环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社

2020

Vol.41 No.1

第41卷 第1期

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第41卷 第1期
2020年1月15日

目 次

近20年来中国 $PM_{2.5}$ 污染演变的时空过程 …… 时燕, 刘瑞梅, 罗毅, 杨昆 (1)
2007~2016年上海颗粒物浓度特征与气候背景异同分析 …… 郑庆锋, 史军, 谈建国, 段玉森, 林燕芬, 徐卫忠 (14)
夏季大气 $PM_{2.5}$ 中元素特征及源解析:以华中地区平顶山-随州-武汉为例 …… 刘威杰, 石明明, 程铖, 黎荧, 朱戈昊, 邢新丽, 孔少飞, 张家泉, 祁士华 (23)
呼包鄂地区冬季、夏季 $PM_{2.5}$ 污染特征 …… 李伊明, 刘佳媛, 史国良, 皇甫延琦, 张昕, 杨奕, 冯银厂 (31)
2019年元旦前后石家庄市重污染过程 $PM_{2.5}$ 污染特征及来源解析 …… 周静博, 段菁春, 王建国, 杨鹏, 刘焕武, 李梅, 靳伟 (39)
基于模型模拟的成都市 $PM_{2.5}$ 污染来源解析 …… 许艳玲, 易爱华, 薛文博 (50)
北京市 $PM_{2.5}$ 中砷污染特征 …… 石绍萱, 杨艳蓉, 秦娟娟, 周雪明, 段菁春, 谭吉华, 陈荣志 (57)
夏秋季宁波市气态元素汞(GEM)污染特征及潜在源区贡献分析 …… 易辉, 林佳梅, 蔡秋亮, 王克强, 陈进生, 佟磊, 李建荣, 肖航 (65)
安阳市大气 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子季节特征及来源解析 …… 孙有昌, 姜楠, 王申博, 段时光, 张瑞芹 (75)
新乡市夏冬季节 $PM_{2.5}$ 稳定碳同位素特征分析 …… 闫广轩, 宋鑫, 张靖雯, 张朴真, 王力鹏, 张佳羽, 杨争, 曹治国, 樊静, 王跃思, 刘子锐 (82)
基于颗粒物化学组分粒径分布特征的源解析方法构建与评估 …… 梁永莉, 田瑛泽, 刘童, 冯银厂 (90)
超低排放改造后燃煤电厂细颗粒物排放特征 …… 王润芳, 马大卫, 姜少毅, 朱仁斌, 何军, 张本耀 (98)
京津冀地区城市臭氧污染趋势及原因探讨 …… 余益军, 孟晓艳, 王振, 周崴, 于红霞 (106)
安阳市近地面臭氧污染特征及气象影响因素分析 …… 杨健, 尹沙沙, 于世杰, 王丽娟, 张瑞芹, 郝建尤, 苏方成, 齐艳杰 (115)
长江三角洲2017年机动车IVOCs排放清单构建及其对SOA的生成影响 …… 王倩, 黄凌, 王杨君, 殷司佳, 张琪, 易鑫, 李莉 (125)
华东典型城市非道路移动机械排气烟度 …… 鲁君, 胡磬遥, 杨强, 唐伟, 夏阳, 井宝莉, 陈昀, 黄成 (133)
国内外储油库VOCs排放现状与标准分析 …… 胡玮, 任碧琪, 黄玉虎, 秦建平, 卞吉玮, 吴清柱 (139)
四乙基愈创木酚液相·OH氧化SOA产率及特征分析:初始浓度的影响 …… 庄雨, 陈彦彤, 李旭东, 马帅帅, 赵竹子, 叶招莲, 盖鑫磊 (146)
乌鞘岭南、北坡降水稳定同位素特征及水汽来源对比 …… 徐秀婷, 贾文雄, 朱国锋, 马兴刚, 张昱, 袁瑞丰, 张志远, 石阳 (155)
长江源多年冻土区地下水氢氧稳定同位素特征及其影响因素 …… 汪少勇, 何晓波, 丁永建, 常福宣, 吴锦奎, 胡召富, 王利辉, 杨贵森, 邓明珊 (166)
巴尔喀什湖流域水化学和同位素空间分布及环境特征 …… 沈贝贝, 吴敬禄, 吉力力·阿不都外力, A. S. Saparov, Gulnura Isanova (173)
城市湖泊水环境整治对改善水质的影响:以蠡湖近30年水质变化为例 …… 田伟, 杨周生, 邵克强, 潘辉, 胡洋, 白承荣, 姜星宇, 高光, 汤祥明 (183)
典型药物及个人护理品在黄东海海域水体中的检测、分布规律及其风险评估 …… 陈贤, 张彩杰, 杨桂朋, 张婧, 刘梦 (194)
长江南京段水源水中有机磷酸酯的污染特征与风险评估 …… 李栋, 张圣虎, 张芹, 王博, 卜元卿, 赵欣, 李辉, 宋宁慧, 郭瑞昕 (205)
雄安新区-白洋淀冬季冰封期水体溶解性有机物的空间分布、光谱特征及来源解析 …… 周石磊, 孙悦, 张艺冉, 蒋永丰, 尹璐, 黄廷林, 李再兴, 罗晓, 战江, 王函 (213)
白洋淀表层沉积物元素的空间特征、风险评价及来源分析 …… 汪敬忠, 刘卓, 魏浩, 吴玉会, 占水娥, 朱迟, 张益淼 (224)
松花江表层沉积物PAEs分布特征及生态风险评价 …… 王欢, 杨永哲, 王海燕, 董伟羊, 闫国凯, 常洋, 李泽文, 赵远哲, 凌宇 (232)
鄱阳湖湖口-长江段沉积物中微塑料与重金属污染物的赋存关系 …… 李文华, 简敏菲, 刘淑丽, 江玉梅, 邓艳彬, 朱琳 (242)
臭氧对生物活性炭中微生物及出水消毒副产物的影响 …… 刘宝明, 王夕希, 张晓夏, 顾艳芳, 李雨平, 阮文权, 缪恒锋, 潘杨 (253)
兰州市西固区儿童饮用水重金属暴露及健康风险精细化评估 …… 陈月芳, 孙善伟, 段小丽, 许锦荣, 王娟, 康艺瑾, 梁为纲, 曹素珍 (262)
镁铁层状双金属氢氧化物对磷酸盐的吸附作用及对内源磷释放的控制效果及机制 …… 吴俊麟, 林建伟, 詹艳慧, 程永前, 柏晓云, 辛慧敏, 常明玥 (273)
一硫代砷酸盐在介质上的吸附特征及机制 …… 廖丹雪, 单慧媚, 彭三曦, 潘敖然, 黄健, 陈辉, 赵超然 (284)
酸碱复合改性海泡石亚结构特征及其对Cd(Ⅱ)吸附性能 …… 谢厦, 徐应明, 闫翠侠, 罗文文, 孙约兵 (293)
脱氮菌剂在低溶解氧黑臭水体中氮代谢特征 …… 赵志瑞, 刘硕, 李铎, 李海萍, 李方红, 张佳瑶, 白志辉 (304)
宏基因组方法分析医药化工废水厂中抗生素耐药菌及耐性基因 …… 陈红玲, 张兴桃, 王晴, 姚沛琳 (313)
淀粉废水处理系统中活性污泥的微生物群落结构及多样性分析 …… 赵婷婷, 乔凯, 王蕾, 张伟, 竺建荣, 唐一, 胡滨, 王香莲, 杨静, 景在涛 (321)
基于SBR-ABR实现PN-SAD耦合工艺的运行与优化调控 …… 陈重军, 张敏, 姜滢, 郭萌蕾, 谢嘉玮, 谢军祥, 沈耀良 (330)
基于间歇饥饿的SNAD工艺运行 …… 李冬, 刘志诚, 徐贵达, 王玉颖, 张杰 (337)
反硝化-高效部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺处理老龄垃圾渗滤液 …… 陈小珍, 汪晓军, Karasuta Chayangkun, 周松伟, 钟中, 陈振国, 陈晓坤 (345)
硝化微颗粒污泥快速培养及其亚硝化功能快速实现 …… 刘文如, 宋家俊, 王建芳, 沈耀良 (353)
高频曝停下停曝时间对亚硝化颗粒污泥性能的影响 …… 张杰, 劳会妹, 李冬, 魏子清 (360)
中国东北沈抚地区土壤中PBDEs的残留、来源及风险评价 …… 向鑫鑫, 鲁垠涛, 阮起炀, 赖偲, 孙绍斌, 姚宏, 张战胜 (368)
某焦化场地非均质包气带中多环芳烃(PAHs)来源及垂向分布特征 …… 孟祥帅, 吴萌萌, 陈鸿汉, 岳希, 陶抒远 (377)
北京蔬菜地土壤中抗生素抗性基因与可移动元件的分布特征 …… 张汝凤, 宋渊, 高浩泽, 程首涛, 孙艳梅, 王旭明 (385)
长期施肥和耕作下紫色土坡耕地土壤C、N、P和K化学计量特征 …… 杜映妮, 李天阳, 何丙辉, 贺小容, 付适 (394)
亚热带稻田土壤碳氮磷生态化学计量学特征 …… 宋佳龄, 盛浩, 周萍, 段良霞, 周清, 张杨珠 (403)
宛山荡农田土壤氮迁移过程反硝化与厌氧氨氧化 …… 陈志浩, 覃云斌, 丁帮璟, 胡优优, 陈湜, 李正魁 (412)
秸秆炭化还田对滴灌棉田土壤微生物代谢功能及细菌群落组成的影响 …… 王晶, 马丽娟, 龙泽华, 闵伟, 侯振安 (420)
基于PMF模型的九龙江流域农田土壤重金属来源解析 …… 黄华斌, 林承奇, 胡恭任, 于瑞莲, 郝春莉, 陈枫桦 (430)
塔里木盆地东南缘绿洲区土壤砷空间分布及农作物砷富集特征 …… 陈云飞, 周金龙, 曾妍妍, 王松涛, 杜江岩, 孙英, 顾思博 (438)
广西典型碳酸盐岩区农田土壤-作物系统重金属生物有效性及迁移富集特征 …… 马宏宏, 彭敏, 刘飞, 郭飞, 唐世琪, 刘秀金, 周亚龙, 杨柯, 李括, 杨峥, 成杭新 (449)
不同钝化剂对微碱性土壤镉、镍形态及小麦吸收的影响 …… 张静静, 朱爽阁, 朱利楠, 柳海涛, 杨金康, 化党领 (460)
不同钝化剂对鸡粪堆肥重金属钝化效果及其腐熟度指标的影响 …… 栾润宇, 高珊, 徐应明, 纪艺凝, 闫翠侠, 孙约兵 (469)
黄土丘陵区退耕草地土壤呼吸及其组分对氮磷添加的响应 …… 周俊杰, 陈志飞, 杨全, 赖帅彬, 王智, 徐炳成 (479)
炉渣与生物炭施加对福州平原水稻田温室气体排放的后续影响 …… 蓝兴福, 王晓彤, 周雅心, 金强, 许旭萍, 王维奇 (489)
《环境科学》征订启事(89) 《环境科学》征稿简则(97) 信息(303, 329, 344)

Eco-Environmental Knowledge Web
环 境 科 学
Environmental Science
第41卷第1期 2020年1月
Vol.41, No.1 Jan., 2020

松花江表层沉积物 PAEs 分布特征及生态风险评价

王欢[1,2,3], 杨永哲[1], 王海燕[2,3*], 董伟羊[2,3], 闫国凯[2,3], 常洋[2,3], 李泽文[2,3], 赵远哲[1,2,3], 凌宇[2,3]
(1. 西安建筑科技大学环境与市政工程学院, 西安 710055; 2. 中国环境科学研究院环境污染控制工程技术研究中心, 北京 100012; 3. 中国环境科学研究院环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012)

摘要: 为揭示松花江干支流表层沉积物中邻苯二甲酸酯类(phthalate esters, PAEs)的空间分布特征及其生态风险状况, 本文利用气相色谱三重四级杆质谱联用仪(GC-MS)对松花江干支流表层沉积物中 6 种 PAEs 的含量分布和组成特征进行了分析, 并采用商值法和环境风险水平(ERL)法对其生态风险状况进行评价. 结果表明: ① 松花江干支流沉积物 6 种邻苯二甲酸酯($\sum_6$PAEs)含量范围(以干重计)为6 832.5 ~ 36 298.9 ng·g^{-1}(平均值为 18388.6 ng·g^{-1}), 邻苯二甲酸(2-乙基己基)酯(DEHP)和邻苯二甲酸二丁酯(DBP)为主要组分, 干流点位 $\sum_6$PAEs 含量(6 832.5 ~ 36 298.9 ng·g^{-1}, 平均值为18 616.9 ng·g^{-1})与支流点位 $\sum_6$PAEs (10 367.6 ~ 26 593.3 ng·g^{-1}, 平均值为18 264.1 ng·g^{-1})差异不显著($P > 0.05$), 支流点位各 PAEs 单体含量与干流点位差异不大. 从上游到下游干支流 $\sum_6$PAEs 含量呈现先降后升的趋势. 农业自然区域 $\sum_6$PAEs 平均含量(18 677.5 ng·g^{-1})与城市工业区域(18 063.7 ng·g^{-1})相近($P > 0.05$), DBP 和 DEHP 是两区域内的主要 PAEs, 两者平均值贡献率高达 98% 以上. ② 松花江干支流表层沉积物中 $\sum_6$PAEs 主要来源于人类日用品、农业生产以及含有增塑剂的工业生产. ③ 松花江表层沉积物中 DMP 和 BBP 对水生生物无生态风险, DEP 具有低水平生态风险, 而 DEHP 和 DBP 对水生生物具有高生态风险.

关键词: 松花江; 邻苯二甲酸酯(PAEs); 沉积物; 分布特征; 生态风险评价
中图分类号: X522 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2020)01-0232-10 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.201907138

Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Phthalate Esters in Surface Sediments of the Songhua River

WANG Huan[1,2,3], YANG Yong-zhe[1], WANG Hai-yan[2,3*], DONG Wei-yang[2,3], YAN Guo-kai[2,3], CHANG Yang[2,3], LI Ze-wen[2,3], ZHAO Yuan-zhe[1,2,3], LING Yu[2,3]
(1. School of Environmental and Municipal Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China; 2. Research Center for Environmental Pollution Control Engineering Technology, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China; 3. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: This study assesses the spatial distribution characteristics and ecological risk of phthalate esters (PAEs) in the surface sediments of the mainstream and tributaries of the Songhua River, China, using concentrations and composition of six PAEs, which were analyzed using gas chromatography-mass spectrometery (GC-MS). We assess the $\sum_6$PAEs ecological risk using the hazard quotient (HQ) method and environmental risk levels (ERL). The results were as follows. ① It was found that the total concentrations of $\sum_6$PAEs ranged from 6 832.5 to 36 298.9 ng·g^{-1} dry weight (average 18 388.6 ng·g^{-1}), with the main contributions coming from di-(2-ethylhexyl) phthalate (DEHP) and di-n-butyl phthalate (DBP). The difference between the main stream $\sum_6$PAEs (6 832.5-36 298.9 ng·g^{-1}, average 18 616.9 ng·g^{-1}) and the tributary $\sum_6$PAEs (10 367.6-26 593.3 ng·g^{-1}, average 18 264.1 ng·g^{-1}) was not significant ($P > 0.05$). The mean concentrations of individual PAEs in the tributary stream differed little from that of the main stream. The $\sum_6$PAEs concentration of the Songhua River decreased initially but then increased from the upstream to the downstream. The average $\sum_6$PAEs concentration in natural agricultural areas (18 677.5 ng·g^{-1}) was similar to that found in urban industrial areas (18 063.7 ng·g^{-1}), and DBP and DEHP contributed 98% of $\sum_6$PAEs. ② The main sources of $\sum_6$PAEs were domestic, agricultural production, and industrial production using plasticizers. ③ The ecological risk assessment indicated that DMP and BBP in the surface sediments of the Songhua River did not pose an ecological risk for aquatic organisms, and that DEP was associated with a low ecological risk, whereas DEHP and DBP posed a high ecological risk for aquatic organisms.

Key words: Songhua River; phthalate esters (PAEs); sediments; spatial distribution; ecological risk assessment

收稿日期: 2019-07-16; **修订日期**: 2019-08-28
基金项目: 国家水体污染控制与治理科技重大专项(2015ZX07201-008-02)
作者简介: 王欢(1994 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为沉积物中有机物监测与分析, E-mail: 1134989193@qq.com
* 通信作者, E-mail: wanghy@craes.org.cn

邻苯二甲酸酯(phthalate esters,PAEs)又名酞酸酯,是一类重要的有机化合物,被广泛用于塑料工业,作为聚氯乙烯(PVC)材料的粘合剂和增塑剂,以提高其柔韧性和加工能力[1~4],还被应用于其他非增塑剂行业,包括化妆品、驱虫剂、推进剂、装饰性油墨和润滑油制造等行业[5,6]. 由于其广泛应用,PAEs 在空气、水、沉积物、土壤和食物中被广泛检测出[7~10]. 曾报道 PAEs 对人体的生殖和发育有潜在危害,可导致内分泌紊乱和生殖机能失常等[11~13]. 因此,PAEs 被公认为全球性的环境有机污染物,已引起世界各国的重视. 美国环保署(environmental protection agency, USEPA)将 6 种 PAEs[邻苯二甲酸二甲酯(dimethyl phthalate, DMP)、邻苯二甲酸二乙酯(diethyl phthalate,DEP)、邻苯二甲酸二丁酯(di-n-butyl phthalate,DBP)、邻苯二甲酸丁基苄酯(butyl-benzyl phthalate,BBP)、邻苯二甲酸(2-乙基已基)酯(di-2-ethylhexyl phthalate, DEHP)和邻苯二甲酸二正辛酯(di-n-octyl phthalate, DnOP)]列为优先控制污染物[14].

由于 PAEs 的高疏水性,水体中的 PAEs 易与底部沉积物结合并且沉积物对其具有高吸收率和低运输潜力[15]. 沉积物作为污染物的长期储层,与水体进行物质和能量交换,其中的 PAEs 对水生生物构成潜在的威胁[16]. 国内外学者对沉积物中的 PAEs 分布特征及生态风险评价做了大量研究,Chen 等[17]发现了中国台湾高雄港沉积物中 $\sum_6$PAEs 含量范围为 400.0 ~ 34 800.0 ng·g^{-1},DEHP 占比达 92%;Li 等[18]研究了中国九龙江沉积物中 $\sum_6$PAEs 的空间分布,发现 DIBP 和 DEHP 具有高风险,而 DBP 和 DINP 具有中等风险;Gao 等[19]的研究发现,太湖沉积物中 $\sum_6$PAEs 含量范围为 5 150.0 ~ 20 900.0 ng·g^{-1},沉积物中的 DEP 对水生态系统具有较高的风险;董雷等[20]的研究发现,丰水期长江武汉段沉积物中 PAEs 主要来源于塑料、重化工工业和生活垃圾;Zhang 等[21]的研究发现,长江口及临江地区沉积物中 $\sum_6$PAEs 含量范围为 480.0 ~ 29 940.0 ng·g^{-1},DEHP 和 DBP 含量超过环境风险水平(environmental risk levels, ERL)值,对海洋环境存在潜在危害;Zhang 等[22]的研究发现,渤海沉积物中 $\sum_{16}$PAEs 含量高于黄海,并运用风险熵(risk quotient,RQ)评价发现 DBP 和 DiBP 在沉积物中达到高风险水平;Liu 等[23]的研究发现,在高度城市化和工业化的珠江三角洲地区河流沉积物中 $\sum_{16}$PAEs 含量较高. Srivastava 等[24]通过高效液相色谱法对印度 Gomti 河沉积物中 5 种 PAEs 进行定量和定性分析,确定了 DMP、DEP、DBP、DEHP 和 DOP 的含量(10.5、4.6、10.4、31.6 和 5.2 ng·g^{-1});Adeogun 等[25]研究了尼日利亚(Epe 和 Lagos)两个潟湖沉积物中 3 种 PAEs 含量高于水中,且 DEP 和 DEHP 是含量最高的;Arfaeinia 等[26]的研究发现波斯湾北部工业区和农业区沉积物 PAEs 污染水平显著高于城市区和自然区,主要来源为工业和农业活动.

松花江是我国第三大水系,为黑龙江、吉林和内蒙古提供饮用水和农业灌溉用水等,同时松花江流域因其丰富的煤炭资源、石油、电力、森林等非金属资源,沿岸分布了许多重工业城市如哈尔滨、吉林及佳木斯市等. 近年来由于流域社会经济的快速发展,河流沉积物中部分污染物含量较高,部分河流水生生态系统遭到破坏,水体自净能力受到损伤,区域内分布的煤化工、塑料制品和农业等成为 PAEs 潜在的污染来源[27,28]. 目前有关松花江流域沉积物 PAEs 空间分布特征的研究主要集中在松花江部分河段. 陆继龙等[29]的研究发现,第二松花江沉积物 PAEs 中 DBP(7 632.4 ng·g^{-1})和 DEHP(6 367.6 ng·g^{-1})含量均已超过了美国华盛顿州的警戒标准(均为 610.0 ng·g^{-1}),从上游至下游沉积物中 5 种 PAEs 呈现先增加后减少的趋势. 崔志丹等[30]报道第二松花江上游松花湖沉积物中 $\sum_6$PAEs 含量范围为 33.7 ~ 2 062.3 ng·g^{-1},生态风险较低,只有部分点位存在低度生态风险. 杨艳艳[31]研究了松花江(嫩江、第二松花江和松花江主段)2016 年丰水期 $\sum_6$PAEs 含量范围为 819.4 ~ 24 035.4 ng·g^{-1},DBP 和 DEHP 的含量较高,DBP 和 DEHP 对生态环境潜在风险较高. 但尚未发现对松花江干支流、上下游和不同区域沉积物中 PAEs 含量分布特征、风险评价和来源分析的综合报道.

本研究主要研究了松花江干支流、上下游和不同区域沉积物中 PAEs 含量分布特征,并采用主成分分析法,探讨其主要来源;采用商值法和环境风险水平(ERL)法,开展污染水平分析和风险评估,以期为松花江水生态恢复保护及风险管控提供科学依据.

1　材料与方法

1.1　样品采集

本研究于 2017 年 3 月(枯水期)在松花江流域布置 19 个采样点,其中嫩江 4 个采样点(N1 ~ N4),第二松花江("二松")3 个采样点(D1 ~ D3),松花

江主段(“松主段”)10 个采样点(S1 ~ S10),黑龙江 2 个采样点(H1 和 H2);其中 N1 ~ N3、D1、S1 ~ S3、S9 和 S10 为农业自然区域点位,N4、D2 和 D3、S4 ~ S8 为城市工业区域点位(图 1 和表 1). 使用抓斗采样器(ZGCSC-5,上海梓桂仪器有限公司)采集沉积物样品,每个点位随机采集 3 份沉积物平行样. 采集的样品用锡箔纸包好,置于不锈钢盒中,-20℃冰箱保存,备用.

表 1 松花江流域采样点信息

Table 1 Information of sampling sites

位置	采样点	编号	水系	干支流属性	区域属性	采样点	编号	水系	干支流属性	区域属性
上游	科洛河大桥	N1	科洛河	嫩江二级支流	农业自然区域	柳河中游	D1	伊通河	二松二级支流	农业自然区域
	乌裕尔河中游	N2	乌裕尔河	嫩江一级支流	农业自然区域	万金塔	D2	饮马河	二松一级支流	城市工业区域
	博霍头	N3	嫩江干流	嫩江干流	农业自然区域	松林	D3	二松干流	二松干流	城市工业区域
	江桥	N4	嫩江干流	嫩江干流	城市工业区域					
中游	拉林河中游	S1	拉林河	松主段一级支流	农业自然区域	柴河大桥	S4	牡丹江	松主段一级支流	城市工业区域
	阿什河中游	S2	阿什河	松主段一级支流	农业自然区域	牡丹江口内	S5	牡丹江	松主段一级支流	城市工业区域
	果树场	S3	牡丹江	松主段一级支流	农业自然区域					
下游	倭肯河中游	S6	倭肯河	松主段一级支流	城市工业区域	西林	S9	松花江干流	松主段干流	农业自然区域
	桔源林场	S7	东汤旺河	松主段一级支流	城市工业区域	同江	S10	松花江干流	松主段干流	农业自然区域
	佳木斯上	S8	松花江干流	松主段干流	城市工业区域					
	东港	H1	黑龙江干流	黑龙江干流						
	名山	H2	黑龙江干流	黑龙江干流						

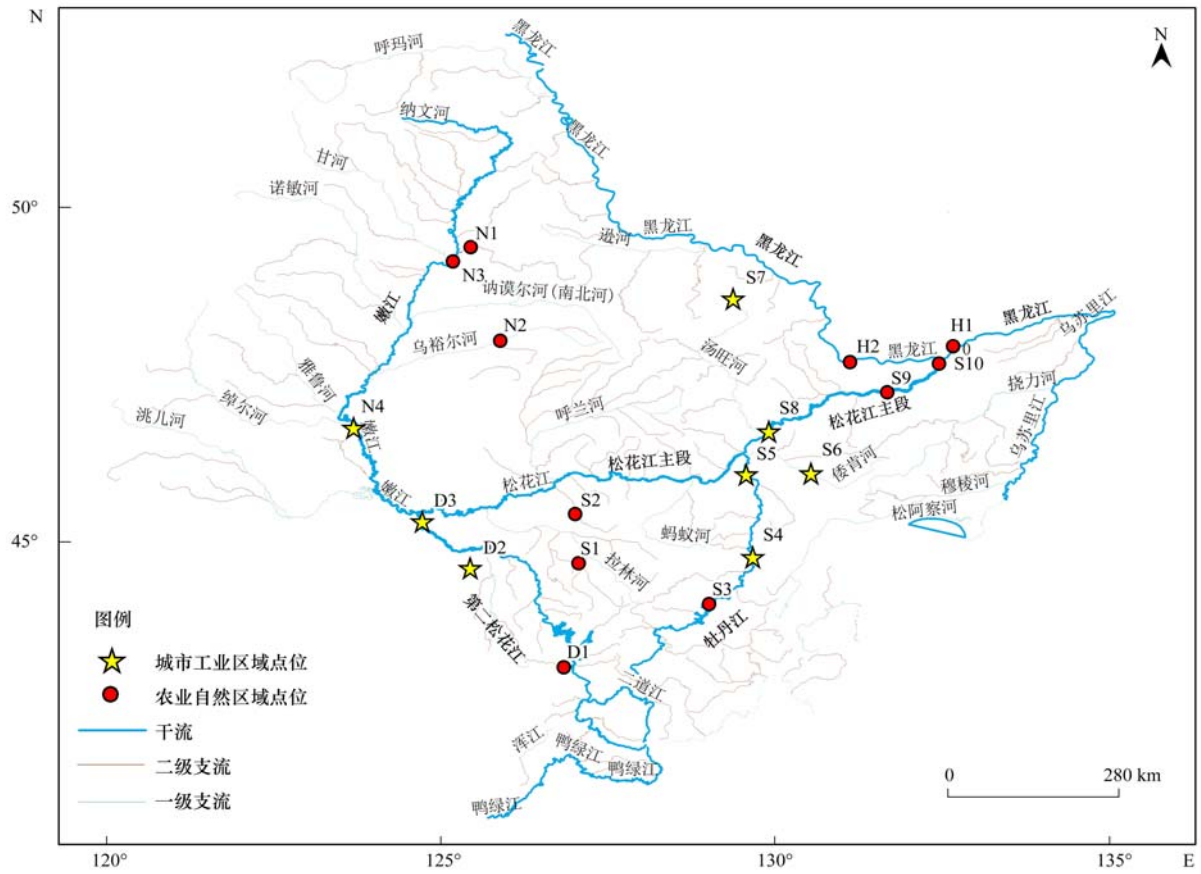

图 1 松花江流域采样点分布示意

Fig. 1 Sampling sites in the Songhua River

1.2 仪器与试剂

Agilent 7890A-5975C 气相色谱-质谱联用仪(美国 Agilent 公司);FreeZone® 冷冻干燥机(美国 Labconco 公司);Visiprep DL SPE 固相萃取装置(美国 Supelco 公司);ASE-350 加速溶剂萃取仪(美国 Thermo Fisher 公司);SE812 氮吹浓缩仪(北京帅恩

科技有限公司).

$\sum_6$PAEs 混合标准溶液(美国 o2si 公司),包括 DMP、DEP、DBP、BBP、DEHP 和 DnOP;EPA525.2 内标混标(含苊-d10、菲-d10 和䓛-d12)和 2 种替代物混标(HJ805-2016 对三联苯-d14 和 2-氟联苯,HJ 950-2018)标准品购于美国 o2si 公司;正己烷、丙酮和甲醇均为农残级(美国 MREDA 和德国 MERCK);无水硫酸钠(优级纯,天津津科)、硅藻土(20 目~100 目,国药集团)和石英砂(20 目~100 目,国药集团).

1.3　样品预处理与分析

沉积物样品经真空冷冻干燥(Free Zone® 冷冻干燥机,美国 Labconco 公司)、研磨和过 0.15 mm 筛后,取 5 g 样品(精确到0.000 1 g),加 2 g 硅藻土作分散剂,采用加速溶剂萃取仪(ASE-350 加速溶剂萃取仪,美国 Thermo Fisher 公司)进行萃取,以正己烷和丙酮 1∶1 为萃取溶剂,萃取仪载气压力为 0.8 MPa,加热温度为 100℃,萃取池压力为 8.3~13.8 MPa,预加热平衡 5 min,静态萃取 5 min,溶剂淋洗体积为 60% 池体积,氮气吹扫时间为 60 s,静态萃取 2 次,将萃取液氮吹浓缩至 2 mL 进行铜粉脱硫,然后采用 Aglient 硅胶小柱串联 PSA 小柱(*N*-丙基乙二胺固相萃取柱)对萃取液进一步净化,先在串联好的小柱上加入 2 g 无水硫酸钠脱水,然后加入 20 mL 正己烷进行柱子的活化,活化后进行上样,上样完成后用丙酮和正己烷混合溶剂(体积比为 1∶1)洗脱 3 次,将收集到的洗脱液氮吹浓缩至 1 mL,用于 GC-MS 分析.

采用 TOC-V_{CPH}型总有机碳分析仪,配有 SSM-5000A 固体样品进样装置(Shimadzu 公司,日本)测定沉积物样品中总有机碳(TOC)含量.

1.4　仪器分析条件

气相色谱参考条件:DB-5MS 122-5562UI 毛细管柱(60 m×0.25 mm×0.25 μm);载气为高纯氦气(纯度>99.999%);流速 1.0 mL·min^{-1},恒流模式;进样口温度(280℃);进样量(1.0 μL);分流方式(不分流);色谱柱升温程序:60℃ 保留 2 min,以 10℃·min^{-1} 升温到 200℃,保持 2 min,再以 5℃·min^{-1}升温到 300℃,保持 15 min.

质谱参考条件:离子源温度[230℃ 电子轰击源(EI)];离子化能量(70 eV);四级杆温度(150℃);接口温度(280℃);扫描质量范围(45~450 u);扫描模式(Scan 定性,Sim 定量).

1.5　质量保证与质量控制

本研究采用方法空白、空白加标、样品平行样和内标法定量进行质量控制和质量保证,为避免分析过程产生的污染,每一批处理 10 个样品,溶剂空白和方法空白各 1 个,空白加标和基质加标各 1 个(检测仪器的重现性和稳定性).每一个样品均添加替代标准物测方法回收率,回收率介于 63.6%~114.4%;目标化合物的平行样标准偏差范围为 0.3%~16.4%,所有样品上机测试 3 次,最终结果取 3 次平行平均值.方法空白样品仅检出含量较低的 DEHP,在最后结果中扣除.空白加标回收率为 73.2%~117.1%,基质加标回收率 76.5%~119.0%,检出限为 0.1(BBP)~3.1(DBP) ng·g^{-1},定量限为 2.6~9.1 ng·g^{-1}.

1.6　数据分析

使用 SPSS Statistics 23 软件对所得数据进行统计学分析,多独立样本非参数检验(中位数检验,Kruskal-Wallis,Jonckheere-Terpstra)和 *T* 检验分析数据之间的差异性,Pearson 相关性用于分析 PAEs 含量与 TOC 含量之间的相关性,主成分分析用来估计沉积物中 PAEs 的可能来源.此外,用 ArcMap 10.2(GIS)软件绘制松花江流域采样点位.

1.7　生态风险评价

目前有关 PAEs 生态风险影响评价研究较少,尚未建立起统一的标准.为此,以 ERL 值评价沉积物 PAEs 的生态风险.此外,还采用商值法半定量表征 PAEs 的生态风险,通过从 US EPA 数据库(http://cfpub.epa.gov/ecotox/)获得 5 种 PAEs 对相对敏感生物的毒性数据,计算得到这 5 种 PAES(DBP、DEHP、DEP、BBP 和 DMP)相对应的预测无影响含量值(PNEC),并根据风险按熵公式计算出风险熵[32]:

$$HQ = \frac{EC}{PNEC}$$

式中,EC 为环境暴露含量值(ng·g^{-1});PNEC 为计算得到的预期无影响含量值(ng·g^{-1}).

HQ 值被分为 4 个级别以评估生态风险,等级为[33]:当 HQ<0.1,无生态风险;0.1≤HQ<1,低生态风险水平;1≤HQ<10,中等生态风险水平;HQ≥10,高生态风险.

2　结果与讨论

2.1　松花江表层沉积物 PAEs 含量分布

2017 年 3 月松花江流域 19 个采样点位表层沉积物中 6 种 PAEs 均有检出,其 $\sum_6$PAEs 含量范围(以干重计,下同)为6 832.5~36 298.9 ng·g^{-1},平均值为18 388.6 ng·g^{-1}. DEHP 检出含量最高,范围为4 808.4 ~ 18 909.5 ng·g^{-1},平均值为10 636.9 ng·g^{-1}(表 2).

表 2 松花江表层沉积物样品中 $\sum_6$PAEs

Table 2 Concentrations of $\sum_6$PAEs in the sediments of the Songhua River

项目	全流域			平均值/ng·g^{-1}	
	范围/ng·g^{-1}	平均值/ng·g^{-1}	标准偏差	干流	支流
DMP	9.8 ~ 70.3	36.3	15.4	33.7	37.8
DEP	15.3 ~ 75.2	52.4	16.2	47.4	55.0
DBP	1 726.4 ~ 22 452.3	7 603.5	5 901.1	10 148.3	6 215.4
BBP	4.3 ~ 142.3	46.8	38.8	60.2	39.5
DEHP	4 808.4 ~ 18 909.5	10 636.9	3 725.7	8 316.6	11 902.5
DnOP	4.3 ~ 36.2	12.8	3.5	10.8	13.9

干流点位 $\sum_6$PAEs 含量范围为6 832.5 ~ 36 298.9 ng·g^{-1},平均值为18 616.9 ng·g^{-1},支流点位 $\sum_6$PAEs 含量范围为 10 367.6 ~ 26 593.3 ng·g^{-1},平均值为 18 264.1 ng·g^{-1}. 支流点位 $\sum_6$PAEs 平均含量比干流点位略低,但差异不显著($P > 0.05$),与杨艳艳[31]研究 9 月样点不一致,这可能由于 9 月支流多接纳农田退水,但 3 月冬季农业退水较少,支流沉积物中 PAEs 含量相对较低,而干流 PAEs 来源较广,故而导致干支流差异变小. 支流点位各 PAEs 单体含量与干流点位差异不大(表 2). 黑龙江 H1 和 H2 点位 $\sum_6$PAEs 含量分别为 19 207.3 ng·g^{-1} 和 16 648.4 ng·g^{-1},平均值为 17 927.9 ng·g^{-1}.

不同江段干支流 $\sum_6$PAEs 平均含量既存在一定相似性,又呈现某些差异性. 嫩江支流 $\sum_6$PAEs 平均含量(19 802.3 ng·g^{-1})与嫩江干流(19 515.6 ng·g^{-1})接近,松主段支流(18 497.8 ng·g^{-1})与松主段干流(17 237.2 ng·g^{-1})相比差异不大,与整个流域干支流含量分布一致. 二松支流 $\sum_6$PAEs 平均含量(15 907.6 ng·g^{-1})显著低于二松干流(20 959.2 ng·g^{-1}),这主要是因为二松干流点位位于吉林和长春等重工业城市的下游,而支流点位多位于工业较分散的区域或是城市上游,受经济社会和工业影响较小. 嫩江(19 659.0 ng·g^{-1})、松主段(18 119.6 ng·g^{-1})、黑龙江(17 927.9 ng·g^{-1})和二松(17 591.5 ng·g^{-1})这 4 个江段 $\sum_6$PAEs 平均含量相差不大,且经多独立样本非参数检验表明,各江段 $\sum_6$PAEs 含量分布无显著性差异($P > 0.05$),这可能与松花江流域各江段均有农业退水、工业废水和生活污水等汇入有关,导致各江段 $\sum_6$PAEs 含量差异较小.

松花江上、中、下游点位 $\sum_6$PAEs 含量范围分别为14 323.7 ~ 24 619.3、10 367.6 ~ 20 660.5和6 832.5 ~ 36 298.9 ng·g^{-1},平均值分别为18 772.9、15 784.6和20 454.7 ng·g^{-1}. 从上游到下游干支流 $\sum_6$PAEs 平均含量呈现先降后升的趋势. 下游点位含量最高,可能是由于松花江下游流域流经了工业城市佳木斯、鹤岗和七台河市等,下游西林(S9)点位紧临于以煤化工、煤炭采选和造纸等为主要产业的佳木斯市下游,$\sum_6$PAEs 含量最高达到 36298.9 ng·g^{-1},流经煤炭丰富的鹤岗市的梧桐河向松主段汇入也会贡献一定的 PAEs,且松花江下游流经我国著名的商品粮基地"三江平原",大量农业退水直接排入致使下游沉积物中 PAEs 累积;倭肯河中游(S6)和桔源林场(S7)点位分别位于七台河市和伊春市周边,PAEs 含量升高可能与城市工业废水与生活污水的排放有关. 从上游到中游 $\sum_6$PAEs 含量下降可能是因为上游嫩江和第二松花江沿岸曾聚集大量以冶金、化工、造纸、化纤、石油开采等工业为主的齐齐哈尔市、大庆市、松原市、长春市和吉林市等大中型城市,工业排污影响较大,但中游城市工业聚集密度不如上游,故 $\sum_6$PAEs 含量相对于上游偏低. 最小值出现在松花江干流佳木斯上(S8)点位,该点位远离城市,自然环境好,受重工业及人类活动影响较小.

从农业自然区域和城市工业区域来看,农业自然区域 $\sum_6$PAEs 平均含量(18 677.5 ng·g^{-1})与城市工业区域 $\sum_6$PAEs 平均含量(18 063.7 ng·g^{-1})相近,经 T 检验($P > 0.05$)表明两种区域类型的 $\sum_6$PAEs 平均含量无显著性差异,而 Wang 等[34]的研究发现江苏省河流沉积物中工业 $\sum$PAEs 含量显著高于农业点位. 这可能与松花江流域产业结构有关,东北是我国重要的商品粮基地,农业自然区域高 PAEs 值与蔬菜温室、塑料薄膜、农药和化肥的大量使用密切相关[35]. 同时松花江流域是老工业基地,沿岸的城市生活污水以及工业废水的汇入使得沉积物中 $\sum_6$PAEs 含量升高. 从组成情况来看,在

城市工业区域和农村自然区域 DEHP 含量平均值贡献率分别为 68.0% 和 55.5%，DBP 含量平均值贡献率分别为 31.2% 和 43.7%，DBP 和 DEHP 是 2 种主要的 PAEs 污染物，两者含量平均值贡献率高达 98% 以上，这与 Arfaeinia 等[26]对波斯湾农业和工业等区域河流沉积物的研究一致.

沉积物中 $\sum_6$PAEs 污染以 DBP 和 DEHP 为主，这与 Gao 等[19]和陆继龙等[29]的研究结果一致（表 3）. 松花江流域沉积物中 DBP 含量略高于珠江三角洲和巢湖，并明显高于其他河流（表 3）；DEHP 含量低于珠江三角洲和高雄港 1 ~ 2 倍，高于其他河流；但 DMP、DEP 和 BBP 含量低于其他河流；松花江流域 $\sum_6$PAEs 含量处于中等水平，表明松花江流域水生生态系统面临一定的 PAEs 风险.

表 3　国内外河流、湖泊沉积物中 PAEs 污染水平比较[1)]/ng·g^{-1}

Table 3　Comparison of $\sum_6$PAEs in sediments of the Songhua River with other waterbodies in China and abroad/ng·g^{-1}

位置	DMP	DEP	DBP	BBP	DEHP	DnOP	文献
松花江（干支流）	36.3	52.4	7 603.5	46.8	10 636.9	12.8	本研究
钦州湾	47.0	2 212.0	580.0	241.0	3932.0	—	[36]
钱塘江	53.0	18.0	116.0	0.4	1 562.0	4.9	[37]
太湖	950.0 ~ 3 500.0	590.0 ~ 2 290.0	500.0 ~ 1 750.0	420.0 ~ 1 300.0	550.0 ~ 4 770.0	480.0 ~ 16 200.0	[19]
珠江三角洲	1.0 ~ 19.0	1.0 ~ 91.0	42.0 ~ 5 030.0	nd ~ 113.0	415.0 ~ 29 500.0	nd ~ 181.0	[23]
长江武汉段	—	—	1 666.0	—	1 659.5	—	[20]
九龙江	nd ~ 4.0	nd ~ 6.0	3.0 ~ 230.0	—	33.0 ~ 1 280.0	—	[18]
高雄港（中国台湾）	—	—	nd ~ 1 130.0	—	400.0 ~ 34 800.0	—	[17]
松花江（哈尔滨段）	25.2 ~ 87.8	26.7 ~ 38.2	58.1 ~ 881.2	nd ~ 96.3	227.1 ~ 566.5	nd ~ 377.4	[38]
巢湖	6.0 ~ 1 336.0	1.0 ~ 42.0	80.0 ~ 2 627.0	0.4 ~ 286.0	31.0 ~ 1 820.0	0.2 ~ 29.0	[39]
Gomti 河（印度）	nd ~ 490.0	nd ~ 350.0	nd ~ 340.0	—	nd ~ 3 240.0	nd ~ 530.0	[24]
Epe 潟湖（尼日利亚）	—	300.0	180.0	—	280.0	—	[25]
Lagos 潟湖（尼日利亚）	—	190.0	140.0	—	160.0	—	[25]

1）nd 表示未检出

多数研究表明，河流沉积物中的 TOC 含量是影响有机物吸附的主要因素之一[40,41]，因此松花江流域表层沉积物中的 PAEs 含量水平可能与 TOC 相关联. 本研究采样点沉积物中 TOC 含量为 0.0% ~ 2.7%（平均值为 0.9%），PAEs 与 TOC 相关性如图 2 所示，在 $P = 0.05$ 的置信水平上，PAEs 与 TOC 相关性不显著. 表明松花江流域 17 个点位 $\sum_6$PAEs 平均含量不受沉积物中 TOC 含量影响，可能与运输、混合、沉淀机制和源组成等因素有关[42,43].

2.2　沉积物 PAEs 组成特征

松花江沉积物 $\sum_6$PAEs 中各 PAE 单体相对占比为：DEHP（57.80%）> DBP（41.35%）> DEP（0.28%）> BBP（0.25%）> DMP（0.20）> DnOP（0.07%）. N1、N2、N3、S7 和 S9 点位 DBP 占比范围为 50.3% ~ 67.5%，其余点位除 D3 点位外 DEHP 占比范围为 56.0% ~ 87.3%（图 3），可以看出松花江干支流沉积物中 PAEs 主要组分为 DEHP 和 DBP. 国内许多研究表明河流沉积物中 PAEs 以 DEHP 和 DBP 为主要组分，如长江武汉段、太湖和黄河[44~47]，这可能是因为 PAEs 是亲脂性的有机污染物，其辛醇-水分配系数较高，水溶性低，进入水体的 PAEs 易于在沉积物中富集，尤其对于吸附能力强和水中溶解度相对较小的 DBP 和 DEHP，另一方

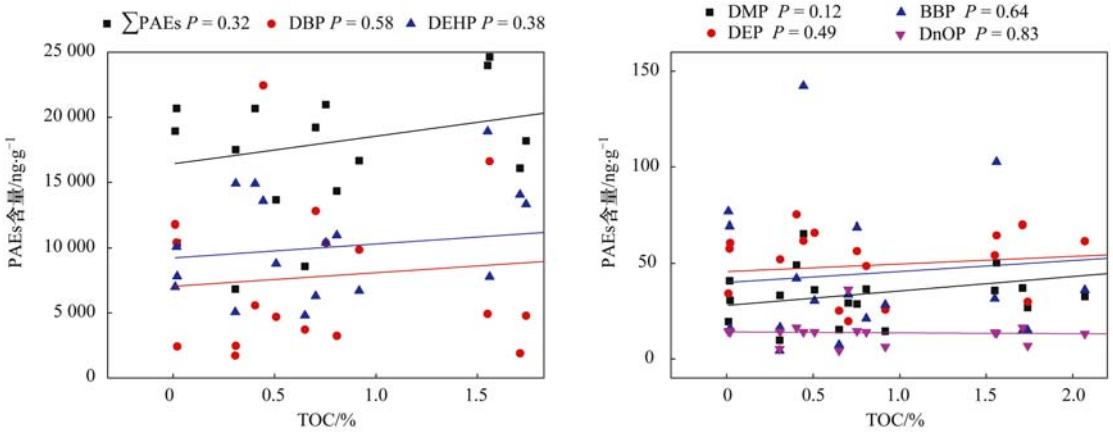

图 2　PAEs 含量与 TOC 的相关性

Fig. 2　Relationship between the concentrations of PAEs and TOC

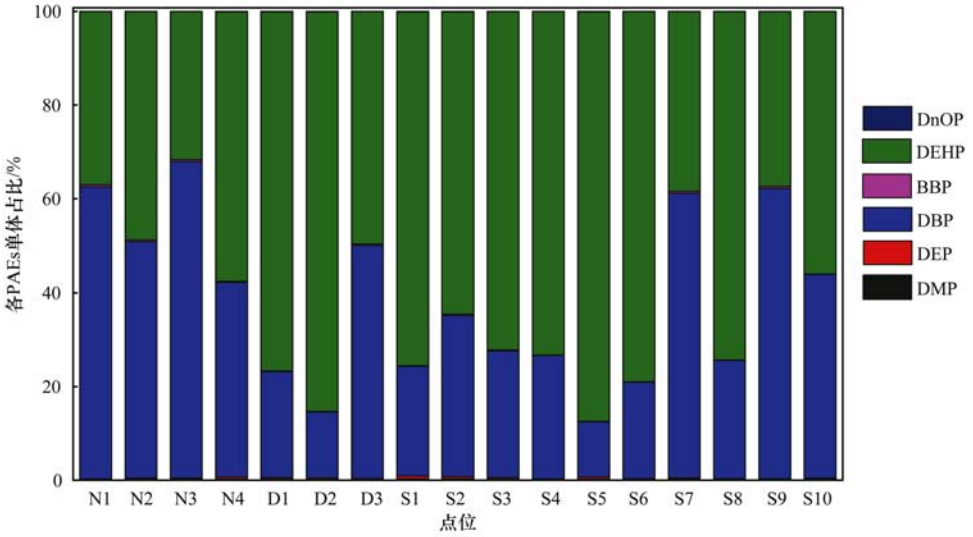

图 3 松花江表层沉积物 PAEs 在各点位组成特征分布

Fig. 3 $\sum_6$PAEs composition characteristics in sediments of the Songhua River

面也可能是因为 DBP 和 DEHP 属于最为普遍的 PAEs[48~50],而 DMP 对光敏感[51],并且在硝酸盐和强氧化剂的影响下容易分解[52,53],这些特征可能影响 DMP 的分布.

2.3 沉积物 PAEs 来源分析

采用主成分分析法分析松花江表层沉积物中 PAEs 的来源结果如图 4 所示,沉积物样品提出两个主成分,每个主成分(PC)的特征值均大于 1,方差贡献率分别为 57.71% 和 84.27%,在第一主成分(PC1)中,DMP(0.9)、BBP(0.8)、DEP(0.8)、DnOP(0.8)和 DBP(0.7)呈现很高的正载荷,说明他们来源相似,而 DEP 和 DBP 广泛存在于个人护理产品的添加剂中[54,55],DMP 和 DBP 也是生活垃圾中的主要 PAEs 类污染物[56,57],BBP 和 DnOP 则主要用于合成皮革、墨水、密封剂和粘合剂[58]. 第二主要成分(PC2)中 DEHP(0.6)载荷最高,DEHP

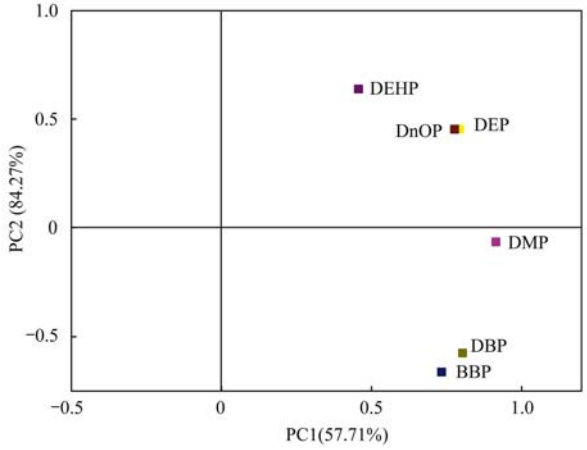

图 4 PAEs 单体主成分分析因子载荷值

Fig. 4 Factor loadings of PAEs congeners by principal component analysis

主要用于聚合物工业生产中的增塑剂,以提高柔韧性、可加工性和一般处理性能[59,60],同时 DEHP 主要应用于农业,是白色和黑色塑料薄膜中主要成分[61,62],据调查 2017 年黑吉两省塑料薄膜的农业消费量约为 20.2 万 t,覆盖面积达到 37.7 万 hm^2[63]. 由此可见,PC1 可能主要来源于化妆品、个人护理品和人类日常用品,而 PC2 则来源于含有增塑剂的工业产品以及农业生产活动中. 总而言之,松花江表层沉积物中 PAEs 主要来源于人类日常生活用品、农业生产以及含有增塑剂的工业生产,这与陆继龙等[29]的研究结果一致.

2.4 沉积物 PAEs 生态风险评价

本研究参考 van Wezel 等[64]确定的两种 PAEs 的 ERL 值(DBP 和 DEHP 的 ERL 值分别为 700 $ng \cdot g^{-1}$和1 000 $ng \cdot g^{-1}$),当相对污染系数(RCF = C_{PAEs}/ERL,C_{PAEs}为 PAEs 环境暴露含量)结果小于 1,PAEs 不存在内分泌干扰和生态毒性风险;结果大于 1,PAEs 存在内分泌干扰和生态毒性风险. 至于其他单体 PAEs,国家海洋局推荐使用美国华盛顿颁布的沉积物质量警戒线[65],各组分均为 610 $ng \cdot g^{-1}$. 松花江所有点位表层沉积物中的 DBP 和 DEHP 均超过了美国华盛顿州颁布的质量警戒水平且 RCF 值均大于 1,表明 DBP 和 DEHP 对研究区域生态环境存在内分泌干扰和生态毒性风险,这与国内部分河流一致[66~68],其余 4 种 PAEs 均未超过美国华盛顿沉积物质量警戒线,表明 DMP、DEP、BBP 和 DnOP 这 4 种 PAEs 生态风险较小.

采用商值法进一步评价了松花江沉积物中 5 种 PAEs 对水生生物的风险(表 4),5 种 PAEs 的 HQ 值排序如下:DBP > DEHP > DEP > BBP > DMP. 其中

DMP 和 BBP 在各江段的 HQ 值均小于0.1，表明 DMP 和 BBP 对各江段水生生物均无生态风险. DEP 在各江段的 HQ 值均大于0.1 而小于1，表明 DEP 对各江段水生生物生态风险处于低水平. DBP 和 DEHP 在各江段的 HQ 值均大于10，表明 DBP 和 DEHP 对各江段水生生物具有高生态风险. 支流沉积物中 DEP 和 DEHP 对水生生物的风险比干流稍高，而干流沉积物中 DBP 对水生生物的风险比支流高.

表4　PAEs 的 HQ 分布

Table 4　HQ values of PAEs

PAEs	PNEC/ng·g^{-1}	嫩江 HQ	二松 HQ	松主段 HQ	黑龙江 HQ	支流 HQ	干流 HQ
DMP	1 303.4	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
DEP	211.6	0.3	0.3	0.2	0.1	0.3	0.2
DBP	141.7	79.0	37.9	48.3	80.0	43.9	73.7
BBP	1 180.9	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
DEHP	246.2	33.7	49.1	45.2	26.4	48.3	31.9

3　结论

(1)松花江干支流表层沉积物中 $\sum_6$PAEs 范围为6 832.5 ~ 36 298.9 ng·g^{-1}，平均值为18 388.6 ng·g^{-1}，与国内外其他河流相比，含量水平处于中等. 干流点位 $\sum_6$PAEs 平均含量与支流点位差异不显著；从上游到下游干支流 $\sum_6$PAEs 含量呈现先降后升的趋势；各江段 $\sum_6$PAEs 平均含量相差不大，无显著性差异；农业自然区域 $\sum_6$PAEs 平均含量与城市工业区域接近，区域差异对松花江流域 $\sum_6$PAEs 平均含量无显著性影响. 松花江流域沉积物中 $\sum_6$PAEs 含量不受 TOC 影响.

(2)松花江沉积物 $\sum$6PAEs 中各 PAEs 单体相对占比为：DEHP > DBP > DEP > BBP > DMP > DnOP，表明松花江干支流沉积物中 PAEs 主要组分为 DEHP 和 DBP，其中 DEHP 是最主要的污染物，其单体贡献率为 57.80%.

(3)松花江表层沉积物中 PAEs 主要来源于人类日常生活用品，农业生产以及含有增塑剂的工业生产，这与研究区域内产业布局一致.

(4)松花江表层沉积物中 DMP 和 BBP 对水生生物无生态风险，DEP 处于低生态风险水平，而 DEHP 和 DBP 对水生生物具有高生态风险.

参考文献：

[1] Gómez-Hens A, Aguilar-Caballos M P. Social and economic interest in the control of phthalic acid esters[J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2003, **22**(11): 847-857.

[2] Zeng F, Cui K Y, Fu J M, *et al*. Biodegradability of Di(2-Ethylhexyl) phthalate by *Pseudomonas fluorescens* FS1 [J]. Water, Air, and Soil Pollution, 2002, **140**(1-4): 297-305.

[3] Peterson J C, Freeman D H. Phthalate ester concentration variations in dated sediment cores from the Chesapeake Bay [USA][J]. Environmental Science & Technology, 1982, **16**(8): 464-469.

[4] Simoneit B R T, Medeiros P M, Didyk B M. Combustion products of plastics as indicators for refuse burning in the atmosphere[J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(18): 6961-6970.

[5] Tyler C R, Jobling S, Sumpter J P. Endocrine disruption in wildlife: a critical review of the evidence[J]. Critical Reviews in Toxicology, 1998, **28**(4): 319-361.

[6] Vitali M, Guidotti M, Macilenti G, *et al*. Phthalate esters in freshwaters as markers of contamination sources—A site study in Italy[J]. Environment International, 1997, **23**(3): 337-347.

[7] Blair J D, Ikonomou M G, Kelly B C, *et al*. Ultra-trace determination of phthalate ester metabolites in seawater, sediments, and biota from an urbanized marine inlet by LC/ESI-MS/MS[J]. Environmental Science & Technology, 2009, **43**(16): 6262-6268.

[8] Fierens T, Servaes K, van Holderbeke M, *et al*. Analysis of phthalates in food products and packaging materials sold on the Belgian market[J]. Food and Chemical Toxicology, 2012, **50**(7): 2575-2583.

[9] Xu D M, Deng X J, Fang E H, *et al*. Determination of 23 phthalic acid esters in food by liquid chromatography tandem mass spectrometry[J]. Journal of Chromatography A, 2014, **1324**: 49-56.

[10] 刘成，孙翠竹，张哿，等. 胶州湾表层水体中邻苯二甲酸酯的污染特征和生态风险[J]. 环境科学，2019，**40**(4)：1726-1733.
Liu C, Sun C Z, Zhang G, *et al*. Pollution characteristics and ecological risk assessment of phthalate esters (PAEs) in the surface water of Jiaozhou Bay[J]. Environmental Science, 2019, **40**(4): 1726-1733.

[11] Howdeshell K L, Wilson V S, Furr J, *et al*. A mixture of five phthalate esters inhibits fetal testicular testosterone production in the sprague-dawley rat in a cumulative, dose-additive manner [J]. Toxicological Sciences, 2008, **105**(1): 153-165.

[12] Gao J, Chi J. Biodegradation of phthalate acid esters by different marine microalgal species[J]. Marine Pollution Bulletin, 2015, **99**(1-2): 70-75.

[13] Yuan S Y, Liu C, Liao C S, *et al*. Occurrence and microbial degradation of phthalate esters in Taiwan river sediments[J]. Chemosphere, 2002, **49**(10): 1295-1299.

[14] Tan G H. Residue levels of phthalate esters in water and sediment samples from the Klang River basin[J]. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology, 1995, **54**(2): 171-176.

[15] Huang P C, Tien C J, Sun Y M, *et al*. Occurrence of phthalates in sediment and biota: Relationship to aquatic factors and the biota-sediment accumulation factor[J]. Chemosphere, 2008, **73**(4): 539-544.

[16] Adeniyi A A, Okedeyi O O, Yusuf K A. Flame ionization gas chromatographic determination of phthalate esters in water, surface sediments and fish species in the Ogun river catchments, Ketu, Lagos, Nigeria [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2011, **172**(1-4): 561-569.

[17] Chen C W, Chen C F, Dong C D. Distribution of phthalate esters in sediments of Kaohsiung Harbor, Taiwan[J]. Soil and Sediment Contamination: An International Journal, 2013, **22**(2): 119-131.

[18] Li R L, Liang J, Gong Z B, *et al*. Occurrence, spatial distribution, historical trend and ecological risk of phthalate esters in the Jiulong River, Southeast China[J]. Science of the Total Environment, 2017, **580**: 388-397.

[19] Gao X Y, Li J, Wang X N, *et al*. Exposure and ecological risk of phthalate esters in the Taihu Lake basin, China [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2019, **171**: 564-570.

[20] 董磊, 汤显强, 林莉, 等. 长江武汉段丰水期水体和沉积物中多环芳烃及邻苯二甲酸酯类有机污染物污染特征及来源分析[J]. 环境科学, 2018, **39**(6): 2588-2599.
Dong L, Tang X Q, Lin L, *et al*. Pollution characteristics and source identification of polycyclic aromatic hydrocarbons and phthalic acid esters during high water level periods in the Wuhan section of the Yangtze River, China[J]. Environmental Science, 2018, **39**(6): 2588-2599.

[21] Zhang Z M, Zhang H H, Zhang J, *et al*. Occurrence, distribution, and ecological risks of phthalate esters in the seawater and sediment of Changjiang River Estuary and its adjacent area[J]. Science of the Total Environment, 2018, **619-620**: 93-102.

[22] Zhang Z M, Zhang H H, Zou Y W, *et al*. Distribution and ecotoxicological state of phthalate esters in the sea-surface microlayer, seawater and sediment of the Bohai Sea and the Yellow Sea[J]. Environmental Pollution, 2018, **240**: 235-247.

[23] Liu H, Cui K Y, Zeng F, *et al*. Occurrence and distribution of phthalate esters in riverine sediments from the Pearl River Delta region, South China[J]. Marine Pollution Bulletin, 2014, **83**(1): 358-365.

[24] Srivastava A, Sharma V P, Tripathi R, *et al*. Occurrence of phthalic acid esters in Gomti River Sediment, India [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2010, **169**(1-4): 397-406.

[25] Adeogun A O, Ibor O R, Omogbemi E D, *et al*. Environmental occurrence and biota concentration of phthalate esters in Epe and Lagos Lagoons, Nigeria[J]. Marine Environmental Research, 2015, **108**: 24-32.

[26] Arfaeinia H, Fazlzadeh M, Taghizadeh F, *et al*. Phthalate acid esters (PAEs) accumulation in coastal sediments from regions with different land use configuration along the Persian Gulf[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2019, **169**: 496-506.

[27] 王芳. 关于松花江流域水污染防治策略探究[J]. 环境与可持续发展, 2017, **42**(2): 178-179.
Wang F. Research on water pollution control strategies in Songhua River basin [J]. Environment and Sustainable Development, 2017, **42**(2): 178-179.

[28] 王东辉, 王禹, 林志华. 松花江水环境污染特征及防治措施[J]. 环境科学与管理, 2007, **32**(6): 67-69.
Wang D H, Wang Y, Lin Z H. The control and damage of organic pollutant in Song-hua River to the ecological environment [J]. Environmental Science and Management, 2007, **32**(6): 67-69.

[29] 陆继龙, 郝立波, 王春珍, 等. 第二松花江中下游水体邻苯二甲酸酯分布特征[J]. 环境科学与技术, 2007, **30**(12): 35-37.
Lu J L, Hao L B, Wang C Z, *et al*. Distribution characteristics of phthalic acid esters in middle and lower reaches of No. 2 Songhua River[J]. Environmental Science & Technology, 2007, **30**(12): 35-37.

[30] 崔志丹, 冯建国, 焦立新, 等. 松花湖表层沉积物中PAHs及PAEs污染特征[J]. 环境科学研究, 2019, **32**(9): 1531-1539.
Cui Z D, Feng J G, Jiao L X, *et al*. Pollution characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons and phthalate esters in surface sediments from Lake Songhua[J]. Research of Environmental Sciences, 2019, **32**(9): 1531-1539.

[31] 杨艳艳. 松花江表层沉积物中PAHs和PAEs的分布特征及生态风险评价[D]. 兰州: 兰州大学, 2018.
Yang Y Y. The distribution characteristics and ecological risk accessment of PAHs and PAEs in surface sediment of the Songhua River[D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2018.

[32] Zhao Z, Tang J H, Xie Z Y, *et al*. Perfluoroalkyl acids (PFAAs) in riverine and coastal sediments of Laizhou Bay, North China[J]. Science of the Total Environment, 2013, **447**: 415-423.

[33] Lemly A D. Evaluation of the Hazard quotient method for risk assessment of selenium [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 1996, **35**(2): 156-162.

[34] Wang J, Bo L J, Li L N, *et al*. Occurrence of phthalate esters in river sediments in areas with different land use patterns[J]. Science of the Total Environment, 2014, **500-501**: 113-119.

[35] Li K K, Ma D, Wu J, *et al*. Distribution of phthalate esters in agricultural soil with plastic film mulching in Shandong Peninsula, East China[J]. Chemosphere, 2016, **164**: 314-321.

[36] 廖日权, 张艳军, 钟书明, 等. 钦州湾入海口邻苯二甲酸酯分布特征及生态风险评价[J]. 环境污染与防治, 2019, **41**(4): 458-462, 467.
Liao R Q, Zhang Y J, Zhong S M, *et al*. Distribution characteristics and ecological risk evaluation of phthalic acid esters in sediments of Qinzhou Bay estuary[J]. Environmental Pollution and Control, 2019, **41**(4): 458-462, 467.

[37] Sun J Q, Huang J, Zhang A P, *et al*. Occurrence of phthalate esters in sediments in Qiantang River, China and inference with urbanization and river flow regime[J]. Journal of Hazardous Materials, 2013, **248-249**: 142-149.

[38] Gao D W, Li Z, Wen Z D, *et al*. Occurrence and fate of phthalate esters in full-scale domestic wastewater treatment plants and their impact on receiving waters along the Songhua River in China[J]. Chemosphere, 2014, **95**: 24-32.

[39] Kang L, Wang Q M, He Q S, *et al*. Current status and historical variations of phthalate ester (PAE) contamination in the sediments from a large Chinese lake (Lake Chaohu) [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2016, **23**(11): 10393-10405.

[40] Mai B X, Chen S J, Luo X J, *et al*. Distribution of polybrominated diphenyl ethers in sediments of the Pearl River Delta and adjacent South China Sea[J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(10): 3521-3527.

[41] Wang F, Xia X H, Sha Y J. Distribution of phthalic acid esters in Wuhan section of the Yangtze River, China[J]. Journal of Hazardous Materials, 2008, **154**(1-3): 317-324.

[42] Zheng X X, Zhang B T, Teng Y G. Distribution of phthalate acid esters in lakes of Beijing and its relationship with anthropogenic activities[J]. Science of the Total Environment, 2014, **476-477**: 107-113.

[43] Zeng F, Cui K Y, Xie Z Y, *et al*. Occurrence of phthalate esters in water and sediment of urban lakes in a subtropical city, Guangzhou, South China[J]. Environment International, 2008, **34**(3): 372-380.

[44] 王凡, 沙玉娟, 夏星辉, 等. 长江武汉段水体邻苯二甲酸酯分布特征研究[J]. 环境科学, 2008, **29**(5): 1163-1169.
Wang F, Sha Y J, Xia X H, *et al*. Distribution characteristics of phthalic acid esters in the wuhan section of the Yangtze River [J]. Environmental Science, 2008, **29**(5): 1163-1169.

[45] 张彦鹏, 周爱国, 刘存富, 等. 长江流域武汉段水体中邻苯二甲酸酯含量研究[J]. 环境科学与技术, 2011, **34**(11): 130-134.
Zhang Y P, Zhou A G, Liu C F, *et al*. Phthalic acid esters in wuhan section of Yangtze River[J]. Environmental Science & Technology, 2011, **34**(11): 130-134.

[46] 朱冰清, 高占啟, 胡冠九, 等. 太湖重点区域水环境中邻苯二甲酸酯的污染水平及生态风险评价[J]. 环境科学, 2018, **39**(8): 3614-3621.
Zhu B Q, Gao Z Q, Hu G J, *et al*. Contamination levels and ecological risk assessment of phthalate esters (paes) in the aquatic environment of key areas of Taihu Lake [J]. Environmental Science, 2018, **39**(8): 3614-3621.

[47] Sha Y J, Xia X H, Yang Z F, *et al*. Distribution of PAEs in the middle and lower reaches of the Yellow River, China [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2007, **124**(1-3): 277-287.

[48] Wang J L, Liu P, Qian Y. Microbial degradation of di-n-butyl phthalate[J]. Chemosphere, 1995, **31**(9): 4051-4056.

[49] Staples C A, Peterson D R, Parkerton T F, *et al*. The Environmental fate of phthalate esters: a literature review[J]. Chemosphere, 1997, **35**(4): 667-749.

[50] Hassanzadeh N, Esmaili Sari A, Khodabandeh S, *et al*. Occurrence and distribution of two phthalate esters in the sediments of the Anzali wetlands on the coast of the Caspian Sea (Iran)[J]. Marine Pollution Bulletin, 2014, **89**(1-2): 128-135.

[51] Chang C F, Man C Y. Magnetic photocatalysts of copper phthalocyanine-sensitized titania for the photodegradation of dimethyl phthalate under visible light[J]. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 2014, **441**: 255-261.

[52] Wu D L, Hu B L, Zheng P, *et al*. Anoxic biodegradation of dimethyl phthalate (DMP) by activated sludge cultures under nitrate-reducing conditions [J]. Journal of Environmental Sciences, 2007, **19**(10): 1252-1256.

[53] Gao D W, Wen Z D. Phthalate esters in the environment: a critical review of their occurrence, biodegradation, and removal during wastewater treatment processes[J]. Science of the Total Environment, 2016, **541**: 986-1001.

[54] 杨志豪, 何明靖, 杨婷, 等. 邻苯二甲酸酯在重庆市城市土壤中的污染分布特征及来源分析[J]. 环境科学, 2018, **39**(7): 3358-3364.
Yang Z H, He M J, Yang T, *et al*. Occurrence and distribution of phthalate esters in urban soils of Chongqing City [J]. Environmental Science, 2018, **39**(7): 3358-3364.

[55] Romero-Franco M, Hernández-Ramírez R U, Calafat A M, *et al*. Personal care product use and urinary levels of phthalate metabolites in Mexican women[J]. Environment International, 2011, **37**(5): 867-871.

[56] Koniecki D, Wang R, Moody R P, *et al*. Phthalates in cosmetic and personal care products: Concentrations and possible dermal exposure[J]. Environmental Research, 2011, **111**(3): 329-336.

[57] Zhang L F, Dong L, Ren L J, *et al*. Concentration and source identification of polycyclic aromatic hydrocarbons and phthalic acid esters in the surface water of the Yangtze River Delta, China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2012, **24**(2): 335-342.

[58] Meng X Z, Wang Y, Xiang N, *et al*. Flow of sewage sludge-borne phthalate esters (PAEs) from human release to human intake: implication for risk assessment of sludge applied to soil [J]. Science of the Total Environment, 2014, **476-477**: 242-249.

[59] Lin Z P, Ikonomou M G, Jing H W, *et al*. Determination of phthalate ester congeners and mixtures by LC/ESI-MS in sediments and biota of an urbanized marine inlet [J]. Environmental Science & Technology, 2003, **37**(10): 2100-2108.

[60] 林莉, 董磊, 李青云, 等. 三峡库区水体和底泥中多环芳烃和邻苯二甲酸酯类分布和来源[J]. 湖泊科学, 2018, **30**(3): 660-667.
Lin L, Dong L, Li Q Y, *et al*. Distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons and phthalic acid esters in water and surface sediment from the Three Gorges Reservoir [J]. Journal of Lake Science, 2018, **30**(3): 660-667.

[61] Wang J, Luo Y M, Teng Y, *et al*. Soil contamination by phthalate esters in Chinese intensive vegetable production systems with different modes of use of plastic film[J]. Environmental Pollution, 2013, **180**: 265-273.

[62] Sun J T, Pan L L, Zhan Y, *et al*. Contamination of phthalate esters, organochlorine pesticides and polybrominated diphenyl ethers in agricultural soils from the Yangtze River Delta of China [J]. Science of the Total Environment, 2016, **544**: 670-676.

[63] 国家统计局. 中国环境统计年鉴 2017[M]. 北京: 中国统计出版社, 2018.

[64] van Wezel A P, van Vlaardingen P, Posthumus R, *et al*. Environmental risk limits for two phthalates, with special emphasis on endocrine disruptive properties[J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2000, **46**(3): 305-321.

[65] Ecology Publication No. 03-09-043, Guidance on the development of sediment sampling and analysis plans meeting the requirements of the sediment management standards (Chapter 173-204 WAC)[S].

[66] 韩文辉, 赵颖, 党晋华, 等. 汾河流域邻苯二甲酸酯的分布特征及生态风险评价[J]. 环境化学, 2017, **36**(6): 1377-1387.
Han W H, Zhao Y, Dang J H, *et al*. Distribution and ecological risk evaluation of phthalate esters in Fenhe River Basin[J]. Environmental Chemistry, 2017, **36**(6): 1377-1387.

[67] 胡雄星, 韩中豪. 苏州河表层沉积物中邻苯二甲酸酯的分布特征及风险评价[J]. 环境监测管理与技术, 2011, **23**(S1): 49-52.
Hu X X, Han Z H. Distribution of phthalic acid esters in surface sediments from Suzhou River and its risk evaluation [J]. Administration and Technique of Environmental Monitoring, 2011, **23**(S1): 49-52.

[68] 张道来, 刘娜, 朱志刚, 等. 青岛市典型海岸带表层沉积物中邻苯二甲酸酯的组成、分布特征及生态风险评价[J]. 海洋环境科学, 2016, **35**(5): 652-657.
Zhang D L, Liu N, Zhu Z G, *et al*. Distribution, chemical composition and ecological risk assessment of phthalic acid esters in surface sediments from typical coastal zones of Qingdao City [J]. Marine Environment Science, 2016, **35**(5): 652-657.

HUANJING KEXUE Vol. 41 No. 1
Environmental Science (monthly) Jan. 15, 2020

CONTENTS

Spatiotemporal Variations of $PM_{2.5}$ Pollution Evolution in China in Recent 20 Years ····· SHI Yan, LIU Rui-mei, LUO Yi, *et al.* (1)
Characteristics of Aerosol Particulate Concentrations and Their Climate Background in Shanghai During 2007-2016 ····· ZHENG Qing-feng, SHI Jun, TAN Jian-guo, *et al.* (14)
Characteristics and Sources of Elements in $PM_{2.5}$ During Summer for Three Typical Cities in Pingdingshan-Suizhou-Wuhan, Central China ····· LIU Wei-jie, SHI Ming-ming, CHENG Cheng, *et al.* (23)
$PM_{2.5}$ Pollution Characteristics During Winter and Summer in the Hohhot-Baotou-Ordos Region, China ····· LI Yi-ming, LIU Jia-yuan, SHI Guo-liang, *et al.* (31)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of $PM_{2.5}$ During Heavy Pollution in Shijiazhuang City Around New Year's Day 2019 ····· ZHOU Jing-bo, DUAN Jing-chun, WANG Jian-guo, *et al.* (39)
Modeling Studies of Source Contributions to $PM_{2.5}$ in Chengdu, China ····· XU Yan-ling, YI Ai-hua, XUE Wen-bo (50)
Chemical Characteristics of Arsenic in $PM_{2.5}$ in Beijing ····· SHI Shao-xuan, YANG Yan-rong, QIN Juan-juan, *et al.* (57)
Pollution Characteristics and Potential Source Contributions of Gaseous Elemental Mercury (GEM) During Summer and Autumn in Ningbo City ····· YI Hui, LIN Jia-mei, CAI Qiu-liang, *et al.* (65)
Seasonal Characteristics and Source Analysis of Water-Soluble Ions in $PM_{2.5}$ of Anyang City ····· SUN You-chang, JIANG Nan, WANG Shen-bo, *et al.* (75)
Analysis of Stable Carbon Isotope Characteristics of $PM_{2.5}$ in Summer and Winter Season in Xinxiang City ····· YAN Guang-xuan, SONG Xin, ZHANG Jing-wen, *et al.* (82)
Construction and Evaluation on Size Resolved Source Apportionment Methods Based on Particle Size Distribution of Chemical Species ····· LIANG Yong-li, TIAN Ying-ze, LIU Tong, *et al.* (90)
Fine Particulate Emission Characteristics of an Ultra-Low Emission Coal-Fired Power Plant ····· WANG Run-fang, MA Da-wei, JIANG Shao-yi, *et al.* (98)
Driving Factors of the Significant Increase in Surface Ozone in the Beijing-Tianjin-Hebei Region, China, During 2013-2018 ····· YU Yi-jun, MENG Xiao-yan, WANG Zhen, *et al.* (106)
Characteristic of Surface Ozone and Meteorological Parameters Analysis in Anyang City ····· YANG Jian, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, *et al.* (115)
Emission Inventory of Intermediate Volatility Organic Compounds from Vehicles in the Yangtze River Delta in 2017 and the Impact on the Formation Potential of Secondary Organic Aerosols ····· WANG Qian, HUANG Ling, WANG Yang-jun, *et al.* (125)
Exhaust Smoke of Non-Road Vehicles in Typical Cities of Eastern China ····· LU Jun, HU Qing-yao, YANG Qiang, *et al.* (133)
Emission Status and Standards of Volatile Organic Compounds from Chinese and Foreign Bulk Petroleum Terminals ····· HU Wei, REN Bi-qi, HUANG Yu-hu, *et al.* (139)
Secondary Organic Aerosol Mass Yield and Characteristics from 4-ethylguaiacol Aqueous ·OH Oxidation: Effects of Initial Concentration ····· ZHUANG Yu, CHEN Yan-tong, LI Xu-dong, *et al.* (146)
Stable Isotope Characteristics and Vapor Source of Precipitation in the South and North Slopes of Wushaoling Mountain ····· XU Xiu-ting, JIA Wen-xiong, ZHU Guo-feng, *et al.* (155)
Characteristics and Influencing Factors of Stable Hydrogen and Oxygen Isotopes in Groundwater in the Permafrost Region of the Source Region of the Yangtze River ····· WANG Shao-yong, HE Xiao-bo, DING Yong-jian, *et al.* (166)
Hydrochemical and Isotopic Characteristics of the Lake Balkhash Catchment, Kazakhstan ····· SHEN Bei-bei, WU Jing-lu, Jilili Abuduwaili, *et al.* (173)
Effect of a Comprehensive Improvement Project on Water Quality in Urban Lakes: A Case Study of Water Quality Variation in Lihu Lake Over the Past 30 Years ····· TIAN Wei, YANG Zhou-sheng, SHAO Ke-qiang, *et al.* (183)
Detection Method, Distribution, and Risk Assessment of Pharmaceuticals and Personal Care Products in the Yellow Sea and the East China Sea ····· CHEN Xian, ZHANG Cai-jie, YANG Gui-peng, *et al.* (194)
Occurrence and Risk Assessment of Organophosphate Esters in Source Water of the Nanjing Section of the Yangtze River ····· LI Dong, ZHANG Sheng-hu, ZHANG Qin, *et al.* (205)
Spatial Distribution, Spectral Characteristics, and Sources Analysis of Dissolved Organic Matter from Baiyangdian Lake in Xiong'an New District During the Winter Freezing Period ····· ZHOU Shi-lei, SUN Yue, ZHANG Yi-ran, *et al.* (213)
Spatial Characteristics, Risk Assessment, and Source Analysis of Elements in Surface Sediments from the Baiyangdian Lake ····· WANG Jing-zhong, LIU Zhuo, WEI Hao, *et al.* (224)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Phthalate Esters in Surface Sediments of the Songhua River ····· WANG Huan, YANG Yong-zhe, WANG Hai-yan, *et al.* (232)
Occurrence Relationship Between Microplastics and Heavy Metals Pollutants in the Estuarine Sediments of Poyang Lake and the Yangtze River ····· LI Wen-hua, JIAN Min-fei, LIU Shu-li, *et al.* (242)
Effect of Ozonation on Microorganism in the Biological Activated Carbon and Disinfection By-Products in the Effluent ····· LIU Bao-ming, WANG Xi-xi, ZHANG Xiao-xia, *et al.* (253)
Refined Assessment of Exposure and Health Risks of Heavy Metals in Water for the Children in Xigu District, Lanzhou ····· CHEN Yue-fang, SUN Shan-wei, DUAN Xiao-li, *et al.* (262)
Adsorption of Phosphate on Mg/Fe Layered Double Hydroxides (Mg/Fe-LDH) and Use of Mg/Fe-LDH as an Amendment for Controlling Phosphorus Release from Sediments ····· WU Jun-lin, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, *et al.* (273)
Characteristics and Mechanism of Monothioarsenate Adsorption on Sand, Sediment, and Goethite ····· LIAO Dan-xue, SHAN Hui-mei, PENG San-xi, *et al.* (284)
Substructure Characteristics of Combined Acid-Base Modified Sepiolite and Its Adsorption for Cd(Ⅱ) ····· XIE Sha, XU Ying-ming, YAN Cui-xia, *et al.* (293)
Characteristics of Nitrogen Metabolism by Denitrifying Bacterial Agents in Low Dissolved Oxygen Black Odor Water ····· ZHAO Zhi-rui, LIU Shuo, LI Duo, *et al.* (304)
Metagenomic Analysis of Antibiotic Resistant Bacteria and Resistance Genes in a Pharmaceutical and Chemical Wastewater Treatment Plant ····· CHEN Hong-ling, ZHANG Xing-tao, WANG Qing, *et al.* (313)
Measurements of Bacterial Community and Biodiversity from Activated Sludge for a Wastewater Treatment Containing Starch ····· ZHAO Ting-ting, QIAO Kai, WANG Lei, *et al.* (321)
Process Control and Operation Optimization of PN-SAD Coupling Process Based on SBR-ABR ····· CHEN Chong-jun, ZHANG Min, JIANG Ying, *et al.* (330)
Effects of Intermittent Starvation on the Operation of the SNAD Process ····· LI Dong, LIU Zhi-cheng, XU Gui-da, *et al.* (337)
Nitrogen Removal from Mature Landfill Leachate via Denitrification-Partial Nitritation-ANAMMOX Based on a Zeolite Biological Aerated Filter ····· CHEN Xiao-zhen, WANG Xiao-jun, Karasuta Chayangkun, *et al.* (345)
Rapid Achievement of Nitrifying Micro-granular Sludge and Its Nitritation Function ····· LIU Wen-ru, SONG Jia-jun, WANG Jian-fang, *et al.* (353)
Effect of On/Off Aeration Time Ratio Under High Frequency On/Off Aeration on Performance of Nitrosated Granular Sludge ····· ZHANG Jie, LAO Hui-mei, LI Dong, *et al.* (360)
Occurrence, Distribution, Source, and Health Risk Assessment of Polybrominated Diphenyl Ethers in Surface Soil from the Shen-Fu Region, Northeast China ····· XIANG Xin-xin, LU Yin-tao, RUAN Qi-yang, *et al.* (368)
Vertical Pollution Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Heterogeneous Unsaturated Zone Under a Coking Plant ····· MENG Xiang-shuai, WU Meng-meng, CHEN Hong-han, *et al.* (377)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes and Mobile Genetic Elements in Beijing Vegetable Base Soils ····· ZHANG Ru-feng, SONG Yuan, GAO Hao-ze, *et al.* (385)
Stoichiometric Characteristics of Purple Sloping Cropland Under Long-term Fertilization and Cultivation ····· DU Ying-ni, LI Tian-yang, HE Bing-hui, *et al.* (394)
Ecological Stoichiometry of Carbon, Nitrogen, and Phosphorus in Subtropical Paddy Soils ····· SONG Jia-ling, SHENG Hao, ZHOU Ping, *et al.* (403)
Denitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation in Soil Nitrogen Migration Process in a Farmland of Wanshandang Lake ····· CHEN Zhi-hao, QIN Yun-bin, DING Bang-jing, *et al.* (412)
Effects of Straw Biochar on Soil Microbial Metabolism and Bacterial Community Composition in Drip-irrigated Cotton Field ····· WANG Jing, MA Li-juan, LONG Ze-hua, *et al.* (420)
Source Appointment of Heavy Metals in Agricultural Soils of the Jiulong River Basin Based on Positive Matrix Factorization ····· HUANG Hua-bin, LIN Cheng-qi, HU Gong-ren, *et al.* (430)
Spatial Distribution of Soil Arsenic and Arsenic Enrichment in Crops in the Oasis Region of the Southeastern Tarim Basin ····· CHEN Yun-fei, ZHOU Jin-long, ZENG Yan-yan, *et al.* (438)
Bioavailability, Translocation, and Accumulation Characteristic of Heavy Metals in a Soil-Crop System from a Typical Carbonate Rock Area in Guangxi, China ····· MA Hong-hong, PENG Min, LIU Fei, *et al.* (449)
Effects of Different Amendments on Fractions and Uptake by Winter Wheat in Slightly Alkaline Soil Contaminated by Cadmium and Nickel ····· ZHANG Jing-jing, ZHU Shuang-ge, ZHU Li-nan, *et al.* (460)
Effect of Different Passivating Agents on the Stabilization of Heavy Metals in Chicken Manure Compost and Its Maturity Evaluating Indexes ····· LUAN Run-yu, GAO Shan, XU Ying-ming, *et al.* (469)
Response of Soil Respiration and Its Components to Nitrogen and Phosphorus Addition in Farming-Withdrawn Grassland in the Semiarid Loess Hilly-Gully Region ····· ZHOU Jun-jie, CHEN Zhi-fei, YANG Quan, *et al.* (479)
Subsequent Effects of Slag and Biochar Application on Greenhouse Gas Emissions from Paddy Fields in the Fuzhou Plain ····· LAN Xing-fu, WANG Xiao-tong, ZHOU Ya-xin, *et al.* (489)