

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第8期

Vol.36 No.8

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

基于16S rRNA 基因测序法分析北京霾污染过程中 PM _{2.5} 和 PM ₁₀ 细菌群落特征	王步英, 郎继东, 张丽娜, 方剑火, 曹晨, 郝吉明, 朱昕, 田埂, 蒋靖坤 (2727)
北京城区冬季降尘微量元素分布特征及来源分析	熊秋林, 赵文吉, 郭道宇, 陈凡涛, 束同同, 郑晓霞, 赵文慧 (2735)
北京市典型餐饮企业油烟中醛酮类化合物污染特征	程婧晨, 崔彤, 何万清, 聂磊, 王军玲, 潘涛 (2743)
基于实际道路交通流信息的北京市机动车排放特征	樊守彬, 田灵娣, 张东旭, 曲松 (2750)
夏季珠江三角洲地区 PM _{2.5} 化学组分特征及其对大气能见度的影响	杨毅红, 瞿群, 刘随心, 李雄, 钟佩仪, 陶俊 (2758)
隧道工人的 PM ₁₀ 职业暴露特征调查分析及其健康风险评价	向华丽, 杨俊, 仇珍珍, 雷万雄, 曾婷婷, 兰志财 (2768)
基于在线监测的江苏省大型固定燃煤源排放清单及其时空分布特征	张英杰, 孔少飞, 汤莉莉, 赵天良, 韩永翔, 于红霞 (2775)
柴达木盆地东部降水氢氧同位素特征与水汽来源	朱建佳, 陈辉, 巩国丽 (2784)
长江口-浙闽沿岸沉积色素的分布特征及其指示意义	李栋, 姚鹏, 赵彬, 王金鹏, 潘慧慧 (2791)
“引江济太”过程中长江-望虞河-贡湖氮、磷输入特征研究	潘晓雪, 马迎群, 秦延文, 邹华 (2800)
重庆市典型城镇区地表径流污染特征	王龙涛, 段丙政, 赵建伟, 华玉妹, 朱端卫 (2809)
调水调沙对黄河下游颗粒有机碳运输的影响	张婷婷, 姚鹏, 王金鹏, 潘慧慧, 高立蒙, 赵彬, 李栋 (2817)
青藏高原冰川区可溶性有机碳含量和来源研究	严芳萍, 康世昌, 陈鹏飞, 柏建坤, 李洋, 胡召富, 李潮流 (2827)
岩溶区地下水补给型水库表层无机碳时空变化特征及影响因素	李建鸿, 蒲俊兵, 袁道先, 刘文, 肖琼, 于爽, 张陶, 莫雪, 孙平安, 潘谋成 (2833)
室内模拟不同因子对岩溶作用与碳循环的影响	赵瑞一, 吕现福, 段逸凡 (2843)
新乡市地表水体 HCHs 和 DDTs 的分布特征及生态风险评价	冯精兰, 余浩, 刘书卉, 刘梦琳, 孙剑辉 (2849)
青木关地下河系统中不同含水介质下正构烷烃对比研究	梁作兵, 孙玉川, 王尊波, 江泽利, 廖昱, 谢正兰, 张媚 (2857)
三峡库区长寿湖水体不同形态汞的空间分布特征	白薇扬, 张成, 赵锋, 唐振亚, 王定勇 (2863)
燃煤电厂周围渔业养殖行为对水生生态环境中汞形态变化的影响	梁鹏, 王远娜, 尤琼智, 高雪飞, 何杉杉 (2870)
运用硫同位素、氮氧同位素示踪厘清湖地下河硫酸盐、硝酸盐来源	李瑞, 肖琼, 刘文, 郭芳, 潘谋成, 于爽 (2877)
藻华聚集的生态效应: 对凤眼莲叶绿素和光合作用的影响	刘国锋, 何俊, 杨轶中, 韩士群 (2887)
DOM 对被动采样技术的影响与应用	于尚云, 周岩梅 (2895)
蛋白质对 PVDF 超滤膜污染行为的界面微观作用力解析	王旭东, 周森, 孟晓荣, 王磊, 黄丹曦, 夏四清 (2900)
水环境中碳纳米管对沙丁胺醇降解的影响	汪祺, 韩佳芮, 魏博凡, 周磊, 张亚, 杨曦 (2906)
β -In ₂ S ₃ 的制备及其太阳光下降解土霉素	艾翠玲, 周丹丹, 张嵘嵘, 邵享文, 雷英杰 (2911)
排水管道沉淀物氮释放特性的研究	陈红, 卓琼芳, 许振成, 王劲松, 魏清伟 (2918)
生物膜 CANON 反应器中沉积物影响及其成因分析	付昆明, 王会芳, 左早荣, 仇付国 (2926)
ABR-MBR 一体化工艺节能降耗措施优化研究	吴鹏, 陆爽君, 徐乐中, 刘捷, 沈耀良 (2934)
两个 CANON 污水处理系统中氨氧化古菌的丰度和多样性研究	高景峰, 李婷, 张树军, 樊晓燕, 潘凯玲, 马谦, 袁亚林 (2939)
ABR 耦合 CSTR 一体化工艺好氧颗粒污泥形成机制及其除污效能研究	巫恺澄, 吴鹏, 徐乐中, 李月寒, 沈耀良 (2947)
珠江三角洲地区土壤有机氯农药分布特征及风险评价	窦磊, 杨国义 (2954)
广西都安县耕地土壤重金属污染风险评价	吴洋, 杨军, 周小勇, 雷梅, 高定, 乔鹏伟, 杜国栋 (2964)
开封市公园地表灰尘重金属污染及健康风险	段海静, 蔡晓强, 阮心玲, 全致琦, 马建华 (2972)
我国西南地区氮饱和马尾松林土壤和植物 ¹⁵ N 自然丰度对长期氮施加的响应	刘文静, 康荣华, 张婷, 朱婧, 段雷 (2981)
黄土高原纬度梯度上的植物与土壤碳、氮、磷化学计量学特征	李婷, 邓强, 袁志友, 焦峰 (2988)
开顶式气室原位研究水稻根系对大气汞浓度升高的响应	陈剑, 王章玮, 张晓山, 秦普丰, 陆海军 (2997)
接种丛枝菌根真菌对蜈蚣草吸收砷的影响	郑文君, 王明元 (3004)
水稻种植对黑土微生物生物量和碳源代谢功能的影响	赵志瑞, 崔丙健, 侯彦林, 刘上千, 王岩 (3011)
固定化菌剂载体材料腐解产物对污染土壤中苈解吸的影响	全冬丽, 双生晴, 李晓军, 邓万荣, 赵然然, 贾春云, 巩宗强 (3018)
零价铁和碱激发矿渣稳定/固定化处理铬渣研究	陈忠林, 李金春子, 王斌远, 樊磊涛, 沈吉敏 (3026)
Fe ³⁺ 负载凹凸棒土 (Fe/ATP) 结构表征及其稳定化修复镉 (Cd) 机制研究	杨蓉, 李鸿博, 周永莉, 陈静, 王琳玲, 陆晓华 (3032)
原位生物修复提高多环芳烃污染土壤农作安全性	焦海华, 潘建刚, 徐圣君, 白志辉, 王栋, 黄占斌 (3038)
镉-八氯代二苯并呋喃复合污染土壤中紫茉莉对镉的修复能力	张杏丽, 邹威, 周启星 (3045)
不同水分条件对蜈蚣草修复砷污染土壤的影响	刘秋辛, 阎秀兰, 廖晓勇, 林龙勇, 杨静 (3056)
磷矿粉和腐熟水稻秸秆对土壤铅污染的钝化	汤帆, 胡红青, 苏小娟, 付庆灵, 朱俊 (3062)
洛克沙肿在青菜及土壤中的残留及降解特性	邵婷, 姚春霞, 沈源源, 张玉洁, 苏楠楠, 周守标 (3068)
3 种典型有机污染物对 2 种水生生物的急性毒性及安全评价	杨扬, 李雅洁, 崔益斌, 李梅 (3074)
石油污染物对海底微生物燃料电池性能的影响及加速降解效应	孟瑶, 付玉彬, 梁生康, 陈伟, 柳昭慧 (3080)
Cu-Mn-Ce/ 分子筛催化剂吸附甲苯后的微波原位再生及床层温度分布探究	虎雪姣, 卜龙利, 梁欣欣, 孟海龙 (3086)
热处理对猪粪高固厌氧消化产甲烷能力的影响	胡玉瑛, 吴静, 王士峰, 曹知平, 王凯军, 左剑恶 (3094)
磷石膏对麦田 CO ₂ 排放和小麦产量的影响及其经济环境效益分析	李季, 吴洪生, 高志球, 尚小厦, 郑培慧, 印进, Kakpa Didier, 任迁琪, Ogou Katchele Faustin, 陈素云, 徐亚, 姚童言, 李炜, 钱景珊, 马世杰 (3099)
全氟和多氟烷基化合物的环境风险评估研究现状、不确定性与趋势分析	郝薛文, 李力, 王杰, 曹燕, 刘建国 (3106)
《环境科学》征订启事 (2757)	
《环境科学》征稿简则 (2767)	
信息 (2734, 2783, 3073, 3079)	

全氟和多氟烷基化合物的环境风险评估研究现状、不确定性与趋势分析

郝薛文, 李力, 王杰, 曹燕, 刘建国*

(北京大学环境科学与工程学院, 环境模拟与污染控制国家重点实验室, 北京 100871)

摘要: 本研究系统梳理了国际学术界关于全氟和多氟烷基化合物(perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances, PFASs)的术语、范畴和应用物质的界定与变迁,以 PFASs 的环境危害性评估和暴露评估为重心,综述评析当前关于 PFASs 环境风险评估研究现状、不确定性和发展趋势。总体上,PFASs 风险评估正面临着物质谱系复杂、种类繁多、衍生关系复杂、商业秘密及风险不确定的复杂局面。尽管长链 PFASs 的环境风险已获广泛认可,但以其替代品形式大量涌现的短链 PFASs 及各类短链氟调聚物的环境危害性、环境行为和暴露风险则尚存很多的不确定性与研究空白,国际社会对于 PFASs 的风险控制范畴值得商榷。PFASs 替代物质的结构和风险信息因商业秘密及市场竞争因素而缺乏公开性和透明度,多数含氟和非氟替代品的环境风险尚有待识别。总之,国际上对 PFASs 风险评估研究呈现出由以全氟辛酸磺酸类化合物(perfluorooctane sulfonic acid, PFOS)和全氟辛酸类化合物(perfluorooctanoic acid, PFOA)等为代表的长链全氟烷基酸(perfluoroalkyl acids, PFAAs)逐步扩展到短链 PFAAs,再扩展到其他非 PFAAs 的 PFASs 物种的发展趋势。当前亟待解决及未来将持续研究关注的主要问题:关于短链 PFASs 的生物累积性和环境迁移性等关键环境危害性的评估指标和方法的优化,以及其环境释放和多介质环境归趋;中性 PFASs 的环境归趋及其作为短链 PFAAs 潜在前体物质的转化与贡献;未来 PFASs 含氟或非氟替代品的风险识别和评估。

关键词: 全氟和多氟烷基化合物; PFASs; 环境风险; 不确定性; 风险评估

中图分类号: X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)08-3106-13 DOI: 10.13227/j.hjxx.2015.08.052

Status Quo, Uncertainties and Trends Analysis of Environmental Risk Assessment for PFASs

HAO Xue-wen, LI Li, WANG Jie, CAO Yan, LIU Jian-guo*

(State Key Joint Laboratory for Environmental Simulation and Pollution Control, College of Environmental Sciences and Engineering, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: This study systematically combed the definition and change of terms, category and application of perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances (PFASs) in international academic, focusing on the environmental risk and exposure assessment of PFASs, to comprehensively analyze the current status, uncertainties and trends of PFASs' environmental risk assessment. Overall, the risk assessment of PFASs is facing a complicated situation involving complex substance pedigrees, various types, complex derivative relations, confidential business information and risk uncertainties. Although the environmental risk of long-chain PFASs has been widely recognized, the short-chain PFASs and short-chain fluorotelomers as their alternatives still have many research gaps and uncertainties in environmental hazards, environmental fate and exposure risk. The scope of risk control of PFASs in the international community is still worth discussing. Due to trade secrets and market competition, the chemical structure and risk information of PFASs' alternatives are generally lack of openness and transparency. The environmental risk of most fluorinated and non-fluorinated alternatives is not clear. In total, the international research on PFASs risk assessment gradually transfer from long-chain perfluoroalkyl acids (PFAAs) represented by perfluorooctane sulfonic acid (PFOS) and perfluorooctanoic acid (PFOA) to short-chain PFAAs, and then extends to other PFASs. The main problems to be solved urgently and researched continuously are: the environmental hazardous assessment indexes, such as bioaccumulation and environmental migration, optimization method, the environmental release and multimedia environmental fate of short-chain PFASs; the environmental fate of neutral PFASs and the transformation and contribution as precursors of short-chain PFASs; the risk identification and assessment of fluorinated and non-fluorinated alternatives of PFASs.

Key words: perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances; PFASs; environmental risk; uncertainty; risk assessment

在过去的十余年间,全球范围内有关全氟和多氟烷基化合物(perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances, PFASs)的环境和健康风险研究持续升温^[1]。PFASs 泛指脂肪烃碳链上与全部或多个碳原子相连的所有氢原子被氟原子取代,而形成的整体

或部分含有 C_nF_{2n+1} —基团的化合物^[2]。其是一类

收稿日期: 2015-01-26; 修订日期: 2015-03-23

作者简介: 郝薛文(1990~),女,硕士研究生,主要研究方向为化学品环境暴露模拟和风险评估, E-mail: haoxuewen@pku.edu.cn

* 通讯联系人, E-mail: jgliu@pku.edu.cn

人工合成并广泛用于化工领域的含氟化学品,具有较好的热稳定性和化学稳定性,能显著降低水的表面张力,从 19 世纪 50 年代开始被广泛应用于农药合成、电镀、消防、织物整理和高分子聚合物生产等行业^[3]。

对于 PFASs 环境风险的关注肇始于 2001 年 Giesy 等^[4]关于生态系统中野生动物体内普遍监测到全氟辛烷磺酸类化合物(perfluorooctane sulfonic acid, PFOS)以及 Hansen 等^[5]关于人体血液中广泛监测到 PFOS 以及和全氟辛酸类化合物(perfluorooctanoic acid, PFOA)的研究。在此之前,全球最大的 PFASs 生产企业美国 3M 公司于 2000 年宣布停止生产 PFOS,人们普遍认为其出于对该类产品的环境和健康风险的考虑。随后更多的研究表明,全球环境介质以及野生动物和人体体内(血液、母乳、肝脏)普遍存在 PFASs 污染^[6~8],尤其是以 PFOS 和 PFOA 为代表的碳链长度为 8 个碳的长链 PFASs。PFOS 于 2005 年被提名作为一种持久性有机污染物(POPs),后被正式列入《关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约》^[9]。2006 年,8 家全球主要的 PFOA 生产企业与美国环保署(United States Environmental Protection Agency, USEPA)签署协议,宣布到 2015 年自愿逐步消除 PFOA 的排放和使用^[10]。碳链长度达到 11~14 个碳的长链 PFASs 则被欧洲化学品管理局列为高关注物质(substances of very high concern, SVHCs)予以控制^[11]。2009 年,美国及经济合作与发展组织(Organization for Economic Co-operation and Development, OECD)代表在国际化学品管理大会第二次会议上提议将以 PFOS 和 PFOA 为代表的长链 PFASs 被以“全氟化合物(perfluorinated chemicals, PFCs)”的名义列为国际化学品管理新兴政策问题,呼吁全世界范围内予以替代和淘汰^[1,12]。然而,随着作为“长链”PFASs 的“安全”替代品的多种“短链”PFASs 及其氟调聚物逐渐大规模推广和使用,近年来已有越来越多的监测研究表明,部分“短链”PFASs 的环境浓度正在显著提高,甚至已经达到与“长链”PFASs 相当的浓度水平^[13~15]。2014 年,国际 PFASs 研究科学家团体发表关于 PFASs 环境风险的赫尔辛基宣言(Helsingør Statement),明确强调:持续升高的各类 PFASs 环境和人体暴露将预示逐渐增大的生态环境和人体健康风险^[16]。

自 2000 年 3M 等全球主要 PFASs 生产企业逐步停止 PFOS 和消减 PFOA 生产以来,中国已成为

全球 PFASs 及其替代品的主要生产、进口和使用国,尤其是全球范围内含有 PFASs 的各类工商业消费产品的主要生产国和供应国^[17~20]。许多学者报道了在中国境内的 PFASs 排放状况和污染水平,并揭示了由此引发的生态环境和人体健康风险^[17,20~23]。然而,国内的现有研究基本上还主要集中在已经被纳入国际化学品风险管理范畴的以 PFOS 和 PFOA 为代表的长链全氟烷基酸类化合物(perfluoroalkyl acids, PFAAs)。对于目前类别广泛的其他种类 PFASs 物种(如 PFAAs 的中性前体物、全氟及多氟替代品等)的环境危害性、暴露以及引致的风险研究还鲜有涉及,造成学界和管理界对 PFASs 整体环境和健康风险的认识尚存很大不确定性。事实上,PFASs 是一类包含上百种物种的有机氟化工产品大家族。一方面,长期以来关于纷繁的 PFASs 物质概念及术语的运用存在不确定性及混淆,PFASs 所涉及的物质种类和范畴的一直较为模糊,以至于各国间开展 PFASs 风险管理的范畴也不甚明确和统一^[1,2]。另一方面,在庞大的氟化工产业链背景下,因添加量少、形态繁多及商业秘密等多种原因,数以百计的 PFASs 及其前体物的种类、性质、生产、消费和环境释放与暴露等的认识都尚存诸多空白。

本研究旨在系统厘清国际学术界关于 PFASs 的术语、范畴和应用物质的界定与变迁,遵循化学品风险评估的基本逻辑步骤,以 PFASs 的环境危害性评估和暴露评估为重心,综述评析当前关于 PFASs 环境风险评估研究现状、不确定和未来趋势,以期为全面和客观认识 PFASs 物质及其环境风险,明晰主要研究方向以及合理开展风险管理行动提供参考。

1 PFASs 的术语、范畴和应用物质的界定与变迁

1.1 从 PFCs 到 PFASs

国际社会对于 PFASs 曾长期没有一个统一的定义和范围界定。鉴于 PFASs 环境风险问题始于 8 个碳的 PFOS 和 PFOA,OECD 早期开展的调查研究围绕上述两类物质展开,由于涉及的物质种类众多,遂开始将其所代表的不同碳链长度的全氟磺酸类化合物(perfluoroalkyl sulfonic acids, PFSAAs)和全氟羧酸类化合物(perfluoroalkyl carboxylic acids, PFCAs)合并定名为 PFCs,分别指代:“具有 6 个碳及以上 PFAS 和 8 个碳及以上的 PFCAs,以及作为其前体物的氟调聚物^[12]”。PFCs

一词被美国环保署、国际化学品大会等机构及许多学者所采用,成为此后国际管理界和学术界广泛应用的术语.与此同时,“PFCs”以及采用上述物质的酸类物质简写“PFASs”、“PFCA”或“PFAAs”等用语也被各类文献使用.面对不断涌现的 PFASs 相关物质及研究的日渐增多,而术语五花八门的状况,以 Buck 等^[2]领衔的来自 PFASs 主要研发机构的专家,基于 PFASs 的化工谱系、衍生关系及物质结构、性质相关性等问题的进行全面梳理,对 PFASs 提出了一套较为完整合理的定义、术语系统和物质范畴^[2],尤其提出应该用“PFASs”取代“PFCs”一词,作为此类化合物的统一术语.主要理由在于“PFCs”也可以指代与此类关注化合物无关的全氟化碳(perfluorocarbons),该名词也被用于京都议定书中的某些全氟取代的烷烃类温室气体.从近年来的国际学术界的反馈来看,Buck 等^[2]的 PFASs 术语以及物质范畴得到了广泛认可,尤其是其得到了 OECD 全球 PFCs 专家组的采纳^[1].

OECD 基于 Buck 等^[2]所提出的 PFASs 物质谱系,如图 1 所示.总体而言,PFASs 可分为非聚合物和聚合物两类.

以非聚合物形式存在的 PFASs 主要包括:①全氟

烷羧酸类化合物及其盐类和酯类,如 PFCA 和 PFSA 及其相应的钾盐和铵盐;②全氟和多氟烷基醚类化合物(per-and polyfluoroalkyl ethers, PFPEs)的羧酸或磺酸及其盐类;③全氟烷基酰氟(perfluoroalkane sulfonyl fluoride, PASFs)及其衍生物;④全氟烷基碘(perfluoroalkyl iodides, PFAIs)及氟调聚物,如氟聚醇类(fluorotelomer alcohol, FTOH)和氟聚磺酸类(fluorotelomer sulfonate, FTS)^[2].其中,上述后两种物质往往以可挥发性中性分子形式存在,又被统称为中性 PFASs(neutral, nPFASs)^[24].

以聚合物形式存在的 PFASs 则根据全氟基团(C_nF_{2n+1})取代位置的差别,主要包括主链氟聚合物(backbone fluorinated polymer)和侧链氟聚合物(side-chain fluorinated polymer)两种:主链氟聚合物是指由多(全)氟碳链或醚链所形成主链的聚合物(分别称为 fluoropolymer 和 perfluoropolyether),通常由含氟烯烃或醚基单体通过共聚或齐聚等方式聚合而成;侧链氟聚合物则指多氟或全氟基团以侧链形式附着在非氟主链的聚合物,通常由丙烯酸、甲基丙烯酸、氨基甲酸等非氟单体与 PASFs 或 FTOH 等含氟单体共聚而成,典型的例子如用于织物整理的全氟甲基丙烯酸酯聚合物(fluorinated methacrylate polymer, FTMAC)^[20].

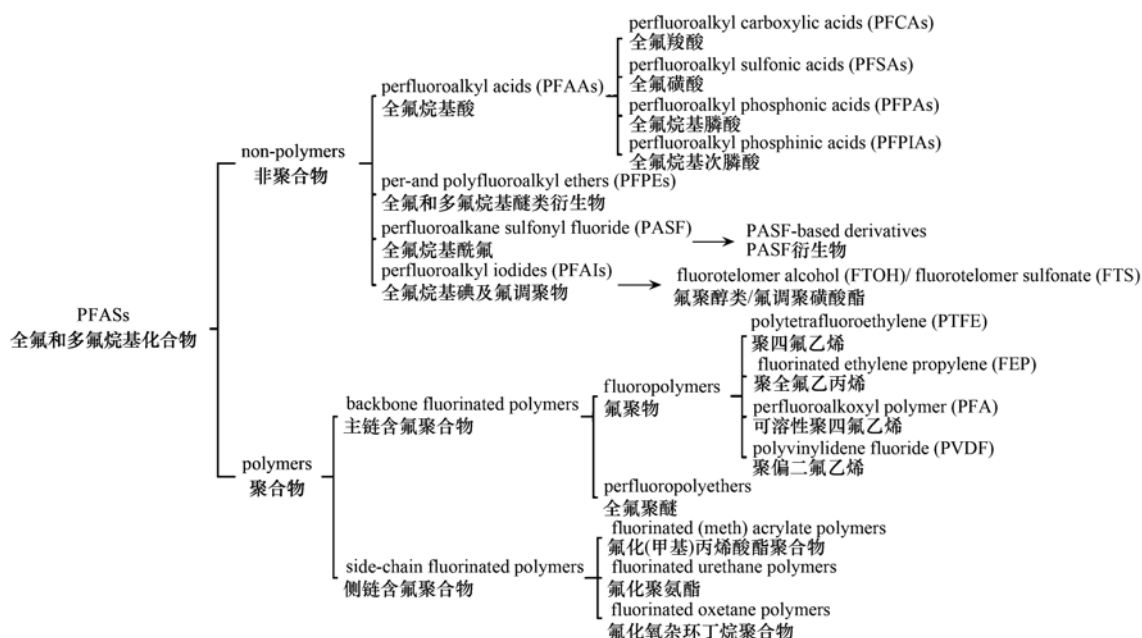


图 1 PFASs 的物质谱系^[1,2]

Fig. 1 Classification of PFASs

与图 1 所示复杂的 PFASs 物质谱系相应的是非常广泛 PFASs 的物质范围和种类. 仅就 PFOS 而

言, OECD 在 2004 ~ 2009 年在全球范围内的调查识别出 165 种 PFOS 类物质^[12], 而 EPA 管控的碳链长

于或短于 8 的 PFASs 或聚合物则多达 270 种^[25,26]，并且这些物质又以不同的盐类、酯类和醇类等众多工商业化学品形式存在于市场中。迄今为止，多数种类的 PFASs 的物质信息尚处于商业保密之中，人们尚不清楚全球存在多少种 PFASs 产品在生产、使用和贸易之中。与此同时，各类 PFASs 之间在产业与环境中还存在着复杂的连带关系^[2,20,27]，例如：一种 PFASs 可以作为其他 PFASs 生产过程的添加剂，留存在产品中的杂质或残余，也可以经过生物或非生物反应过程转化为另一种 PFASs。

1.2 从长链 PFASs 到短链 PFASs

在早期的报告中，基于毒性和生物累积性不同的考虑，OECD 和 EPA 等国际机构将全氟取代的碳原子数目大于等于 6 的 PFASs、全氟取代的碳原子数目大于等于 8 的 PFCAs 定义为长链（long-chain）物种，反之则称为短链（short-chain）物种^[12,25]。随

着对于 PFASs 生物累积性研究的深入，人们普遍认为碳链长度大于 7 的 PFCAs 具有较为显著的生物富集效应，并且碳链长度越长，生物富集能力越大^[28]。OECD 将长链 PFCAs 划分依据修改为全氟取代碳原子数目大于等于 7，而维持 PFASs 划分标准的不变^[1]。值得注意的是，尽管 OECD 的定义仅以 PFAAs 作为范例，对于这些物种的衍生物、前体物以及其他非聚合物 PFASs 亦同样适用。

学界普遍认为，长链 PFASs 物种比短链 PFASs 具有更高的固有环境危害性，因此国际社会正逐步在淘汰长链 PFASs 在各领域的应用^[1,29]。以全氟丁烷磺酸（perfluorobutane sulfonic acid，PFBS）和全氟己烷羧酸（perfluorohexanoic acid，PFHxA）及其衍生物为代表的短链 PFASs 则以替代品的形式大规模地在原长链 PFASs 应用的各个领域得以推广和使用，如表 1 所示^[1,30,31]。

表 1 部分长链 PFASs 应用领域的短链 PFASs 替代品应用状况¹⁾
Table 1 Applications of selected short-chain PFASs alternatives for long-chain PFASs

工业/民用领域	技术作用	原来使用的长链 PFASs	作为替代品的短链 PFASs
PTFE/PVDF 聚合 ²⁾	悬浮聚合和乳液聚合工艺协助体系分散	PFOA 或 PFNA 及其盐类	短链全氟烷基醚及衍生物、环状全氟烷基醚及衍生物和 PFHxA 及其铵盐
水成膜泡沫灭火剂	协助溶液起泡成膜覆盖可燃物表面，隔绝氧气	PFOS/PFOSF 及衍生物 PFOA 及其衍生物	6:2 全氟烷基甜菜碱、6:2 全氟烷基磺胺氧化物等、PHxSF ⁴⁾ 类衍生物
织物整理/表面处理	织物三防整理剂及表面活性剂	POSF 类衍生物 8:2 FTOH 的丙烯酸酯	PBSF 或 PHxSF 类衍生物 4:2 FTOH 或 6:2 FTOH 丙烯酸酯及聚合物
金属电镀抑雾剂	抑制铬雾产生	PFOS 及其碱金属盐	6:2 氟调聚类衍生物
农药	杀灭白蚁饵剂	N-EtFOSE ³⁾ （氟虫胺）	非 PFASs 替代品（如吡虫啉、毒死蜱、氯氰菊酯、溴氰菊酯等）
石油开采	石油采掘中起助排作用	PFOS 及其四乙基铵类化合物	PFBS 及其四乙基铵类化合物 6:2 氟调聚类衍生物

1) 本表整理自文献[1,30,31]及作者在中国境内调研情况；2) PVDF: polyvinylidene fluoride, 聚偏氟乙烯；3) N-EtFOSE: N-ethyl perfluorooctane sulfonamidoethanol, N-乙基全氟辛基磺基乙醇胺；4) PFHxS: perfluorohexane sulfonic acids, 全氟己烷磺酸；PHxSF: perfluorohexane sulfonyl fluoride, 全氟己烷磺酰氟

2 PFASs 的环境危害性评估现状与不确定性

环境持久性、生物累积性、潜在毒性（persistent, bioaccumulative and toxic, PBT）和长距离迁移能力（long-range transport potential, LRTP）为基本评估指标的环境危害性评估一直是全球化学品环境风险评估的首要步骤。本研究以下就按照这几项化学品环境危害性评估的关键指标，综述评析当前 PFASs 的环境危害性评估现状与不确定性。

2.1 环境持久性

长链 PFAAs 能够抵抗光解、水解、OH 自由基氧化和生物降解，具有显著的环境持久性^[32]。EPA 针对 PFOS 在水中光解作用研究结果表明，25℃时

PFOS 的间接光解半衰期估计超过 3.7 年^[32]。OECD 的 PFOS 危害评估报告也指出 PFOS 任何环境条件测试中都未出现水解、光解或生物降解^[33]。Gomis 等^[34]对 PFAAs 的总持久性（overall persistence, Pov）的模拟结果表明，PFOS、PFOA 等长链 PFAAs 的 Pov 指标均大于 1 000 d^[34]。现有的全球监测也证实，PFASs 能够广泛在远离源头的偏远地区环境和生物体中检出^[6,7]。

由于具有相似稳定的全氟取代结构，在环境介质中，短链 PFAAs 与长链 PFAAs 具有类似持久性^[35,36]。表 2 列举了 EPA 的环境危害性评工具 PBT Profiler 对 5 种 PFAAs 的环境持久性、生物累积性和毒性的模拟运算结果，结果表明，在各种介质

中短链 PFAs 与长链物种相比均呈现相当的持久性。值得一提的是,在动物和人体内,短链 PFAs 普遍呈现出比长链 PFAs 短得多的血清消除半衰期^[37]。然而这一现象并不能表明短链 PFAs 的持久性低,其主要原因是短链 PFAs 具有更高的渗透性,更容易通过体液排出体外^[34]。

近年来,部分学者针对 nPFAs 替代品的环境持久性进行了评估。PASFs、FTOH 及其衍生物普遍具有较低的环境持久性,极容易降解生成对应相同碳链长度的 PFAs,所以被认为是 PFAs 的前体物质^[18,20]。例如,Hurley 等^[38]和 Andersen 等^[39]在气相实验中观测到了 6:2、3:1 和 5:1 FTOH 与 OH 自由基反应生成短链 PFAs。但目前,其他类别的 nPFAs 环境持久性的研究数据尚很不充分,其结果也存在较大不确定性^[37]。

2.2 生物累积性

对于 PFAs 生物累积性的研究通常主要沿用基于疏水性化合物定义的生物蓄积因子 (bioconcentration factor, BCF) 或生物累积因子 (bioaccumulation factor, BAF) 展开,一般认为 BCF 或 BAF 超过 5 000 为具有生物累积性,而 BCF 或 BAF 介于 2 000 ~ 5 000 之间则具有潜在的生物累积性^[40]。BCF 监测证据显示,长链 PFAs (PFOA 除外) 普遍具有较为显著的生物富集效应,并且碳链长度越长,生物富集能力越大^[28]。例如,虹鳟对 C10 以上的 PFAs 的生物富集因子超过持久性有机污染物 BCF 大于 5 000 的标准^[41]。而短链 PFAs 则普遍具有较低的 BCF (见表 2)。然而近年来,部分研究者质疑 BCF 对于评价具有高水溶性、易解离性的 PFAs 这类物质生物累积性的适用性^[29,37]。主要原因是两方面:一方面,对于水生鱼类而言,PFAs 的高水溶性可以使其通过鱼鳃渗透等方式从鱼体内有效排出,从而降低了 PFAs 的表观 BCF。而对于陆生动物而言,PFAs 并不能有效通过空气呼吸排出,用鱼类 BCF 进行评估则会低估 PFAs 的生物累积性。改进方法是采用生物放大因子 (biomagnifications factors, BMFs) 或食物链放大因子 (trophic magnification factors, TMFs) 进行评估^[29]。事实上,欧盟 REACH (Registration, Evaluation, Authorisation and Restriction of Chemicals) 是通过分析不同营养级生物相的浓度确定 PFOA 具有生物累积性的^[11,29,37]。另一方面,PFAs 的易解离性可以使其易于穿透生物体表屏障而被生物吸收^[42~44]。部分学者认为离子化而荷电的 PFAs 分子更容易

与生物膜上的磷脂层结合^[45,46],部分学者则认为 PFAs 易与蛋白质结合从而在肝脏和血液中得到富集^[47],而传统基于脂-水分配的 BCF 并不能模拟这一情况^[34]。改进的方法是采用基于磷脂的模型 (phospholipid, PL) 或基于蛋白结合的模型 (protein binding, PB) 进行评估^[48]。由此可见,对生物累积性评价指标选取的科学性探讨也是目前关于 PFAs 环境危害性研究的一个重要方面。

2.3 对环境和健康的不利影响

目前针对 PFAs 环境和健康不利影响的研究主要集中在 PFOS 和 PFOA 等长链 PFAs。斑马鱼胚胎生殖毒性测试表明 C10 及以下的 PFAs 的生殖毒性随着碳链长度的增加而增大,同碳原子数的全氟磺酸的毒性要略高于全氟羧酸^[49]。目前关于短链 PFAs 的毒理学研究数据主要来自于其化学品开发和生产商。有研究通过对大鼠、小鼠、猴子等哺乳动物进行毒理实验,发现短链 PFAs 哺乳动物毒性相对较弱,其在动物体内代谢降解和去除速率比长链 PFAs 快^[50~54]。生态毒性方面,现有短链 PFAs 生态毒性研究非常有限^[49,55~57],存在很大空白。

2.4 长距离迁移性

以 PFOS 为代表的长链 PFAs 已经被证实具有显著的长距离迁移性^[32]。长链 PFAs 长距离迁移的主要途径是有 3 种:由挥发性前体物的迁移转化带来的大气沉降^[36];直接通过环境释放进入水体而进行迁移^[27,58];通过海洋气溶胶的迁移^[59]。全球监测结果表明,在远离排放源的偏远地区的生物体内能够普遍检出以 PFOS、PFOA 为代表的长链 PFAs^[60]。对于短链 PFAs 以及其他含氟替代品,目前尚无长距离迁移的监测数据。现有的模型模拟长距离迁移能力的评价指标,如特征迁移距离 (characteristic travel distance, CTDs) 和转化效率 (transfer efficiency, TE) 等,均显示短链 PFAs 与长链 PFAs 相当的长距离迁移能力。理论上,与长链 PFAs 相比,短链 PFAs 具有更好的水溶性和弱吸附固体能力,从而具有更强的迁移性^[37,58]。

部分学者关注可挥发性 nPFAs 在 PFAs 长距离迁移进程中的贡献。与 PFAs 相比,nPFAs 往往具有更高的饱和蒸汽压和更强的挥发性,可以通过全球大气环流进行长距离的输运,在此过程中发生降解生成 PFAs 并最终沉积在远离排放源的偏远地区。Wania^[61]借助模型比较了洋流直接输运和大气 FTOH 输运对极地 PFOA 的贡献,结果表明洋流

直接输运对极地 PFOA 的绝对贡献高于大气 FTOH 输运的 10 倍^[61]；而考虑到全球 PFOA 环境释放量高于 FTOH 环境释放量近 2~3 个数量级^[61]，大气 FTOH 输运的相对效率其实不容小觑。对于短链

nPFASs，其大气反应活性与长链物种相当，并且与相应链长 PFAAs 相比具有更高的使用和环境释放量，理论上，其对 PFAAs 长距离迁移应当有更高的贡献。

表 2 基于 PBT Profiler 模型对长链和短链 PFASs 进行环境危害性评估对比¹⁾

名称	CAS 号	环境持久性 P				生物累积性 B	毒性 T
		半衰期/d				BCF	Fish ChV ²⁾ /mg·L ⁻¹
		水	土壤	底泥	大气		
PFBA	375-22-4	60	120	540	31	3.2	130
PFBS	375-73-5	180	360	1 600	120	3.2	340
PFHxA	307-24-4	180	360	1 600	31	3.2	14
PFOA	335-67-1	180	360	1 600	31	56	1.3
PFOS	1763-23-1	180	360	1 600	120	56	3

1) PBT Profiler: 美国 EPA 开发的用于评估化学品环境持久性、生物累积性、对水生生物毒性的模型；2) Chv: 最大无影响浓度 (NOEC) 和最低有影响浓度 (LOEC) 的几何平均值, 在 PBT profiler 中用以评价化学品对水生生物的毒性

3 PFASs 的环境和人体暴露评估的现状与不确定性

3.1 PFASs 的环境暴露

3.1.1 PFASs 的环境暴露浓度水平

迄今, PFASs 已在全球范围内的水、沉积物、土壤、大气环境中被广泛监测到。对于 PFASs 和 PFCAs 等可在水体中高度解离的物种而言, 水环境是其最具代表性的污染指征介质^[62~74], 如图 2 所示。地表水环境中普遍监测到的 PFASs 物质为 C8

的 PFOS 和 PFOA、C9 的全氟壬酸 (perfluorononanoic acid, PFNA) 和 C10 的全氟癸酸 (perfluorodecanoic acid, PFDA) 等长链 PFASs。从地区分布来看, 亚洲地区的中国东南沿海、韩国、日本等地区浓度较高, 普遍大于 100 ng·L⁻¹, 部分地区浓度为几百至上千 ng·L⁻¹。欧洲地区除个别监测点浓度较高, 其余普遍小于几十 ng·L⁻¹。美国东部报道的监测浓度较高, 在几百 ng·L⁻¹ 左右。除地表水以外, Mak 等^[75] 对全球自来水中监测状况进行综

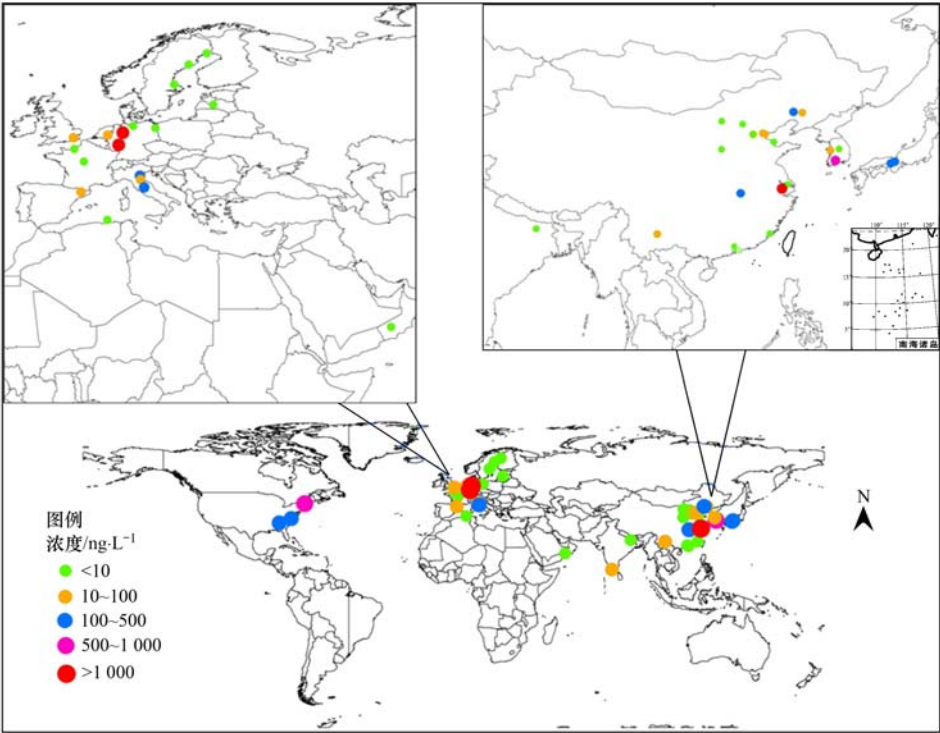


图 2 全球长链 PFASs 的地表水环境暴露

Fig. 2 Environmental exposure of long-chain PFASs in surface water all over the world

述,研究表明亚洲地区 PFOS 和 PFOA 浓度偏高,特别是中国和日本,此外,印度、意大利自来水中含有一定量的长链 PFASs,其余地区浓度较低^[75]. Wang 等^[76]对中国以 PFOS、PFOA 为主的 PFAAs 的环境介质分布进行了综述,研究表明中国的区域城市化和工业化与 PFAAs 的排放和污染密切相关. 总体而言,水环境中长链 PFASs 的浓度在逐渐降低,如由于斯德哥尔摩公约管控,珠江等水环境浓度逐步降低^[77,78].

对于全氟调聚醇、全氟磺酰胺 (fluorinated sulfonamides, FOSAs) 和全氟磺酰胺基乙醇 (fluorinated sulfonamidoethanols, FOSEs) 等 nPFASs

而言,大气环境是其主要的污染指征介质. 例如 Gawor 等^[24]采用被动监测对全球最多 46 个观测站点中大气 nPFASs 进行了监测,发现 FTOHs 是 nPFASs 的最主要物种^[24]. 赵洋洋等^[79]将松针作为 nPFASs 的一种被动采样形式,对天津市松针中的 nPFASs 的浓度水平进行测定,研究表明 8:2FTOH 和 10:2FTOH 是松针中主要检出物,从一定程度上反映大气中 nPFASs 的浓度水平^[79]. 表 3 为文献报道的全球各地大气中 FTOH 浓度监测结果. 结果表明,全球范围内日本大阪的大气中监测出 FTOH 浓度最高,发达国家(如美国、英国和日本)大气中 FTOH 浓度普遍高于发展中国家(如中国和印度).

表 3 全球各地大气中 FTOH 浓度监测结果

Table 3 Concentrations of FTOH monitored in the global atmosphere

地区	样本数	采样方法	采样时间	均值(范围)/pg·m ⁻³	文献
中国各地	16	被动	2009	GM ²⁾ 78.9 (14.5 ~ 498)	[80]
印度各地	12	被动	2009	GM 57.6 (31.9 ~ 135)	[80]
日本各地	3	被动	2009	GM 254.1 (97.7 ~ 808)	[80]
日本各地	19	被动	2007	GM 90.2 (32 ~ 2 466)	[81]
日本京阪	15	被动	2007	GM 99.2 (32 ~ 401)	[81]
日本京都	10	主动(g + p) ¹⁾	2006	GM 352 (48 ~ 1 743)	[82]
日本大阪	10	主动(g + p)	2006	GM 1465 (310 ~ 4 585)	[82]
英国曼彻斯特	2	主动(g + p)	2005	AM ³⁾ 242.8 (—) ⁴⁾	[83]
英国黑兹里格	2	主动(g + p)	2005	AM 103.1 (—)	[83]
加拿大多伦多	3	主动(g + p)	2001	AM 165 (113 ~ 213)	[84]
美国格里芬	5	主动(g + p)	2001	AM 148 (49 ~ 224)	[84]
美国克利夫斯	3	主动(g + p)	2001	AM 132 (103 ~ 181)	[84]
德国汉堡	14	主动(g + p)	2005	GM 105.5 (64 ~ 275)	[85]

1) g: gaseous phase, 气相; p: particulate phase, 颗粒相; 2) GM: geometric mean, 几何平均值; 3) AM: arithmetic mean, 算术平均值; 4) “—”表示文章中无相关数据

3.1.2 短链 PFASs 水环境暴露急剧增加

目前日益引起关注的是,在近年来的环境监测研究中,作为长链 PFASs 替代品的短链 PFASs 在水环境中的浓度逐步升高^[58]. 水环境中短链 PFASs 的主要监测到的物质为全氟丁酸(perfluorobutanoic acid, PFBA)、PFBS、PFHxA 等. 从地区分布来看,美国、欧洲各国、亚洲的中国、韩国和日本等国家普遍检出 C4 和 C6 的 PFASs,特别是中国东部地区监测浓度较高. 中国作为目前 PFASs 最主要的生产和加工地,部分地区水环境中短链 PFASs 浓度接近甚至高于长链 PFASs 浓度,如:辽宁阜新和武汉汤逊湖等地区. 辽宁阜新地区地表水环境中 PFBS 的浓度约为几百 ng·L⁻¹,显著高于 PFOS 和 PFOA^[13]. 在武汉汤逊湖中 PFBS 和 PFBA 是地表水中最主要的 PFASs,浓度分别是 3 660 ng·L⁻¹ 和 4 770 ng·L⁻¹^[14].

水环境中短链 PFASs,特别是 PFBS、PFBA 的浓

度急剧升高,主要原因在于:首先,短链 PFASs 具有易于释放和迁移的特性. 例如,Gellrich 等^[58]的研究表明短链 PFASs 可以穿透土壤层,更容易随地表径流迁移,短链 PFASs 比长链 PFASs 具有更好的水溶性且在水环境中不易被去除^[58]. Ahrens 等^[86]发现短链 PFCA 主要出现在溶解相随水流迁移,而长链 PFCA 和 PFSA 则主要黏附在颗粒相中. 其次,由于部分短链 PFASs 在工业应用性能表现上略逊于长链 PFASs^[87],为达到相同效果需要使用更多的短链 PFASs,有可能引发更高环境释放和暴露^[16].

短链 PFASs 有可能成为未来水环境(尤其是饮用水)中含氟物质最主要的污染源. 虽然学界尚未就短链 PFASs 的环境持久性、生物累积性、毒性等危害性形成共识,但目前可以确认的是,持续升高的短链 PFASs 环境暴露和人体负荷将预示逐渐增大的生态环境和人体健康风险^[16]. 短链 PFASs 的环境风险研究现存在非常大的空白和不确定性,将成

为全球学术界和管理界未来持续关注的焦点。事实上,由于 PFASs 独特的理化特性,目前学术界对于其生物累积性的判别已经另有看法,而短链 PFASs 不断增高的环境浓度已引起各界对其环境风险的审视与关注。

综上所述,PFASs 具有纷繁复杂的物质谱系及衍生关系,非常广泛的物质范畴,以及难以全面识别的化学品种类及应用领域,而关于 PFOS 和 PFOA 以外的短链 PFASs 及其他 PFASs 的环境风险评估尚远不充分,当前关于 PFASs 风险鉴定与控制的物质范围仅限于部分长链 PFASs 的界定尚值得商榷。

3.2 PFASs 的人体暴露

与环境中日益增高的 PFASs 浓度相应的是人体体内的暴露不断增高。相比大量的环境监测研究而言,PFASs 的人体暴露研究并不多。本研究归纳了全球主要国家地区现有的人体中血液和母乳的 PFASs 的浓度水平的监测研究结果,分别如表 4 和表 5 所示。

当前世界各地人体血液和母乳中均可普遍检测

出各种 PFASs,其中检出最频繁、浓度最高的是 C8 的 PFOS 和 PFOA,其他主要检出物质有 PFHxS、PFNA 和 PFDA,短链 PFASs 暴露于人体血液和母乳中的监测报道较少。血液含量方面,全球普遍监测出长链 PFASs 浓度范围在 10 ~ 30 ng·mL⁻¹左右。其中,欧洲的波兰浓度最高,达 26.8 ng·mL⁻¹,而亚洲的日本和韩国水平相当,约为 20 ng·mL⁻¹[88~90]。随着全球范围内有关长链 PFASs 的管理控制措施的实施,西方发达国家人体血液中 PFOS、PFOA 的浓度正在逐步降低[91~93],而中国等发展中国家人体血液中 PFOA 的浓度有升高趋势,这一定程度上与全球含氟化工的产业转移有关[20]。而通过母乳的监测表明,如表 5 所示,全球平均 PFASs 浓度约为 100 pg·mL⁻¹,作为主产区的中国辽宁、福建和湖北省的浓度明显高于其他地区[94~96],显示出 PFASs 环境污染与人体暴露的明显相关性,同时也间接指示了在 PFASs 污染地区可能存在的较为显著的环境风险。但总体而言,关于短链 PFASs 的环境与健康风险评估尚存很大空白。

表 4 人体血液中长链 PFASs 的富集水平

Table 4 Accumulative levels of long-chain PFASs in human blood				
地区	样本数	采样年份	均值(范围)/ng·mL ⁻¹	文献
中国	233	2006 ~ 2008	14.61(4.45 ~ 39)	[97]
日本	200	2003 ~ 2004	19.85(14.2 ~ 30)	[89]
韩国	633	2008	18.48(12.33 ~ 28.86)	[90]
波兰	190	2002 ~ 2003	26.8(10.59 ~ 68.39)	[88]
乌克兰	203	2002 ~ 2003	11.63(3.02 ~ 74.1)	[88]
瑞典	270	2010 ~ 2011	16.92(6.03 ~ 44.07)	[98]
希腊	56	2009	14.19(5.745 ~ 31.885)	[99]
意大利	230	2008	11.01(0.28 ~ 81.5)	[100]

表 5 人体母乳中长链 PFASs 的富集水平

Table 5 Accumulative levels of long-chain PFASs in human milk				
地区	样本数	采样年份	均值(范围)/pg·mL ⁻¹	文献
中国辽宁	110	2007	334(—) ¹⁾	[101]
中国湖北	110	2007	174.5(—)	[101]
中国福建	90	2007	222.5(—)	[101]
中国北京	30	2008 ~ 2009	87.8(32.9 ~ 142.7)	[102]
日本京都	30	2010	194.5(110.9 ~ 278.1)	[102]
韩国首尔	30	2010	118.8(67.9 ~ 169.7)	[102]
美国马萨诸塞州	45	2004	196.56(79.3 ~ 860.2)	[95]
意大利	37	2010	105(39 ~ 372.5)	[103]
法国	30	2009	133.5(44.5 ~ 275.5)	[94]

1) “—”表示文章中无相关数据

4 PFASs 的替代品评估的现状与不确定性

目前 C4 和 C6 类短链 PFASs 及氟调聚物等含氟替代品已成为目前广为认可并已投入大规模生产

使用的方向[31]。现有针对替代品的研究还主要集中在评估其环境危害性。例如,Gomis 等[34]对 16 种含氟替代品进行的物化性质、环境归趋和危害性评估表明,由于含氟替代品与长链 PFASs 具有相似的

分子结构,替代品的基本环境危害性与其所替代的长链 PFASs 相近,尤其是环境持久性和长距离迁移性^[31,34]. 国际上已有一些组织和机构专门进行长链 PFASs 替代技术的研发,如美国的 PFOA 及相关化学品的替代品研发审查平台(New chemical review of alternatives for PFOA and related chemicals)^[104]. 然而,按照目前学界普遍接受的关于“风险”的定义,环境健康风险是“物质危害性”和“环境暴露”两方面的函数. 危害评估仅仅考虑短链 PFASs 自身的理化和毒理学性质,而缺乏短链 PFASs 实际环境释放和暴露信息,其结果并不能反映短链 PFASs 在环境中迁移转化和生物有效性,也难以客观反映短链 PFASs 在环境中的真实风险.

鉴于短链 PFASs 的环境和健康风险被日渐关注,非氟类替代品被呼吁作为更安全的替代发展趋势^[37]. 非氟类替代品如联苯类、磺基琥珀酸、碳氢表面活性剂、有机硅聚合物等可以在涂料、电镀、纺织等行业中应用^[1,30],但其替代效果往往远不如长链 PFASs. PFASs 替代技术方面的上述发展不足实际上阻碍了全球 PFASs 风险管理行动的开展. 未来无论是含氟替代技术、还是非氟替代技术,都有待更进一步的环境风险评估,而 PFASs 相关替代产品的物质信息公开则将是 PFASs 及其替代品风险评估和风险管理将面临的更大挑战.

5 结论与展望

(1)PFASs 作为当今一类广泛用于工农业生产和社会生活的多用途化学品,具有复杂的物质谱系、衍生关系及庞大的物质范畴,目前难以全面识别的化学品种类及应用领域. 短链 PFASs 作为主要替代品形式大量涌现,但其危害性尚存很多研究空白及不确定性,当前以长、短链划分的 PFASs 环境风险控制物质范围界定值得商榷. 短链 PFASs 近年来急剧增高的环境浓度,加之其显著的环境持久性和迁移性,使其环境暴露和风险研究需要进一步拓展和深化;而基于短链 PFASs 并可能成为其前体物质的 FTOH 等 nPFASs 的环境风险评估研究则存在更大不足. 商业秘密及市场竞争因素使得全球 PFASs 替代技术普遍缺乏公开性和透明度,PFASs 替代品的物质结构和风险信息比较缺乏. 市场现存的多种含氟替代品与其所替代的长链 PFASs 不仅具有相近的结构,而且具有相近的环境危害性. 非氟替代品可能作为未来 PFASs 安全替代技术的发展趋势,但其替代效果和信息公开性方面目前还存在很大不

足,且环境风险性更有待评估.

(2)随着国际学界及管理界逐渐意识到 PFASs 所具有的复杂的物质谱系、衍生关系及庞大的物质范畴,近年来,国际上针对 PFASs 的研究在总体上呈现出由以 PFOS 和 PFOA 等为代表的长链 PFAAs 逐步扩展到短链 PFAAs,再扩展到其他非 PFAAs 的 PFASs 物种(如 nPFASs 及其他含氟替代品)的发展趋势. 当前亟待解决及未来将持续研究关注的几个主要问题应包括:关于短链 PFASs 的生物累积性和环境迁移性等关键环境危害性的评估指标和方法的优化,及其环境释放和多介质环境归趋;nPFASs 的环境归趋及其作为短链 PFAAs 潜在前体物的转化和贡献;未来 PFASs 含氟或非氟替代品的风险识别和评估.

参考文献:

- [1] OECD/UNEP Global PFC Group. Synthesis paper on per-and polyfluorinated chemicals (PFCs) [R]. Paris: OECD, 2013. 1-59.
- [2] Buck R C, Franklin J, Berger U, *et al.* Perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances in the environment: terminology, classification, and origins [J]. *Integrated Environmental Assessment and Management*, 2011, 7(4): 513-541.
- [3] Kissa E. Fluorinated surfactants and repellents [M]. New York: Marcel Dekker, 2001. 1-615.
- [4] Giesy J P, Kannan K, Jones P D. Global biomonitoring of perfluorinated organics [J]. *The Scientific World Journal*, 2001, 1: 627-629.
- [5] Hansen K J, Clemen L A, Ellefson M E, *et al.* Compound-specific, quantitative characterization of organic: fluorochemicals in biological matrices [J]. *Environmental Science & Technology*, 2001, 35(4): 766-770.
- [6] Houde M, De Silva A O, Muir D C G, *et al.* Monitoring of perfluorinated compounds in aquatic biota: an updated review [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(19): 7962-7973.
- [7] Greaves A K, Letcher R J, Sonne C, *et al.* Tissue-Specific concentrations and patterns of perfluoroalkyl carboxylates and sulfonates in East Greenland polar bears [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, 46(21): 11575-11583.
- [8] Vestergren R, Cousins I T. Tracking the pathways of human exposure to perfluorocarboxylates [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, 43(15): 5565-5575.
- [9] POPAC. Listing of POPs in the Stockholm Convention [EB/OL]. <http://chm.pops.int/TheConvention/ThePOPs/ListingofPOPs/tabid/2509/Default.aspx>, 2015-03-22.
- [10] USEPA. 2010/2015 PFOA stewardship program [EB/OL]. <http://www.epa.gov/oppt/pfoa/pubs/stewardship/index.html>, 2015-01-26.
- [11] ECHA. Candidate list of substances of very high concern for

- Authorisation [EB/OL]. <http://echa.europa.eu/web/guest/candidate-list-table>, 2014-12-17.
- [12] OECD. Portal on perfluorinated chemicals [EB/OL]. <http://www.oecd.org/ehs/pfc/>, 2014-12-03.
- [13] Bao J, Liu W, Liu L, *et al.* Perfluorinated compounds in the environment and the blood of residents living near fluorochemical plants in Fuxin, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(19): 8075-8080.
- [14] Zhou Z, Liang Y, Shi Y L, *et al.* Occurrence and transport of perfluoroalkyl acids (PFAAs), including Short-Chain PFAAs in Tangxun Lake, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(16): 9249-9257.
- [15] Meng J, Wang T Y, Wang P, *et al.* Perfluoroalkyl substances in Daling River adjacent to fluorine industrial parks: implication from industrial emission [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2015, **94**(1): 34-40.
- [16] Scheringer M, Trier X, Cousins I T, *et al.* Helsingør Statement on poly-and perfluorinated alkyl substances (PFASs) [J]. *Chemosphere*, 2014, **114**: 337-339.
- [17] Zhang L, Liu J G, Hu J X, *et al.* The inventory of sources, environmental releases and risk assessment for perfluorooctane sulfonate in China [J]. *Environmental Pollution*, 2012, **165**: 193-198.
- [18] Wang Z Y, Cousins I T, Scheringer M, *et al.* Global emission inventories for C₄-C₁₄ perfluoroalkyl carboxylic acid (PFCA) homologues from 1951 to 2030, Part I: production and emissions from quantifiable sources [J]. *Environment International*, 2014, **70**: 62-75.
- [19] Wang Z Y, Cousins I T, Scheringer M, *et al.* Global emission inventories for C₄-C₁₄ perfluoroalkyl carboxylic acid (PFCA) homologues from 1951 to 2030, part II: The remaining pieces of the puzzle [J]. *Environment International*, 2014, **69**: 166-176.
- [20] Li L, Zhai Z H, Liu J G, *et al.* Estimating industrial and domestic environmental releases of perfluorooctanoic acid and its salts in China from 2004 to 2012 [J]. *Chemosphere*, 2015, **129**: 100-109.
- [21] Wang Y W, Fu J J, Wang T, *et al.* Distribution of perfluorooctane sulfonate and other perfluorochemicals in the ambient environment around a Manufacturing Facility in China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(21): 8062-8067.
- [22] Wang T Y, Khim J S, Chen C L, *et al.* Perfluorinated compounds in surface waters from Northern China: comparison to level of industrialization [J]. *Environment International*, 2012, **42**: 37-46.
- [23] Li F S, Sun H W, Hao Z N, *et al.* Perfluorinated compounds in Haihe River and Dagou Drainage Canal in Tianjin, China [J]. *Chemosphere*, 2011, **84**(2): 265-271.
- [24] Gawor A, Shunthirasingham C, Hayward S J, *et al.* Neutral polyfluoroalkyl substances in the global Atmosphere [J]. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 2014, **16**(3): 404-413.
- [25] USEPA. Long-chain perfluorinated chemicals (PFCs) action plan summary [EB/OL]. <http://www.epa.gov/oppt/existingchemicals/pubs/actionplans/pfcs.html>, 2015-03-12.
- [26] USEPA. Regulatory action on PFAS/LCPFAC compounds [EB/OL]. <http://epa.gov/oppt/pfoa/pubs/pfas.html>, 2015-03-12.
- [27] Prevedouros K, Cousins I T, Buck R C, *et al.* Sources, fate and transport of perfluorocarboxylates [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(1): 32-44.
- [28] Conder J M, Hoke R A, De W W, *et al.* Are PFCAs bioaccumulative? A critical review and comparison with regulatory criteria and persistent lipophilic compounds [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42**(4): 995-1003.
- [29] Vierke L, Staude C, Biegel-E A, *et al.* Perfluorooctanoic acid (PFOA)-main concerns and regulatory developments in Europe from an environmental point of view [J]. *Environmental Sciences Europe*, 2012, **24**: 16.
- [30] POPRC. Assessment of alternatives to perfluorooctane sulfonic acid in open applications [R]. Geneva: UNEP, 2012. 1-8.
- [31] Wang Z Y, Cousins I T, Scheringer M, *et al.* Fluorinated alternatives to long-chain perfluoroalkyl carboxylic acids (PFCAs), perfluoroalkane sulfonic acids (PFASs) and their potential precursors [J]. *Environment International*, 2013, **60**: 242-248.
- [32] POPRC. Risk profile on perfluorooctane sulfonate [R]. Geneva: UNEP, 2006. 1-29.
- [33] OECD. Co-operation on existing chemicals-hazard assessment of perfluorooctane sulfonate and its salts [R]. Paris: OECD, 2002. 15-55.
- [34] Gomis M I, Wang Z Y, Scheringer M, *et al.* A modeling assessment of the physicochemical properties and environmental fate of emerging and novel per- and polyfluoroalkyl substances [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **505**: 981-991.
- [35] Parsons J R, Sá ez M, Dolfing J, *et al.* Biodegradation of perfluorinated compounds [J]. *Reviews of Environmental Contamination and Toxicology*, 2008, **196**: 53-71.
- [36] Young C J, Mabury S A. Atmospheric perfluorinated acid precursors: chemistry, occurrence, and impacts [J]. *Reviews of Environmental Contamination and Toxicology*, 2010, **208**: 1-109.
- [37] Wang Z Y, Cousins I T, Scheringer M, *et al.* Hazard assessment of fluorinated alternatives to long-chain perfluoroalkyl acids (PFAAs) and their precursors: status quo, ongoing challenges and possible solutions [J]. *Environment International*, 2015, **75**: 172-179.
- [38] Hurley M D, Wallington T J, Andersen M P S, *et al.* Atmospheric chemistry of fluorinated alcohols: Reaction with Cl atoms and OH radicals and atmospheric lifetimes [J]. *The Journal of Physical Chemistry*, 2004, **108**(11): 1973-1979.
- [39] Andersen M P S, Toft A, Nielsen O J, *et al.* Atmospheric chemistry of perfluorinated aldehyde hydrates (n-C_xF_{2x+1}CH(OH)₂, x = 1, 3, 4): hydration, dehydration, and kinetics and

- mechanism of Cl atom and OH radical initiated oxidation [J]. The Journal of Physical Chemistry, 2006, **110** (32): 9854-9860.
- [40] UNEP. Final act of the conference of plenipotentiaries on the Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants [R]. Stockholm: UNEP, 2001. 1-44.
- [41] Martin J W, Mabury S A, Solomon K R, *et al.* Bioconcentration and tissue distribution of perfluorinated acids in rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*) [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2003, **22**(1): 196-204.
- [42] Felizter S, McLachlan M S, De V P. Uptake of perfluorinated alkyl acids by hydroponically grown Lettuce (*Lactuca sativa*) [J]. Environmental Science & Technology, 2012, **46** (21): 11735-11743.
- [43] Felizter S, McLachlan M S, De V P. Root uptake and translocation of perfluorinated alkyl acids by three hydroponically grown crops [J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2014, **62**(15): 3334-3342.
- [44] Krippner J, Brunn H, Falk S, *et al.* Effects of chain length and pH on the uptake and distribution of perfluoroalkyl substances in maize (*Zea mays*) [J]. Chemosphere, 2014, **94**: 85-90.
- [45] Armitage J M, Arnot J A, Wania F. Potential role of phospholipids in determining the internal tissue distribution of perfluoroalkyl acids in biota [J]. Environmental Science & Technology, 2012, **46**(22): 12285-12286.
- [46] Armitage J M, Arnot J A, Wania F, *et al.* Development and evaluation of a mechanistic bioconcentration model for ionogenic organic chemicals in fish [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2013, **32**(1): 115-128.
- [47] Ng C A, Hungerbühler K. Bioconcentration of perfluorinated alkyl acids: How important is specific binding [J]. Environmental Science & Technology, 2013, **47** (13): 7214-7223.
- [48] Ng C A, Hungerbühler K. Bioaccumulation of perfluorinated alkyl acids: observations and models [J]. Environmental Science & Technology, 2014, **48**(9): 4637-4648.
- [49] Ulhaq M, Carlsson G, Örn S, *et al.* Comparison of developmental toxicity of seven perfluoroalkyl acids to zebrafish embryos [J]. Environmental Toxicology and Pharmacology, 2013, **36**(2): 423-426.
- [50] Olsen G W, Lange C C, Ellefson M E, *et al.* Temporal trends of perfluoroalkyl concentrations in American Red Cross adult blood donors, 2000-2010 [J]. Environmental Science & Technology, 2012, **46**(11): 6330-6338.
- [51] Chengelis C P, Kirkpatrick J B, Myers N R, *et al.* Comparison of the toxicokinetic behavior of perfluorohexanoic acid (PFHxA) and nonafluorobutane-1-sulfonic acid (PFBS) in cynomolgus monkeys and rats [J]. Reproductive Toxicology, 2009, **27** (3-4): 400-406.
- [52] Chengelis C P, Kirkpatrick J B, Radovsky A, *et al.* A 90-day repeated dose oral (gavage) toxicity study of perfluorohexanoic acid (PFHxA) in rats (with functional observational battery and motor activity determinations) [J]. Reproductive Toxicology, 2009, **27**(3-4): 342-351.
- [53] Gannon S A, Johnson T, Nabb D L, *et al.* Absorption, distribution, metabolism, and excretion of [^{14}C]-perfluorohexanoate ([^{14}C]-PFHx) in rats and mice [J]. Toxicology, 2011, **283**(1): 55-62.
- [54] Sundström M, Chang S C, Noker P E, *et al.* Comparative pharmacokinetics of perfluorohexanesulfonate (PFHxS) in rats, mice, and monkeys [J]. Reproductive Toxicology, 2012, **33** (4): 441-451.
- [55] Latala A, Nedzi M, Stepnowski P. Acute toxicity assessment of perfluorinated carboxylic acids towards the Baltic microalgae [J]. Environmental Toxicology and Pharmacology, 2009, **28** (2): 167-171.
- [56] Newsted J L, Beach S A, Gallagher S P, *et al.* Acute and chronic effects of perfluorobutane sulfonate (PFBS) on the mallard and northern bobwhite quail [J]. Archives of Environmental Contamination and Toxicology, 2008, **54** (3): 535-545.
- [57] Iwai H, Hoberman A M. Oral (gavage) combined developmental and perinatal/postnatal reproduction toxicity study of ammonium salt of perfluorinated hexanoic acid in mice [J]. International Journal of Toxicology, 2014, **33**(3): 219-237.
- [58] Gellrich V, Stahl T, Knepper T P. Behavior of perfluorinated compounds in soils during leaching experiments [J]. Chemosphere, 2012, **87**(9): 1052-1056.
- [59] Mcmurdo C J, Ellis D A, Webster E, *et al.* Aerosol enrichment of the surfactant PFO and mediation of the water-air transport of gaseous PFOA [J]. Environmental Science & Technology, 2008, **42**(11): 3969-3974.
- [60] Martin J W, Smithwick M M, Braune B M, *et al.* Identification of long-chain perfluorinated acids in biota from the Canadian Arctic [J]. Environmental Science & Technology, 2004, **38** (2): 373-380.
- [61] Wania F. A global mass balance analysis of the source of perfluorocarboxylic acids in the Arctic Ocean [J]. Environmental Science & Technology, 2007, **41**(13): 4529-4535.
- [62] McLachlan M S, Holmström K E, Reth M, *et al.* Riverine discharge of perfluorinated carboxylates from the European continent [J]. Environmental Science & Technology, 2007, **41** (21): 7260-7265.
- [63] Exner M, Färber H. Perfluorinated surfactants in surface and drinking waters [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2006, **13**(5): 299-307.
- [64] Naile J E, Khim J S, Wang T Y, *et al.* Perfluorinated compounds in water, sediment, soil and biota from estuarine and coastal areas of Korea [J]. Environmental Pollution, 2010, **158** (5): 1237-1244.
- [65] Nakayama S, Strynar M J, Helfant L, *et al.* Perfluorinated compounds in the cape fear drainage basin in North Carolina [J]. Environmental Science & Technology, 2007, **41** (15): 5271-5276.

- [66] Lasier P J, Washington J W, Hassan S M, *et al.* Perfluorinated chemicals in surface waters and sediments from northwest Georgia, USA, and their bioaccumulation in *Lumbriculus variegatus* [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2011, **30**(10): 2194-2201.
- [67] Rostkowski P, Yamashita N, So I M K, *et al.* Perfluorinated compounds in streams of the Shihwa industrial zone and Lake Shihwa, South Korea [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2006, **25**(9): 2374-2380.
- [68] Senthilkumar K, Ohi E, Sajwan K, *et al.* Perfluorinated compounds in river water, river sediment, market fish, and wildlife samples from Japan [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2007, **79**(4): 427-431.
- [69] Lam N H, Cho C R, Lee J S, *et al.* Perfluorinated alkyl substances in water, sediment, plankton and fish from Korean rivers and lakes: A nationwide survey [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **491-492**: 154-162.
- [70] Sinclair E, Mayack D T, Roblee K, *et al.* Occurrence of perfluoroalkyl surfactants in water, fish, and birds from New York State [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2006, **50**(3): 398-410.
- [71] Ericson I, Nadal M, Van Bavel B, *et al.* Levels of perfluorochemicals in water samples from Catalonia, Spain: is drinking water a significant contribution to human exposure [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2008, **15**(7): 614-619.
- [72] Takemine S, Matsumura C, Yamamoto K, *et al.* Discharge of perfluorinated compounds from rivers and their influence on the coastal seas of Hyogo prefecture, Japan [J]. *Environmental Pollution*, 2014, **184**: 397-404.
- [73] Loos R, Locoro G, Huber T, *et al.* Analysis of perfluorooctanoate (PFOA) and other perfluorinated compounds (PFCs) in the River Po watershed in N-Italy [J]. *Chemosphere*, 2008, **71**(2): 306-313.
- [74] Yeung L W Y, Yamashita N, Taniyasu S, *et al.* A survey of perfluorinated compounds in surface water and biota including dolphins from the Ganges River and in other waterbodies in India [J]. *Chemosphere*, 2009, **76**(1): 55-62.
- [75] Mak Y L, Taniyasu S, Yeung L W Y, *et al.* Perfluorinated compounds in tap water from China and several other countries [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(13): 4824-4829.
- [76] Wang T Y, Wang P, Meng J, *et al.* A review of sources, multimedia distribution and health risks of perfluoroalkyl acids (PFAAs) in China [J]. *Chemosphere*, 2015, **129**: 87-89.
- [77] So M K, Miyake Y, Yeung W Y, *et al.* Perfluorinated compounds in the Pearl River and Yangtze River of China [J]. *Chemosphere*, 2007, **68**(11): 2085-2095.
- [78] Zhang Y Y, Lai S C, Zhao Z, *et al.* Spatial distribution of perfluoroalkyl acids in the Pearl River of Southern China [J]. *Chemosphere*, 2013, **93**(8): 1519-1525.
- [79] 赵洋洋, 姚义鸣, 孙红文. 天津市松针中可挥发全(多)氟取代烷基化合物的分布[J]. *环境化学*, 2014, **33**(12): 2102-2108.
- [80] Li J, Del V S, Schuster J, *et al.* Perfluorinated compounds in the Asian atmosphere [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(17): 7241-7248.
- [81] Oono S, Harada K H, Mahmoud M A M, *et al.* Current levels of airborne polyfluorinated telomers in Japan [J]. *Chemosphere*, 2008, **73**(6): 932-937.
- [82] Oono S, Matsubara E, Harada K H, *et al.* Survey of airborne polyfluorinated telomers in Keihan area, Japan [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2008, **80**(2): 102-106.
- [83] Barber J L, Berger U, Chaemfa C, *et al.* Analysis of per- and polyfluorinated alkyl substances in air samples from Northwest Europe [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2007, **9**(6): 530-541.
- [84] Stock N L, Lau F K, Ellis D A, *et al.* Polyfluorinated telomer alcohols and sulfonamides in the North American troposphere [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(4): 991-996.
- [85] Jahnke A, Ahrens L, Ebinghaus R, *et al.* Urban versus remote air concentrations of fluorotelomer alcohols and other polyfluorinated alkyl substances in Germany [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(3): 745-752.
- [86] Ahrens L, Taniyasu S, Yeung L W Y, *et al.* Distribution of polyfluoroalkyl compounds in water, suspended particulate matter and sediment from Tokyo Bay, Japan [J]. *Chemosphere*, 2010, **79**(3): 266-272.
- [87] Renner R. The long and the short of perfluorinated replacements [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(1): 12-13.
- [88] Lindh C H, Rylander L, Toft G, *et al.* Blood serum concentrations of perfluorinated compounds in men from Greenlandic Inuit and European populations [J]. *Chemosphere*, 2012, **88**(11): 1269-1275.
- [89] Harada K, Koizumi A, Saito N, *et al.* Historical and geographical aspects of the increasing perfluorooctanoate and perfluorooctane sulfonate contamination in human serum in Japan [J]. *Chemosphere*, 2007, **66**(2): 293-301.
- [90] Ji K, Kim S, Kho Y, *et al.* Serum concentrations of major perfluorinated compounds among the general population in Korea: dietary sources and potential impact on thyroid hormones [J]. *Environment International*, 2012, **45**: 78-85.
- [91] Glynn A, Berger U, Bignert A, *et al.* Perfluorinated alkyl acids in blood serum from primiparous women in Sweden: Serial sampling during pregnancy and nursing, and temporal trends 1996-2010 [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(16): 9071-9079.
- [92] Kato K, Wong L Y, Jia L T, *et al.* Trends in exposure to polyfluoroalkyl chemicals in the U. S. Population: 1999-2008 [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(19): 8037-8045.

- [93] Yeung L W Y, Robinson S J, Koschorreck J, *et al.* Part II. A temporal study of PFOS and its precursors in human plasma from two German cities in 1982-2009 [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(8): 3875-3882.
- [94] Kadar H, Veyrand B, Barbarossa A, *et al.* Development of an analytical strategy based on liquid chromatography-high resolution mass spectrometry for measuring perfluorinated compounds in human breast milk: Application to the generation of preliminary data regarding perinatal exposure in France [J]. *Chemosphere*, 2011, **85**(3): 473-480.
- [95] Tao L, Kannan K, Wong C M, *et al.* Perfluorinated compounds in human milk from Massachusetts, U.S.A [J]. *Environmental Science and Technology*, 2008, **42**(8): 3096-3101.
- [96] Kubwabo C, Kosarac I, Lalonde K. Determination of selected perfluorinated compounds and polyfluoroalkyl phosphate surfactants in human milk [J]. *Chemosphere*, 2013, **91**(6): 771-777.
- [97] Pan Y Y, Shi Y L, Wang J M, *et al.* Concentrations of perfluorinated compounds in human blood from twelve cities in China [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2010, **29**(12): 2695-2701.
- [98] Bjermo H, Damerud P O, Pearson M, *et al.* Serum concentrations of perfluorinated alkyl acids and their associations with diet and personal characteristics among Swedish adults [J]. *Molecular Nutrition & Food Research*, 2013, **57**(12): 2206-2215.
- [99] Vassiliadou I, Costopoulou D, Ferderigou A, *et al.* Levels of perfluorooctanesulfonate (PFOS) and perfluorooctanoate (PFOA) in blood samples from different groups of adults living in Greece [J]. *Chemosphere*, 2010, **80**(10): 1199-1206.
- [100] Ingelido A M, Marra V, Abballe A, *et al.* Perfluorooctanesulfonate and perfluorooctanoic acid exposures of the Italian general population [J]. *Chemosphere*, 2010, **80**(10): 1125-1130.
- [101] Liu J Y, Li J G, Zhao Y F, *et al.* The occurrence of perfluorinated alkyl compounds in human milk from different regions of China [J]. *Environment International*, 2010, **36**(5): 433-438.
- [102] Fujii Y, Yan J X, Harada K H, *et al.* Levels and profiles of long-chain perfluorinated carboxylic acids in human breast milk and infant formulas in East Asia [J]. *Chemosphere*, 2012, **86**(3): 315-321.
- [103] Barbarossa A, Masetti R, Gazzotti T, *et al.* Perfluoroalkyl substances in human milk: A first survey in Italy [J]. *Environment International*, 2013, **51**: 27-30.
- [104] USEPA. New chemical review of alternatives for PFOA and related chemicals [EB/OL]. <http://www.epa.gov/oppt/pfoa/pubs/altnewchems.html>, 2014-09-09.

CONTENTS

Characterizing Beijing's Airborne Bacterial Communities in PM _{2.5} and PM ₁₀ Samples During Haze Pollution Episodes Using 16S rRNA Gene Analysis Method	WANG Bu-ying, LANG Ji-dong, ZHANG Li-na, <i>et al.</i> (2727)
Distribution Characteristics and Source Analysis of Dustfall Trace Elements During Winter in Beijing	XIONG Qiu-lin, ZHAO Wen-ji, GUO Xiao-yu, <i>et al.</i> (2735)
Pollution Characteristics of Aldehydes and Ketones Compounds in the Exhaust of Beijing Typical Restaurants	CHENG Jing-chen, CUI Tong, HE Wan-qing, <i>et al.</i> (2743)
Emission Characteristics of Vehicle Exhaust in Beijing Based on Actual Traffic Flow Information	FAN Shou-bin, TIAN Ling-di, ZHANG Dong-xu, <i>et al.</i> (2750)
Chemical Compositions in PM _{2.5} and Its Impact on Visibility in Summer in Pearl River Delta, China	YANG Yi-hong, QU Qun, LIU Sui-xin, <i>et al.</i> (2758)
Health Risk Assessment of Tunnel Workers Based on the Investigation and Analysis of Occupational Exposure to PM ₁₀	XIANG Hua-li, YANG Jun, QIU Zhen-zhen, <i>et al.</i> (2768)
Analysis on Emission Inventory and Temporal-Spatial Characteristics of Pollutants from Key Coal-Fired Stationary Sources in Jiangsu Province by On-Line Monitoring Data	ZHANG Ying-jie, KONG Shao-fei, TANG Li-li, <i>et al.</i> (2775)
Hydrogen and Oxygen Isotopic Compositions of Precipitation and Its Water Vapor Sources in Eastern Qaidam Basin	ZHU Jian-jia, CHEN Hui, GONG Guo-li (2784)
Distribution Characteristics of Sedimentary Pigments in the Changjiang Estuary and Zhe-Min Coast and Its Implications	LI Dong, YAO Peng, ZHAO Bin, <i>et al.</i> (2791)
Nutrients Input Characteristics of the Yangtze River and Wangyu River During the "Water Transfers on Lake Taihu from the Yangtze River"	PAN Xiao-xue, MA Ying-qun, QIN Yan-wen, <i>et al.</i> (2800)
Pollution Characteristics of Surface Runoff of Typical Town in Chongqing City	WANG Long-tao, DUAN Bing-zheng, ZHAO Jian-wei, <i>et al.</i> (2809)
Effect of Water and Sediment Regulation on the Transport of Particulate Organic Carbon in the Lower Yellow River	ZHANG Ting-ting, YAO Peng, WANG Jin-peng, <i>et al.</i> (2817)
Concentration and Source of Dissolved Organic Carbon in Snowpits of the Tibetan Plateau	YAN Fang-ping, KANG Shi-chang, CHEN Peng-fei, <i>et al.</i> (2827)
Variations of Inorganic Carbon and Its Impact Factors in Surface-Layer Waters in a Groundwater-Fed Reservoir in Karst Area, SW China	LI Jian-hong, PU Jun-bing, YUAN Dao-xian, <i>et al.</i> (2833)
Modeling the Influencing Factors of Karstification and Karst Carbon Cycle in Laboratory	ZHAO Rui-yi, LÜ Xian-fu, DUAN Yi-fan (2843)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of HCHs and DDTs in Surface Water Bodies in Xinxiang	FENG Jing-lan, YU Hao, LIU Shu-hui, <i>et al.</i> (2849)
Comparison Study of the Alkanes in Different Aquifer Medium Under Qingmuguan Underground System	LIANG Zuo-bing, SUN Yu-chuan, WANG Zun-bo, <i>et al.</i> (2857)
Spatial Distribution Characteristics of Different Species Mercury in Water Body of Changshou Lake in Three Gorges Reservoir Region	BAI Wei-yang, ZHANG Cheng, ZHAO Zheng, <i>et al.</i> (2863)
Influence of Marine Aquaculture Around Coal Power Plant on Mercury Species Change in Aquatic Ecological Environment	LIANG Peng, WANG Yuan-na, YOU Qiong-zhi, <i>et al.</i> (2870)
Using $\delta^{34}\text{S}\text{-SO}_4^{2-}$ and $\delta^{15}\text{N}\text{-NO}_3^-$, $\delta^{18}\text{O}\text{-NO}_3^-$ to Trace the Sources of Sulfur and Nitrate in Lihu Lake Underground Water, Guangxi, China	Li Rui, XIAO Qiong, LIU Wen, <i>et al.</i> (2877)
Ecological Effects of Algae Blooms Cluster: The Impact on Chlorophyll and Photosynthesis of the Water Hyacinth	LIU Guo-feng, HE Jun, YANG Yi-zhong, <i>et al.</i> (2887)
Influence of Natural Dissolved Organic Matter on the Passive Sampling Technique and Its Application	YU Shang-yun, ZHOU Yan-mei (2895)
Adhesion Force Analysis of Protein Fouling of PVDF Ultrafiltration Membrane Using Atomic Force Microscope	WANG Xu-dong, ZHOU Miao, MENG Xiao-rong, <i>et al.</i> (2900)
Influence of CNTs on Photodegradation of Salbutamol in Water Environment	WANG Qi, HAN Jia-rui, WEI Bo-fan, <i>et al.</i> (2906)
Preparation of $\beta\text{-In}_2\text{S}_3$ and Catalytic Degradation of Oxytetracycline Under Solar Light Irradiation	AI Cui-ling, ZHOU Dan-dan, ZHANG Rong-rong, <i>et al.</i> (2911)
Nitrogen Release Performance of Sediments in Drainage Pipeline	CHEN Hong, ZHUO Qiong-fang, XU Zhen-cheng, <i>et al.</i> (2918)
Analysis of Precipitation Formation in Biofilm CANON Reactor and Its Effect on Nitrogen Removal	FU Kun-ming, WANG Hui-fang, ZUO Zao-rong, <i>et al.</i> (2926)
Optimization of Energy Saving Measures with ABR-MBR Integrated Process	WU Peng, LU Shuang-jun, XU Yue-zhong, <i>et al.</i> (2934)
Abundance and Community Composition of Ammonia-Oxidizing Archaea in Two Completely Autotrophic Nitrogen Removal over Nitrite Systems	GAO Jing-feng, LI Ting, ZHANG Shu-jun, <i>et al.</i> (2939)
Formation Mechanism of Aerobic Granular Sludge and Removal Efficiencies in Integrated ABR-CSTR Reactor	WU Kai-cheng, WU Peng, XU Yue-zhong, <i>et al.</i> (2947)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Surface Soil of Pearl River Delta Economic Zone	DOU Lei, YANG Guo-yi (2954)
Risk Assessment of Heavy Metal Contamination in Farmland Soil in Du'an Autonomous County of Guangxi Zhuang Autonomous Region, China	WU Yang, YANG Jun, ZHOU Xiao-yong, <i>et al.</i> (2964)
Assessment of Heavy Metal Pollution and Its Health Risk of Surface Dusts from Parks of Kaifeng, China	DUAN Hai-jing, CAI Xiao-qiang, RUAN Xin-ling, <i>et al.</i> (2972)
Responses of Soil and Plant ^{15}N Natural Abundance to Long-term N Addition in an N-Saturated <i>Pinus massoniana</i> Forest in Southwest China	LIU Wen-jing, KANG Rong-hua, ZHANG Ting, <i>et al.</i> (2981)
Latitudinal Changes in Plant Stoichiometric and Soil C, N, P Stoichiometry in Loess Plateau	LI Ting, DENG Qiang, YUAN Zhi-You, <i>et al.</i> (2988)
Open-top Chamber for <i>in situ</i> Research on Response of Mercury Enrichment in Rice to the Rising Gaseous Elemental Mercury in the Atmosphere	CHEN Jian, WANG Zhang-wei, ZHANG Xiao-shan, <i>et al.</i> (2997)
Influence of Uranium in <i>Pteris vittata</i> L. Inoculated by Arbuscular Mycorrhizal Fungus	ZHENG Wen-jun, WANG Ming-yuan (3004)
Impact on the Microbial Biomass and Metabolic Function of Carbon Source by Black Soil During Rice Cultivation	ZHAO Zhi-rui, CUI Bing-jian, HOU Yan-lin, <i>et al.</i> (3011)
Effect of Decomposing Products of Immobilized Carriers on Desorption of Pyrene in Contaminated Soil	TONG Dong-li, SHUANG Sheng-qing, LI Xiao-jun, <i>et al.</i> (3018)
Solidification/Stabilization of Chromite Ore Processing Residue (COPR) Using Zero-Valent Iron and Lime-Activated Ground Granulated Blast Furnace Slag	CHEN Zhong-lin, LI Jin-chunzi, WANG Bin-yuan, <i>et al.</i> (3026)
Stabilization of Cadmium Contaminated Soils by Ferric Ion Modified Attapulgite (Fe/ATP): Characterizations and Stabilization Mechanism	YANG Rong, LI Hong-bo, ZHOU Yong-li, <i>et al.</i> (3032)
Improving Agricultural Safety of Soils Contaminated with Polycyclic Aromatic Hydrocarbons by In Situ Bioremediation	JIAO Hai-hua, PAN Jian-gang, XU Sheng-jun, <i>et al.</i> (3038)
Competence of Cd Phytoremediation in Cd-OCDF Co-contaminated Soil Using <i>Mirabilis jalapa</i> L.	ZHANG Xing-li, ZOU Wei, ZHOU Qi-xing (3045)
Effects of Soil Moisture on Phytoremediation of As-Contaminated Soils Using As-Hyperaccumulator <i>Pteris vittata</i> L.	LIU Qiu-xin, YAN Xiu-lan, LIAO Xiao-yong, <i>et al.</i> (3056)
Effects of Phosphate Rock and Decomposed Rice Straw Application on Lead Immobilization in a Contaminated Soil	TANG Fan, HU Hong-qing, SU Xiao-juan, <i>et al.</i> (3062)
Residue and Degradation of Roxarsone in the System of Soil-Vegetable	SHAO Ting, YAO Chun-xia, SHEN Yuan-yuan, <i>et al.</i> (3068)
Acute Toxicity and Safety Assessment of Three Typical Organic Pollutants to Two Aquatic Organisms	YANG Yang, LI Ya-jie, CUI Yi-bin, <i>et al.</i> (3074)
Effects of Oil Pollutants on the Performance of Marine Benthonic Microbial Fuel Cells and Its Acceleration of Degradation	MENG Yao, FU Yu-bin, LIANG Sheng-kang, <i>et al.</i> (3080)
Microwave In-situ Regeneration of Cu-Mn-Ce/ZSM Catalyst Adsorbed Toluene and Distribution of Bed Temperature	HU Xue-jiao, BO Long-li, LIANG Xin-xin, <i>et al.</i> (3086)
Impact of Thermal Treatment on Biogas Production by Anaerobic Digestion of High-solid-content Swine Manure	HU Yu-ying, WU Jing, WANG Shi-feng, <i>et al.</i> (3094)
Impact of Phosphogypsum Wastes on the Wheat Growth and CO ₂ Emissions and Evaluation of Economic-environmental Benefit	LI Ji, WU Hong-sheng, GAO Zhi-qiu, <i>et al.</i> (3099)
Status Quo, Uncertainties and Trends Analysis of Environmental Risk Assessment for PFASs	HAO Xue-wen, LI Li, WANG Jie, <i>et al.</i> (3106)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2015年8月15日 第36卷 第8期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 8 Aug. 15, 2015

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行