖的沉积环境以厌氧环境为主. 从 DDE/DDD 和 DDT/(DDD + DDE)的垂直变化来看(图 3),沉积柱中 DDE/DDD 的比值在 10 ~ 12 cm 的层面上(对应大约 1990 年)存在一个转折点. 在此之前越往下 DDE/DDD 的比值越小,而在此之后 DDE/DDD 的比值基本上在 0.9 ~ 1.0 之间,这预示着 1990 年前后红枫湖输入滴滴涕的差异. 在此之前,向红枫湖输入的滴滴涕含有较多的 DDT 成分,在厌氧性的沉积环境下,输入的 DDT 主要转化为 DDD,使得 DDE/DDD 的比值较小,而且越往下,这个特征越明显. 这说明尽管我国 1983 年就禁止了滴滴涕在农业上的使用,但直至 1990 年前后,红枫湖流域内仍存在滴滴涕使用的可能. 而在此之后,向红枫湖输入的滴滴涕主要是 DDT 的降解产物,滴滴涕主要来源于农田中残留. 这部分滴滴涕由于在土壤中已经大部分降解,含有较多的 DDE 成分,因此 DDE/DDD 的比值也相对较高. DDT/(DDD + DDE)的比值在此之后逐渐下降的趋势也证明了这一点.

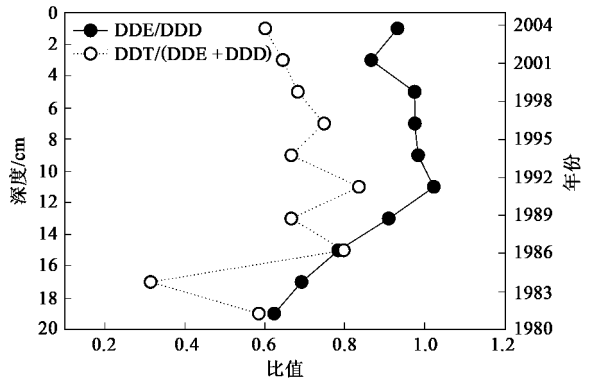

图 3 红枫湖沉积柱中 DDT 组成的垂直变化

Fig. 3 Vertical profile of DDT in sediment core from Hongfeng reservoir

2.2 我国内陆湖泊表层沉积物中 DDTs 含量比较

目前,国内对沉积物中 DDTs 的研究集中在河流、河口和海洋,对内陆湖泊沉积物研究得不多. 从全国范围来看(见表 2),滇池表层沉积物中 DDTs 的含量最高(30.0 ng/g),东北的四海龙湾(26.2 ng/g)和太湖(19.0 ng/g)次之. 红枫湖表层沉积物中 DDTs 的含量也相对较高,略高于巢湖表层沉积物中 DDTs 的含量,但明显高于国内其他湖泊或水库表层沉积物中 DDTs 的含量.

表 2 红枫湖表层沉积物中滴滴涕的含量和国内其他湖泊的比较

Table 2 Comparison of DDTs in surface sediment in Hongfeng reservoir to those of other lake sediment within China

采样时间	湖泊	浓度/ng · g^{-1}	文献
2006-05	红枫湖	10.1	本研究
2004-08	洪湖	4.08	[4]
2006-05	滇池	30.0	未发表
2006-05	洱海	6.26	未发表
2006-05	程海	3.90	未发表
2006-05	太湖	19.0	未发表
2006-05	巢湖	8.82	未发表
2006-10	鄱阳湖	4.04	未发表
2006-10	密云水库	5.48	未发表
2006-10	四海龙湾	26.2	未发表

2.3 红枫湖表层沉积物中 DDT 的生态风险评价

滴滴涕化学性质稳定且具有很强亲脂性,不但在环境中持久存在,而且可以通过食物链富集和传递,最后在人体内长期蓄积,对人体肝脏、中枢神经系统和后代的生长发育产生不良影响[21]. 因此,在 20 世纪 70 年代末至 80 年代初,它们在全球范围内陆续被禁用. 许多研究表明,即便是在大规模禁止使用的几十年后,DDTs 仍长期残留在环境中,而且近年来土地的开发利用和土地使用方式的转变加速了土壤中 DDTs 残留的释放[22]. 因此,它们在环境中的残留及其对人体和生态系统的危害仍不容忽视.

虽然人们在沉积物 DDT 污染的生态风险评价方面做了很多工作,但仍未建立起统一的标准. Long 等[23]通过系统的研究确定了 DDT 的风险低值(effects range low, ERL)和风险中值(effects range median, ERM). 若沉积物中 DDT 的含量小于 ERL,则极少产生负面效应的可能性较小;若沉积物中 DDT 的含量介于两者之间,则偶尔发生负面生态效应;若沉积物中 DDT 的含量大于 ERM,则发生负面

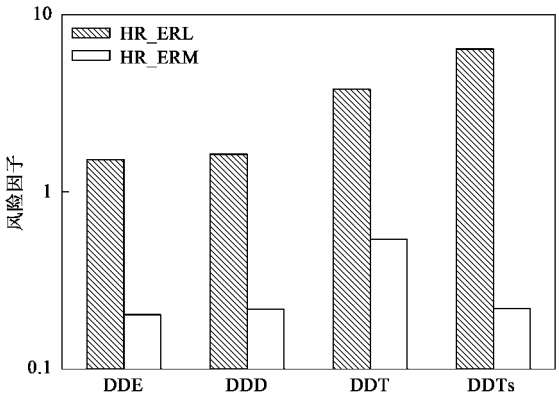

图 4 红枫湖表层沉积物中滴滴涕的生态风险评估

Fig. 4 Risk assessment of DDTs in surface sediment from Hongfeng reservoir

生态效应的可能性较大.借此可以指示沉积物的风险程度.由图 4 可以看出(其中风险因子 HR_ERL 和 HR_ERM 分别为 DDT 或其代谢产物对 ERL 或 ERM 的比值),红枫湖表层沉积物中 DDE、DDD 和 DDT 的残留量均介于 ERL 和 ERM 之间,因此,它们对红枫湖的生态环境可能造成潜在的负面影响.红枫湖沉积物中滴滴涕的生态风险仍然值得关注.

3　结论

(1) DDTs (包括 *p*, *p*′-DDT、*p*, *p*′-DDE、*p*, *p*′-DDD、*o*, *p*′-DDT、*o*, *p*′-DDE 和 *o*, *p*′-DDD)在红枫湖钻孔沉积物中均有检出,其干重含量介于 7.6 ~ 23.7 ng/g之间,相应总有机碳归一化后的 DDTs 浓度范围为 175.5 ~ 857.4 ng/g.

(2)从下层至表层,沉积物中 DDTs 含量基本上呈下降的趋势.但不同时期下降的程度不同.其中,沉积物中 DDTs 的含量在 1981 ~ 1983 年间急剧下降,随后是一个缓慢下降的过程.

(3)沉积物中的 DDTs 以过去使用的农药滴滴涕的残留为主.而 DDE/DDD 和 DDT/(DDD + DDE)的垂直变化说明尽管我国 1983 年就禁止了滴滴涕在农业上的使用,但直至 1990 年前后,红枫湖流域内仍存在滴滴涕使用的可能.

(4)风险评价的结果显示:红枫湖表层沉积物中 DDE、DDD 和 DDT 的残留量均介于 ERL 和 ERM 之间,因此,它们对红枫湖的生态环境可能造成潜在的负面影响.红枫湖沉积物中滴滴涕的生态风险仍然值得关注.

参考文献:

[1] 华小梅,单正军.我国农药的生产,使用状况及其污染环境因子分析[J].环境科学进展,1996,**4**(2):33-45.

[2] 袁旭音,王禹,陈俊,等.太湖沉积物中有机氯农药的残留特征及风险评估[J].环境科学,2003,**24**(1):121-125.

[3] 龚香宜,祁士华,吕春玲,等.湖北省洪湖沉积物中有机氯农药的垂直分布特征[J].环境化学,2006,**25**(4):513-514.

[4] 刘军,干爱华,丁辉,等.海河干流、大沽排污河沉积物中有机氯农药的残留状况[J].环境污染与防治,2006,**28**(3):169-173.

[5] 罗孝俊,陈社军,麦碧娴,等.珠江三角洲河流及南海近海区域表层沉积物中有机氯农药含量及分布[J].环境科学学报,2005,**25**(9):1272-1279.

[6] Tan L, He M, Men B, *et al*. Distribution and sources of organochlorine pesticides in water and sediments from Daliao River estuary of Liaodong Bay, Bohai Sea (China) [J]. Estua Coastal Shelf Sci 2009, **84**(1):119-127.

[7] Zhang Z L, Hong H S, Zhou J L, *et al*. Fate and assessment of persistent organic pollutants in water and sediment from Minjiang River Estuary, Southeast China [J]. Chemosphere 2003, **52**(9):1423-1430.

[8] 张祖麟,洪华生,陈伟琪,等.闽江口水、间隙水和沉积物中有机氯农药的含量[J].环境科学,2003,**24**(1):117-120.

[9] Liu M, Cheng S, Ou D, *et al*. Organochlorine pesticides in surface sediments and suspended particulate matters from the Yangtze estuary, China [J]. Environ Pollut, 2008, **156**(1): 168-173.

[10] 陈伟琪,洪华生,张珞平,等.珠江口表层沉积物和悬浮颗粒物中的持久性有机氯污染物[J].厦门大学学报,2004,**43**(增刊):230-235.

[11] Wang Z, Yan W, Chi J, *et al*. Spatial and vertical distribution of organochlorine pesticides in sediments from Daya Bay, South China [J]. Mar Pollut Bull 2008, **56**(9):1578-1585.

[12] Yuan D, Yang D, Wade T L, *et al*. Status of persistent organic pollutants in the sediment from several estuaries in China [J]. Environ Pollut, 2001, **114**(1):101-111.

[13] Chau K W. Persistent organic pollution characterization of sediments in Pearl River Estuary [J]. Chemosphere, 2006, **64**(9):1545-1549.

[14] Yang R Q, Lu A H, Shi J B, *et al*. The levels and distribution of organochlorine pesticides (OCPs) in sediments from the Haihe River, China [J]. Chemosphere, 2005, **61**(3):347-354.

[15] Wan G J, Chen J A, Wu F C, *et al*. Coupling between ^{210}Pbex and organic matter in sediments of a nutrient-enriched lake: An example from Lake Chenghai, China [J]. Chem Geol, 2005, **224**(2):223-236.

[16] Yang X, Wang S, Bian Y, *et al*. Dicofol application resulted in high DDTs residue in cotton fields from northern Jiangsu province, China [J]. J Hazard Mater, 2008, **150**(1):92-98.

[17] Qiu X, Zhu T, Yao B, *et al*. Contribution of dicofol to the current DDT pollution in China [J]. Environ Sci Technol, 2005, **39**(12):4385-4390.

[18] 安太成,陈嘉鑫,傅家谟,等.珠三角地区 POPs 农药的污染现状及控制对策[J].生态环境,2005,**14**(6):981-986.

[19] Yang R Q, Yao Z W, Jiang G B, *et al*. HCH and DDT residues in mollusks from Chinese Bohai coastal sites [J]. Mar Pollut Bull, 2004, **48**(7-8):795-805.

[20] Doong R A, Sun Y C, Liao P L, *et al*. Distribution and fate of organochlorine pesticide residues in sediments from the selected rivers in Taiwan [J]. Chemosphere, 2002, **48**(2):237-246.

[21] Willett K L, Ulrich E M, Hites R A. Differential toxicity and environmental fates of hexachlorocyclohexane isomers [J]. Environ Sci Technol, 1998, **32**(15):2197-2206.

[22] Fu J M, Mai B X, Sheng G Y, *et al*. Persistent organic pollutants in environment of the Pearl River Delta, China: an overview [J]. Chemosphere, 2003, **52**(9):1411-1422.

[23] Long E R, Macdonald D D, Smith S L, *et al*. Incidence of adverse biological effects within ranges of chemical concentrations in marine and estuarine sediments [J]. Environ Manage, 1995, **19**(1):81-97.