

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

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

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	郑庆峰, 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, 程敏, 黎莹, 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, 段青春, 王建国, 杨鹏, 刘煥武, 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, 段青春, 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, 周崑, 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, 胡馨遥, 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, 张显, 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, 张益森 (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, 董伟丰, 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, 缪恒峰, 潘杨 (253)
兰州市西固区儿童饮水重金属暴露与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)
一硫代磷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)
脱氮菌剂在低溶解性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药基因	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, 阮起扬, 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, 丁帮琛, 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, 刘泽华, 陆伟, 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钾空间分布及农作物钾富集特征	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)	

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¹, 简敏菲^{1,2*}, 刘淑丽¹, 江玉梅¹, 邓艳彬¹, 朱琳¹

(1. 江西师范大学生命科学学院, 江西省亚热带植物资源保护与利用重点实验室, 南昌 330022; 2. 江西师范大学鄱阳湖湿地与流域研究教育部重点实验室, 南昌 330022)

摘要: 重金属是环境中的典型污染物, 而微塑料是新型污染物, 两者的共存可导致复合污染而存在潜在的生态风险. 为探讨鄱阳湖湿地环境中微塑料与重金属的赋存关系, 对鄱阳湖湖口-长江段沉积物中微塑料与重金属 (Cu、Cd、Pb、Zn 和 Cr) 的含量及其形态特征进行分析. 结果表明, 沉积物干物质中微塑料丰度范围为 356 ~ 1 452 $\text{n}\cdot\text{kg}^{-1}$, 平均丰度值达 982.33 $\text{n}\cdot\text{kg}^{-1}$; 通过显微鉴定微塑料形态有碎片类、纤维类和薄膜类, 以碎片类为主 (48.23%); 而颜色主要以彩色为主; 粒径以 $\leq 1.00\text{mm}$ 为主; 聚合物成分主要为聚乙烯 (PE)、低密度聚乙烯 (LDPE) 和聚丙烯 (PP). 电镜扫描-能谱分析 (SEM-EDS) 发现, 微塑料表面具粗糙、多孔、裂痕和撕裂的特征, 并附着多种重金属元素. 5 种重金属在湿地沉积物中均有不同程度积累, 冗余分析表明, 沉积物主要理化因素 (TOC、pH、EC 及粒径) 及微塑料赋存对重金属的总含量均有显著影响 ($P < 0.05$); 方差分解分析 (VPA) 显示, 理化因素和微塑料对重金属有效态的贡献率分别为 37.70% 和 0.70%, 但两者的协同贡献率达 49.60%, 可导致重金属形态向有效态转化. 微塑料可作为重金属的附着载体并将进一步增强重金属污染物的生物有效性, 对湿地生态安全构成潜在威胁.

关键词: 鄱阳湖; 沉积物; 微塑料; 重金属形态; 赋存关系

中图分类号: X522 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)01-0242-11 DOI: 10.13227/j.hj.kx.201907169

Occurrence Relationship Between Microplastics and Heavy Metals Pollutants in the Estuarine Sediments of Poyang Lake and the Yangtze River

LI Wen-hua¹, JIAN Min-fei^{1,2*}, LIU Shu-li¹, JIANG Yu-Mei¹, DENG Yan-bing¹, ZHU Lin¹

(1. Jiangxi Provincial Key Laboratory of Protection and Utilization of Subtropical Plant Resources, College of Life Science, Jiangxi Normal University, Nanchang 330022, China; 2. Key Laboratory of Poyang Lake Wetland and Watershed Research, Ministry of Education, Jiangxi Normal University, Nanchang 330022, China)

Abstract: Heavy metals are typical pollutants in the environment and microplastics are relatively newly recognized environmental pollutants, with their coexistence potentially compounding pollution and ecological risks. In this study, we investigate the contents and morphological characteristics of microplastics and heavy metals (Cu, Cd, Pb, Zn, and Cr) in the estuarine sediments of Poyang Lake and the Yangtze River as a means of exploring the relationship between them. The results showed that the abundance of microplastics ranged from 356 $\text{n}\cdot\text{kg}^{-1}$ to 1 452 $\text{n}\cdot\text{kg}^{-1}$, with an average abundance of 982.33 $\text{n}\cdot\text{kg}^{-1}$ in the dry sediments. Microplastics were identified as being of three main types: fragments, fibers, and films, whereby fragments were the most dominant type found and accounted for 48.23% of the total microplastics in the sediments. The main color of microplastics in the sediments was chromatic, and the particle size of most microplastics was $< 1\text{ mm}$. The major polymer components were polyethylene (PE), low density polyethylene (LDPE), and polyethylene (PP). Scanning electron microscopy with energy dispersive X-ray spectroscopy (SEM-EDS) results indicated that the surfaces of microplastics were rough, porous, cracked, and torn, and that the five heavy metals were found on the surfaces of different microplastics. These heavy metals accumulated to different degrees in the estuarine sediments, and redundancy analysis indicated that environmental factors [including the total organic carbon (TOC), pH, electrical conductivity (EC), and sediment particle size] and the occurrence of microplastics all had significant ($P < 0.05$) effects on the distribution of heavy metal concentrations in sediments. Variation partitioning analysis (VPA) showed that the contribution rates of environmental factors and microplastics to the bioavailability of heavy metals were 37.70% and 0.70% respectively, but the combined effect was 49.60%. We conclude that microplastics in sediments may act as carriers of heavy metals and activate their bioavailability, hence posing a potential threat to the ecological security of estuaries and wetlands.

Key words: Poyang Lake; sediments; microplastics; heavy metals speciation; coexistence

目前, 人类正生活在一个“塑料世”崛起的时代^[1], 全球塑料制品产量正以成倍的速度逐年增长, 仅 2015 年, 年产量已达 3.22 亿 t ^[2]. 由于塑料材质具有轻便、耐用、耐蚀和价格低廉等特点, 因此在食品包装、工农和医疗等方面被广泛应用^[3]. 但塑料的非循环利用已引发一系列环境问题, 进入环

境中的微塑料 ($< 5\text{ mm}$) 除易对生物产生视觉混淆

收稿日期: 2019-07-19; 修订日期: 2019-08-05

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41461042, 31760161); 江西省自然科学基金项目 (20171BAB214011)

作者简介: 李文华 (1995 ~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为湿地生态学, E-mail: 1563279443@qq.com

* 通信作者, E-mail: jianminfei0914@163.com

而被误食外,还可通过积累、诱捕、缠绕和窒息等方式对生物构成直接威胁^[4].此外,由于微塑料疏水性强、比表面积大,Cu、Zn、Fe、Cd、Cr、Pb和Ni等多种重金属可吸附在其表面而在水环境中运输和迁移^[5,6].这种吸附过程主要受环境中的总有机碳(TOC)、pH值、电导率(EC)和沉积物粒径等理化因素影响,并受微塑料的材质、重金属的化学特性等因素影响^[7].微塑料还可改变水环境中重金属的生物有效性^[8],进而影响生物的蛋白质合成、能量储存和生物转化等一系列生理过程和变化^[9].因此,微塑料和重金属的复合污染及生物效应近年来正备受人们高度关注.

已有研究表明,沉积物中重金属的环境行为和生态毒理效应不仅与其含量有关,而且与其化学形态密切相关^[10].沉积物中重金属的迁移能力、生物有效性及其潜在环境危害很大程度上取决于其赋存形态,重金属形态的判断是其毒性响应及生态风险的重要指标^[11,12].一般可将重金属形态分为弱酸提取态(F1态)、可还原态(F2态)、可氧化态(F3态)和残渣态(F4态),前三态统称为有效态.其中,F1态生物有效性和毒性最高,在酸性条件下容易释放;F2态在还原条件下容易释放,对水体环境造成二次污染;F3态在碱性或氧化环境下可转化至活性态,对生物具有潜在的危害性;F4态性质十分稳定,活性与毒性最小,通常被认为不具生物有效性^[13,14].因此,研究重金属形态与分析环境中重金属的迁移转化及生物效应具有重要的现实意义.

鄱阳湖是我国面积最大的内陆淡水湖泊,也是国际上重要的湿地^[15],在调蓄洪水和保护生物多样性等方面发挥着重要的生态功能.近年来,随着鄱阳湖生态经济区的建设,社会经济持续发展、矿产资源的开发利用不断增长,来自农业面源、工业污染源和城镇生活的污染负荷逐年增加,鄱阳湖面临的环境污染问题也日益突出^[16].目前有关于河流沉积物中重金属污染评价的研究较多^[17,18],关于微塑料污染方面的研究也有一些调查^[19,20],但关于鄱阳湖沉积物中微塑料与重金属等赋存关系与复合污染方面的研究尚较缺乏.本文选择鄱阳湖湖口与长江交汇区的沉积物为研究对象,通过监测并分析其主要理化性质、微塑料与重金属的赋存特征,揭示沉积物中微塑料与重金属污染物的相互关系.

1 材料与方法

1.1 采样站位及样品采集

鄱阳湖湖口-长江段位于鄱阳湖最北端湖口段,该区域既是鄱阳湖水系汇入长江的终点,也是长江

下游的起点.湖口段的水文状况极其复杂,正常水情下鄱阳湖水汇入长江,但历史上也出现过6次完整的周期性长江自湖口倒灌鄱阳湖^[21].历史时期,由于长江南摆至湖口,导致江水倒灌鄱阳湖盆地以及天然堤(梅家洲)与沙坝(张家洲)的形成,它们对鄱阳湖盆地泄水的阻碍,促进了现代鄱阳湖的形成与发展;过去的研究表明,鄱阳湖水位尤其退水水位主要受江湖关系控制,退水迟早与快慢取决于长江水情^[22].

2018年7月21日,在区域内分别选择出湖前的陡山(29°41'N, 116°11'E, DS)、出湖段的渡口(29°45'N, 116°13'E, DK)和出湖后的拓机(29°46'N, 116°15'E, TJ)这3个站位进行观测采样(图1).每个站位各选取3个平行采样点,每个平行样点各采集3个沉积物样品,每个站位各9个样品,共采集并分析测试27个沉积物样品.采样时用彼得逊不锈钢采泥器(金水华禹公司供,最深可达30 m水深)采集各点水体底部5 cm表层沉积样.所有沉积物样品均装入铝箔封口袋中密封后运回实验室,将样品中植物残体、砾石、贝壳等杂质剔除后,置于避光处自然风干.所有样品均分成3等份,前2份均用玛瑙研钵磨细,其中过60目筛的样品用于理化指标测定,过100目筛的样品用于重金属监测前处理;最后1份样品不做过筛处理,仅用于微塑料的浮选分离.

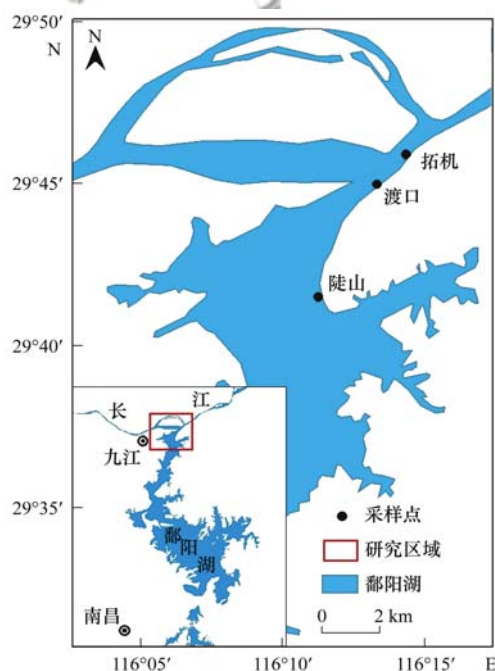


图1 鄱阳湖湖口-长江段站位示意

Fig. 1 Map of the estuary of the Poyang Lake and the Yangtze River and sampling sites

1.2 沉积物理化指标的测定

沉积物中影响微塑料吸附重金属的主要理化因素主要有沉积物粒径、总有机碳(TOC)、pH值和

电导率(EC)等指标^[7],本研究选择上述指标进行监测.分别采用比重法测定样品粒径大小^[23];用重铬酸钾氧化-分光光度法(HJ 615-2011)测定 TOC^[24];采用梅特勒-托利多 Seven2Go 系列电导仪测定 EC 和 pH 值.

1.3 微塑料的分离

依据密度分离原理将微塑料($0.8 \sim 1.4 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$)和沉积物颗粒($2.5 \sim 2.6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$)分离.由于 NaCl 溶液难以浮选出密度大的塑料颗粒,而 NaI 溶液能改善此不足且能提高微塑料的回收率,本研究采用两步分离法(NaCl ~ NaI 饱和溶液)进行浮选分离^[25],借鉴周倩等学者的浮选分离装置^[26]并加以改进后成连续流动分离浮选装置^[19].称取 1 kg 沉积物样品(干重)置于样品杯中,先将饱和 NaCl ($1.2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$)持续通入样品中进行初次分离浮选;初次分离浮选后仍有一些密度大的塑料颗粒和有机质,再持续通入饱和 NaI 溶液($1.6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$)进行分离,为避免 NaI 浮选液对部分微塑料产生的染色问题,同时加入 30% H_2O_2 溶液除去有机质并收集上清液.将收集的上清液用真空抽滤装置(GM-0.33A)过滤,滤膜采用 $\Phi 50 \text{ mm} \times 5 \mu\text{m}$ 的醋酸纤维素滤膜,将抽滤好的滤膜置于玻璃培养皿中风干备用.为防止背景污染,实验所用液体均须经滤膜过滤,同时采用 $>0.25 \text{ mm}$ 的石英砂作为背景样本.其中,NaCl 和 NaI 溶液对密度为 $1.05 \sim 1.07 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ 、粒径 $0.2 \sim 0.5 \text{ mm}$ 的聚苯乙烯(阿拉丁试剂公司供)的回收率分别达到 97.5% 和 95.5%,沉积物中微塑料的分离提取和观察操作均在超净工作台中进行.

1.4 微塑料的鉴定

采用倒置生物显微镜(XD-202,上海仪圆光学厂供)下观察微塑料的特征(颜色、粒径、形态),并采用 Nano Measuer 1.2 软件统计各样点微塑料的丰度值($\text{n}\cdot\text{kg}^{-1}$,每 kg 沉积物干物质中微塑料的数量),微塑料粒径以最长一边的长度记为粒径大小,鉴定出微塑料粒径均小于 5 mm .其次,对于不确定的颗粒或粒径小于 $500 \mu\text{m}$ 的微塑料,采用扫描电子显微镜-能谱仪(SEM-EDS, S-3400N,日本日立电子)进一步观察微塑料形貌及其表面附着物化学成

分.最后,取各形态微塑料($n = 298$,确保每份样品中鉴定数量不少于 10 个)鉴定其聚合物成分,置于傅立叶变换红外光谱仪[Nicolet 6700,美国热电(尼高利)公司供]测定各样品的红外光谱图.

1.5 重金属含量的测定与形态分离

沉积物样品预处理采用 $\text{HCl-HNO}_3\text{-HClO}_4$ 三酸消解体系,并按等温梯度设置控制条件消解^[27];重金属的形态按照欧共体标准物质局(Community Bureau of Reference)提出的一种三步连续提取法:BCR 法^[28].样品中重金属含量及各形态均采用等离子体发射光谱仪[725-ES,美国 Varian(瓦里安)公司供]测定,分析过程中利用国家土壤顺序提取形态标准品(GBW07437)、平行样、空白样进行质量控制,重金属各元素的回收率均在 88% ~ 102%,相对标准偏差均小于 10%.连续提取法中各元素的回收率计算公式为^[29]:

$$\text{回收率}(\%) = \frac{(\text{F1} + \text{F2} + \text{F3} + \text{F4})}{\text{总含量}} \times 100$$

1.6 数据分析

采用 SPSS 20.0 软件对沉积物的理化因素、重金属含量数据进行单因素方差检验(One-way ANOVA),相关性分析则采用 Pearson 检验法.运用 CANOCO 5.0 软件中的冗余分析处理微塑料及理化因素对重金属含量的相关性;采用方差分解分析(variation partitioning analyses, VPA)处理微塑料及主要理化因素对重金属有效态的贡献率^[30].所有数据结果均在显著性水平 $P = 0.05$ 上进行检验并以 Origin 9.0 软件整理绘图.

2 结果与分析

2.1 沉积物理化特征

根据粒径大小,分别划分为砂粒、粉粒和黏粒这 3 种不同粒径.如表 1 所示,研究区内沉积物的粒径主要以砂粒为主($50.00\% \sim 91.16\%$),渡口沉积物中砂粒含量显著高于其它站位($P < 0.05$),而黏粒含量显著最低($P < 0.05$),因此沉积物质地主要划分为砂质土及砂壤土.渡口处于鄱阳湖与长江交汇点,水动力冲刷作用较大,该站位的 pH 值、EC 值和有机质含量显示出不同于其它站位.

表 1 沉积物的理化性质¹⁾

Table 1 Physicochemical properties of sampled sediments

站位	pH 值	EC 值 / $\text{mS}\cdot\text{cm}^{-1}$	TOC / $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	沉积物粒径			沉积物质地
				砂粒 ($2.0 \sim 0.02 \text{ mm}$)/%	粉粒 ($0.02 \sim 0.002 \text{ mm}$)/%	黏粒 ($<0.002 \text{ mm}$)/%	
陡山	$6.84 \pm 0.05\text{b}$	$7.02 \pm 0.79\text{c}$	$11.23 \pm 0.12\text{ab}$	$65.45 \pm 2.11\text{b}$	$10.00 \pm 1.71\text{b}$	$23.04 \pm 2.40\text{a}$	砂质黏壤土
渡口	$7.90 \pm 0.28\text{a}$	$17.34 \pm 1.01\text{a}$	$12.29 \pm 0.35\text{a}$	$86.31 \pm 3.43\text{a}$	$4.89 \pm 1.40\text{c}$	$8.62 \pm 1.80\text{c}$	砂土及砂质壤土
拓机	$7.46 \pm 0.44\text{a}$	$11.21 \pm 0.62\text{b}$	$9.83 \pm 0.3\text{b}$	$64.78 \pm 5.60\text{b}$	$17.04 \pm 2.33\text{a}$	$14.74 \pm 1.62\text{b}$	砂质壤土

1) 同一列不同小写字母表示差异显著($P < 0.05$)

2.2 微塑料赋存特征

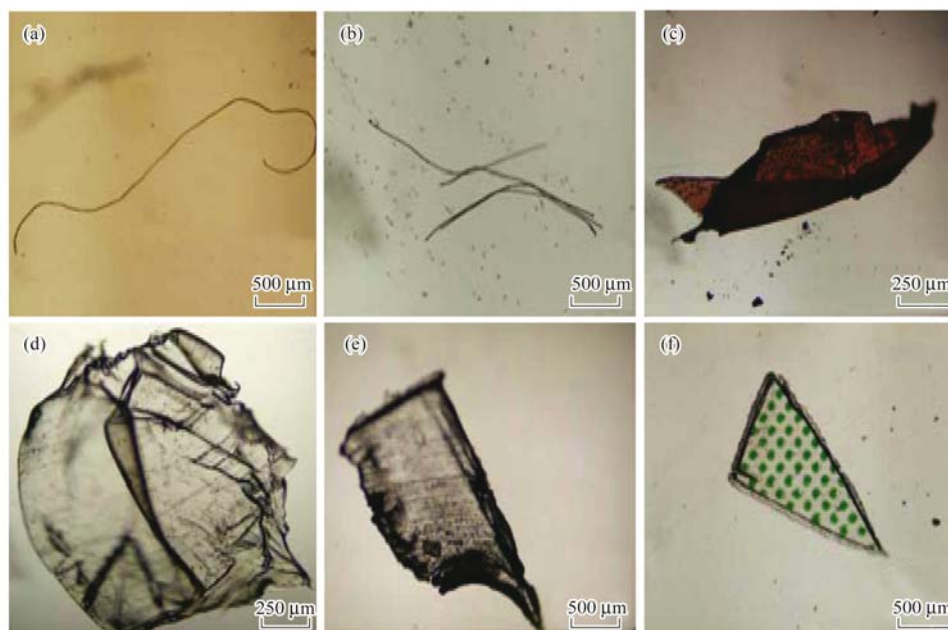
2.2.1 微塑料的主要形态及其表面特征

通过倒置生物显微镜鉴定发现微塑料的形态主要有纤维类、薄膜类和碎片类(图2)。纤维类主要呈细长线型或两头有卷须,颜色多为白色和彩色。薄膜类多为大小均匀的无规则片状,质地轻且易卷曲,颜色以透明、黑色为主。碎片类多为块状或条状的一些塑料编织袋碎片和硬质塑料碎片,主要以半透

明、黑色及彩色为主。

2.2.2 微塑料丰度特征

微塑料丰度值范围为 $356 \sim 1\,452 \text{ n} \cdot \text{kg}^{-1}$, 平均丰度值为 $982.33 \text{ n} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。其中渡口微塑料的丰度最高, 范围为 $1\,090 \sim 1\,452 \text{ n} \cdot \text{kg}^{-1}$, 其次是拓机, 丰度值范围为 $858 \sim 1\,114 \text{ n} \cdot \text{kg}^{-1}$, 陡山丰度值范围为 $356 \sim 877 \text{ n} \cdot \text{kg}^{-1}$; 渡口微塑料丰度显著高于拓机和陡山 ($P < 0.05$) [图3(a)]。



(a) 红色纤维; (b) 白色纤维; (c) 红色薄膜; (d) 透明薄膜; (e) 半透明碎片; (f) 彩色碎片

图2 沉积物中微塑料的表面形貌特征

Fig. 2 Surface morphology of microplastics in sampled sediments

微塑料以碎片类为主, 所占比例平均值为 48.23%; 其中渡口碎片类所占比例高达 58% [图3(b)], 显著高于拓机和陡山 ($P < 0.05$)。

按照粒径 ≤ 0.5 、 $0.5 \sim 1$ 、 $1 \sim 2.5$ 和 $2.5 \sim 5 \text{ mm}$ 范围划分, 约 80.68% 的微塑料粒径 $< 1 \text{ mm}$ 。其中, $1 \sim 2.5 \text{ mm}$ 和 $2.5 \sim 5 \text{ mm}$ 粒径范围的微塑料所占比例在渡口和拓机相对较高 [图3(c)]。

微塑料颜色主要划分为黑色、白色、透明和彩色(如蓝色、红色等)4种, 主要以彩色为主, 彩色微塑料所占比例平均值为 34.67%, 渡口彩色微塑料所占比例高达 59% [图3(d)], 显著高于拓机和陡山 ($P < 0.05$)。

2.2.3 微塑料的红外光谱特征

鉴定样品中 94% 的微塑料可鉴定出聚合物成分。碎片类主要为聚乙烯 (polyethylene, PE), 薄膜类主要为聚丙烯 (polypropylene, PP), 纤维类主要为低密度聚乙烯 (low density polyethylene, LDPE)。对各站沉积物样品中微塑料的不同聚合物成分比例进行统计(图4), 渡口的聚乙烯比例相对高于拓机和陡山, 但差异不显著; 拓机的低密度聚乙烯比例显著

($P < 0.05$) 高于渡口和陡山。

2.2.4 微塑料的 SEM-EDS 特征

通过扫描电子显微镜 (SEM) 与能谱仪 (EDS) 相结合分析上述各站沉积物中粒径小于 $500 \mu\text{m}$ 的聚乙烯 (PE)、低密度聚乙烯 (LDPE) 及聚丙烯 (PP) 的微塑料表面, 结果如图5。SEM 图像表明各种微塑料表面均多具粗糙、多孔、裂痕和撕裂等特征, 这种表面多样化的形貌特征有利于增加其比表面积, 提高微塑料对重金属的吸附能力。EDS 分析发现大部分微塑料表面均含有 C、O、S、Si、Ti 和 Cl 元素, 并检测出吸附有一定量的金属元素, 不同组分微塑料对金属的亲合力及吸附能力表现出差异性。聚乙烯表面吸附的金属种类及频次要高于聚丙烯和低密度聚乙烯; 而渡口的 3 种不同聚合物的微塑料吸附重金属的质量比与原子比均相对较高。

另一方面, 微塑料表面重金属能谱分析如表2所示, Cd 与 Al 主要以氧化态形式存在, 其化合物多为常用的塑料稳定剂; Pb 主要以 PbF_2 的形式存在, 是一种常见的有毒、强腐蚀的助溶剂; Fe 主要以可氧化态的有效形态 (Fe_2O_3) 存在; Ti 为检测浓度最

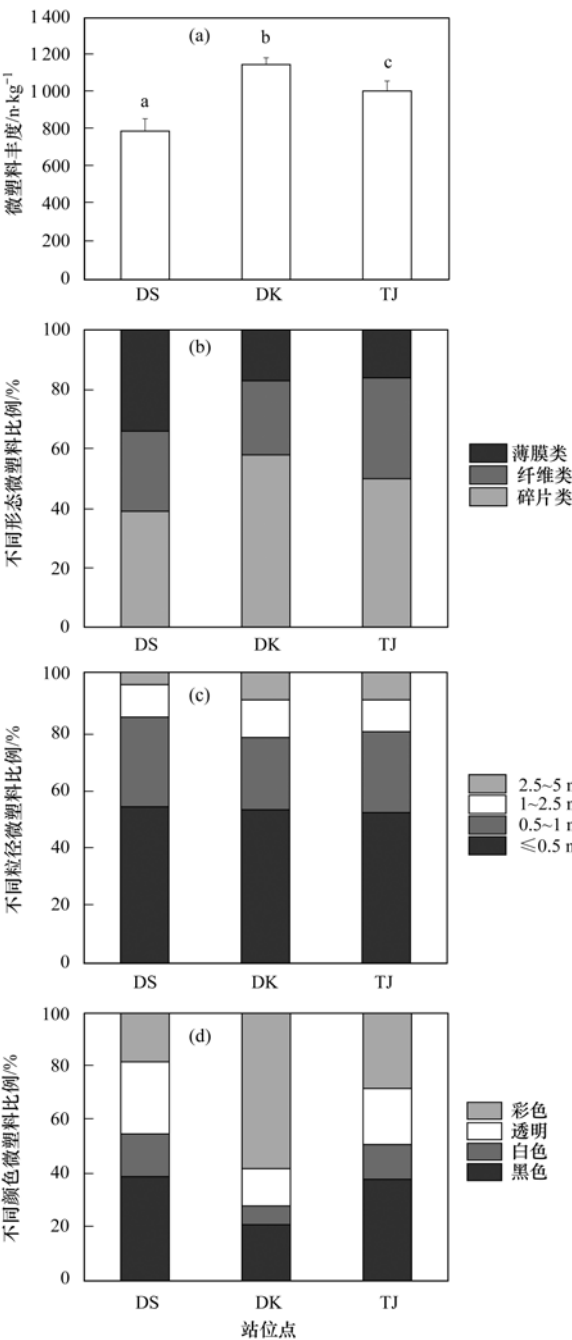


图3 不同站位微塑料的赋存特征
Fig. 3 Occurrence characteristics of microplastics at different stations

高的金属元素, TiO_2 是一种广泛应用于复合材料的抗腐蚀性颜料. 其他重金属元素 Cu、Zn、Cr 和 Mn

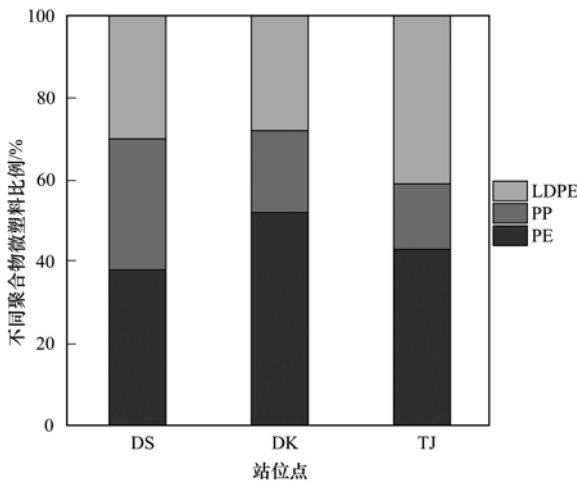


图4 不同聚合物微塑料比例
Fig. 4 Proportion of different polymer microplastics at different stations

表2 微塑料表面金属元素的能谱分析统计结果
Table 2 Statistical results of EDS analysis of metal elements on the surface of microplastics

金属元素	质量比例/%	原子比例/%
Cu	0.09 (±0.03)	0.02 (±0.00)
Cd (CdO)	0.16 (±0.04)	0.02 (±0.00)
Pb (PbF ₂)	2.56 (±0.12)	0.27 (±0.11)
Zn	0.16 (±0.04)	0.03 (±0.01)
Cr	0.12 (±0.05)	0.03 (±0.01)
Fe (Fe ₂ O ₃)	6.50 (±0.80)	2.21 (±0.20)
Mn	0.17 (±0.02)	0.14 (±0.01)
Ti (TiO ₂)	0.60 (±0.80)	0.24 (±0.09)
Al (Al ₂ O ₃)	9.17 (±2.60)	6.46 (±2.80)

等的存在形态未能在仪器上反映出, 仅测出其质量比及原子比.

2.3 沉积物中重金属的赋存

2.3.1 重金属的含量分布特征

沉积物中各重金属含量见表3, Cu、Cd、Pb、Zn 和 Cr 含量平均值分别为 29.87、0.84、84.13、86.45 和 74.23 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 各值均高于鄱阳湖沉积物中背景值, 并与相关的调查结果对比发现, 5 种重金属的含量大多高于鄱阳湖沉积物背景值. 此外, 不同站位间重金属含量也表现出显著的空间差异, 渡口 5 种重金属含量均显著高于拓机和陡山站位 ($P < 0.05$).

表3 各站位沉积物中重金属含量¹⁾/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$

Table 3 Total contents of heavy metals in the sediments at different stations/ $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$

项目	Cu	Cd	Pb	Zn	Cr
陡山	24.53 ± 1.21b	0.40 ± 0.05c	56.32 ± 4.34c	83.79 ± 3.78b	65.42 ± 5.24b
渡口	38.00 ± 2.23a	1.38 ± 0.21a	118.00 ± 7.79a	98.01 ± 6.21a	80.46 ± 4.56a
拓机	27.08 ± 0.98ab	0.74 ± 0.13b	78.07 ± 3.59b	77.55 ± 1.21b	76.81 ± 6.17ab
平均值	29.87	0.84	84.13	86.45	74.23
文献[31]	51	0.67	72	117	42.9
文献[32]	30.92	0.52	67.17	80.26	69.03
鄱阳湖背景值[33]	4.75	0.75	12.50	45.75	29.5

1) 同一列不同小写字母表示差异显著 ($P < 0.05$)

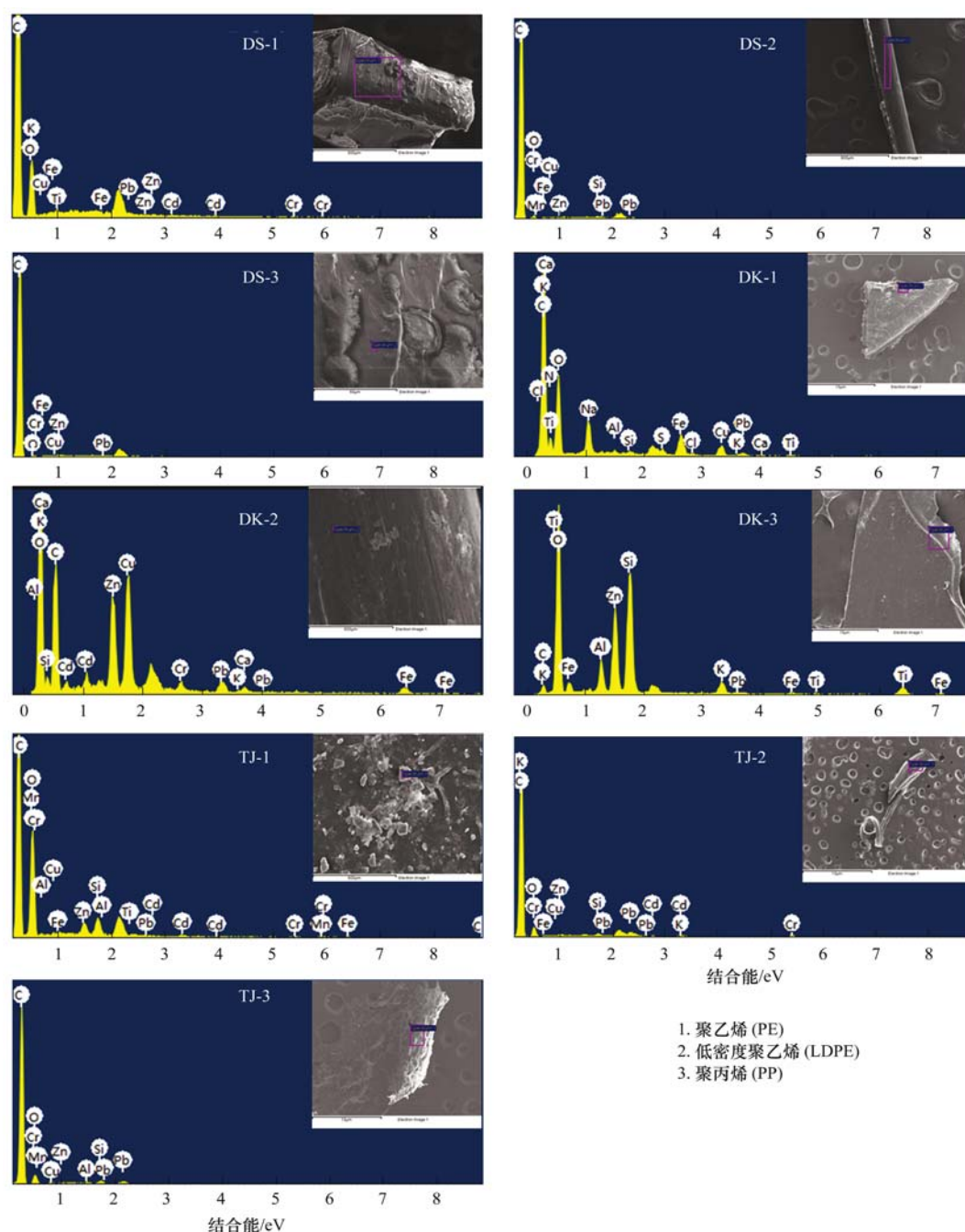


图5 沉积物中微塑料的 SEM-EDS 局部影像图

Fig. 5 SEM-EDS images of microplastics in the sediments

2.3.2 重金属的形态特征

所有样品的重金属各形态平均值所占百分比如图6. 结果显示,残渣态(F4)是所有重金属主要的存在形态(Cd除外). 单独分析不同元素,Cd的弱酸提取态(F1)占比最高,Pb的可还原态(F2)相对较高;5种重金属元素有效态(F1 + F2 + F3)所占比例(质量分数)依次为Cd(73.48%) > Pb(51.44%) > Zn(35.66%) > Cu(28.83%) > Cr(18.02%). 各站位的差异表现为,渡口重金属有效态质量分数均显著($P < 0.05$)高于陡山和拓机.

2.4 微塑料的赋存对重金属的影响

2.4.1 沉积物中微塑料与重金属的相关性分析

分别从微塑料的形态、颜色、粒径及聚合物组分赋存特征方面分析微塑料与重金属间的相关性,采用Pearson检验法,结果如表4. 碎片类与纤维类与Cu、Cd、Pb显著相关($P < 0.05$),彩色和透明微塑料与大多重金属显著相关($P < 0.05$),粒径 ≤ 0.5 mm和1~5 mm的微塑料与Cu、Cd、Pb、Cr显著相关($P < 0.05$),聚乙烯与Cu、Pb、Zn显著相关($P < 0.05$). 由此可见,无论按何种标准对微塑料进行分

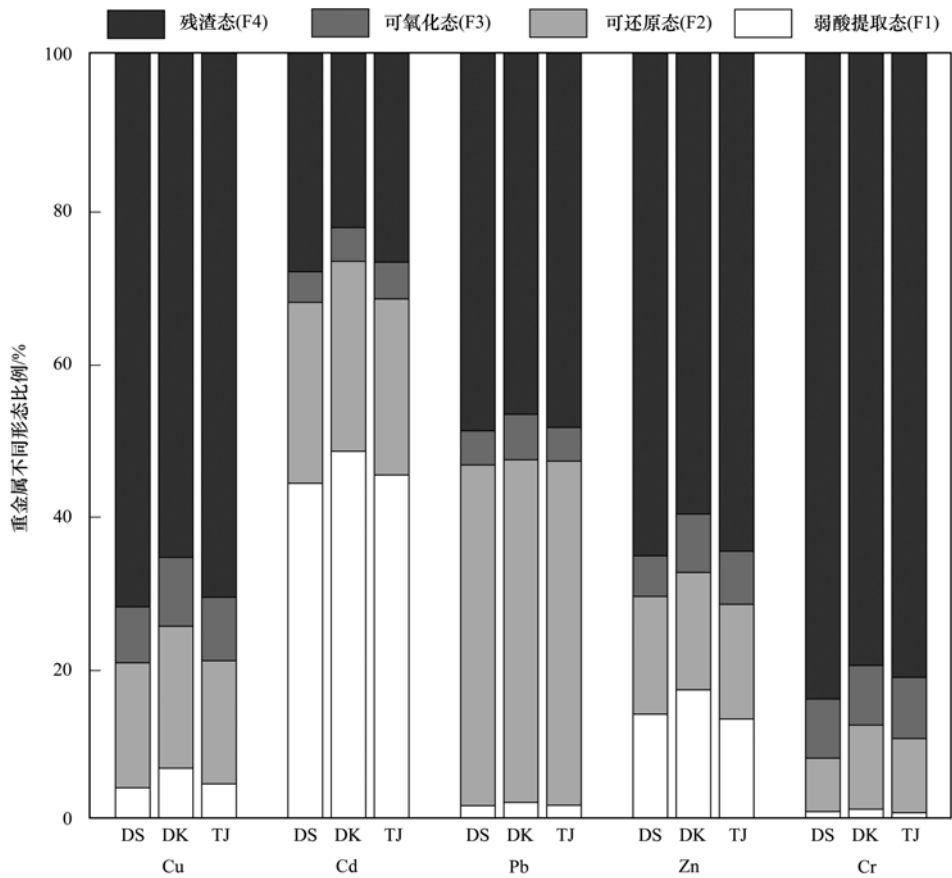


图 6 沉积物中重金属的形态特征
Fig. 6 Chemical speciation of heavy metals in the sediments

表 4 微塑料与重金属的相关性¹⁾
Table 4 Correlation between microplastics and heavy metals

项目		Cu	Cd	Pb	Zn	Cr
形态	碎片类	0.610 **	0.434 *	0.513 *	ns	ns
	薄膜类	ns	ns	ns	-0.461 *	ns
	纤维类	0.454 *	0.515 *	0.489 *	0.732 **	ns
颜色	黑色	ns	ns	ns	ns	ns
	白色	ns	ns	ns	ns	ns
	透明	0.411 *	0.389 *	0.388 *	ns	ns
	彩色	0.621 **	0.505 *	0.676 **	ns	0.522 *
粒径	≤0.5 mm	0.512 *	0.503 *	0.537 **	ns	0.408 *
	0.5 ~ 1 mm	ns	ns	ns	ns	ns
	1 ~ 2.5 mm	0.482 *	0.556 **	0.567 **	ns	0.545 **
	2.5 ~ 5 mm	0.400 *	0.396 *	0.452 *	ns	0.401 *
聚合物组分	聚乙烯	0.547 **	ns	0.435 *	0.381 *	ns
	聚丙烯	ns	ns	ns	ns	-0.445 *
	低密度聚乙烯	ns	ns	ns	ns	0.473 *

1) * * 表示在 $P < 0.01$ 水平 (双侧) 上显著相关; * 表示在 $P < 0.05$ 水平 (双侧) 上显著相关; ns 表示相关性不显著

类,微塑料的数量与重金属含量间多具正相关显著效应.

2.4.2 沉积物中微塑料及理化因素对重金属含量的影响

为进一步探究微塑料及相关理化因素对重金属含量的影响,对各站位沉积物中微塑料的赋存特征、各参数及沉积物主要理化因素等进行前置筛选(P

< 0.05),得到结果如图 7. 根据冗余分析以及蒙特卡罗检验分析发现,沉积物的主要理化因素(EC、沉积物粒径、TOC、pH 等)是影响重金属含量的关键因素;而微塑料的颜色(彩色)、粒径(≤ 0.5 mm、 $1 \sim 5$ mm)、形态(碎片类、纤维类)和聚合物组分(PE)等相应赋存特征也是影响沉积物重金属含量的显著因素.

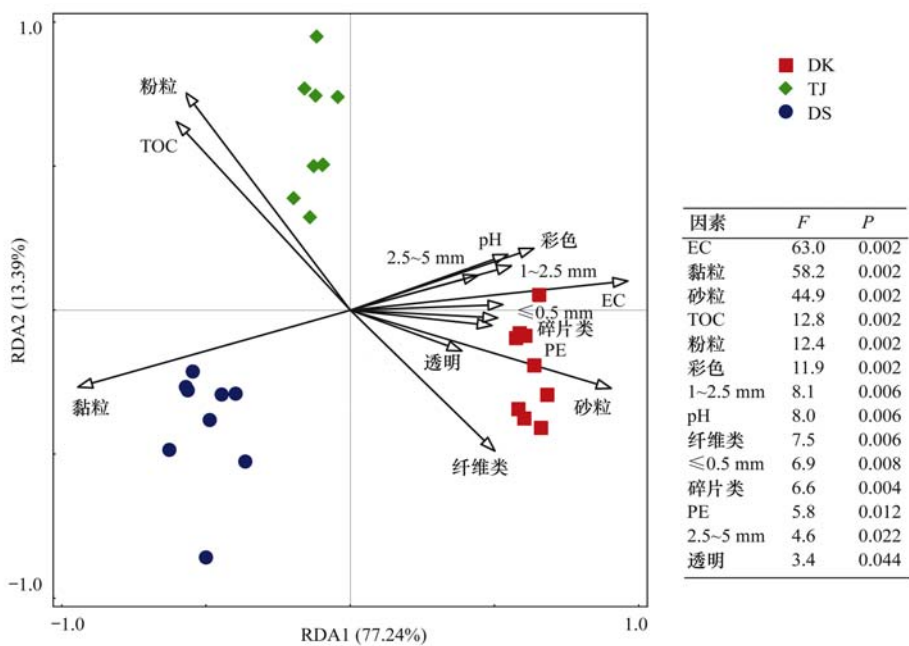


图7 微塑料及理化因素对重金属含量的冗余分析

Fig. 7 Redundancy analysis of heavy metals contents by microplastics and physicochemical factors

2.4.3 微塑料及理化因素对沉积物重金属有效态的贡献率

为了揭示沉积物中微塑料及各理化因素对重金属有效态百分比变化的贡献率,采用方差分解分析(VPA)进一步发现(图8),理化因素中的TOC、EC、pH和沉积物粒径等关键因素对重金属有效态比率的变化贡献率为33.7%,微塑料单独的贡献率虽然仅有0.7%,但两者的协同贡献率达到49.6%,反映出微塑料能进一步激化重金属形态向有效态转化,提高重金属污染物的生物有效性及其生态风险.结果还表明,微塑料($F = 7.9, P = 0.002$)及理化因素($F = 22.5, P = 0.002$)均对重金属有效态的增加产生显著影响,而微塑料对重金属形态的改变依赖于环境因素的协同贡献.

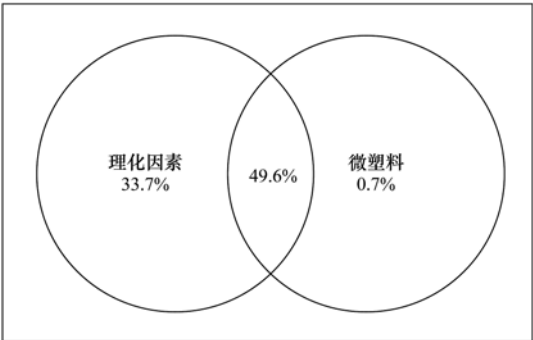


图8 方差分解分析微塑料与理化因素对重金属有效态的贡献

Fig. 8 Contribution of microplastics and physicochemical factors in sediments to the bioavailability of heavy metals as determined by variation partitioning analysis

3 讨论

3.1 微塑料的赋存特征及其生态风险

鄱阳湖湖口段是鄱阳湖水系对长江输入通量的关键区域,出湖口输出的塑料垃圾可能成为长江微塑料污染的重要来源之一.渡口站位微塑料丰度显著高于拓机和陡山.其原因可能是渡口为生活垃圾及点源污染与面源污染排放的聚集区,拓机站位靠近大型石油制品化工厂等工业企业,而陡山站位靠近山区,人口分布稀少,人为活动影响较小.湖口段沉积物微塑料丰度(以dw计算,下同)水平要高于鄱阳湖流域微塑料丰度值^[20](54~506 n·kg⁻¹)、太湖^[34](11.0~234.6 n·kg⁻¹)和长江河口^[35](20~340 n·kg⁻¹),意大利波尔塞纳湖和丘西湖^[36](112~234 n·kg⁻¹),加拿大安大略湖^[37](500~28 000 n·kg⁻¹).湖口段微塑料污染整体处于中等偏上水平.鄱阳湖出湖口和长江流域都分离出碎片类和纤维类两种形态,但鄱阳湖湖口段以碎片类为主(<5 mm),而长江口、太湖以纤维类为主(<1 mm);波尔塞纳湖和丘西湖以碎片类和纤维类为主(<1 mm),安大略湖以碎片类和纤维类为主(<2 mm);上述不同站位的微塑料形态具有差异性可能是微塑料来源和塑料材质特性不同所导致.

微塑料颜色多样性的原因是塑料在生产过程中常加入粒径5 μm以下的颜料分子作为着色剂,而着色剂与树脂大多是机械结合的,容易在老化过程中从树脂内部逐渐移至表面,形成新的污染^[38].本研究中,粒径<1 mm的微塑料所占比例高达

80.68%,与鄱阳湖蛤蜊和鲫鱼体内微塑料的粒径(0.25~1.00 mm)较相似^[20,39],由于小粒径彩色微塑料与浮游动物具有相似性,进入水体后将在一定程度上混淆生物的视觉,易被水生生物或鸟类误食,并通过食物链或食物网向高等生物迁移或富集^[40],进一步加剧湿地环境生态风险。

3.2 重金属的赋存特征

本研究重金属 Cu、Cd、Pb、Zn 和 Cr 在沉积物中均有不同程度积累,以渡口站位沉积物中的重金属含量最高,渡口站位是生活垃圾及其他各污染排放的聚集区,有机质及矿物质含量均相应较高,沉积物极化性强,易吸附金属阳离子达到电荷平衡^[41]。5 种重金属元素的含量大多高于鄱阳湖其他区域沉积物中重金属的含量^[31,32],不同形态重金属具有不同的地球化学特性,而有效态所占比例决定其生态风险与毒性效应。本研究表明,各站位 Cd 的有效态比例最高,在水体沉积物中存在较高的生态风险及隐患。渡口的 5 种重金属元素有效态比例最高,在很大程度上受其周围沉积物理化特性的影响,有效态离子和含氧化合物容易形成不溶性复合物,并可能与含有重金属的泥质砂土及黏土胶体相互作用^[42]。

3.3 微塑料与重金属共存的复合生态效应

塑料在生产过程中往往会通过添加稳定剂来提高塑料制品的交联稳定性,而稳定剂中常含有包括 Pb、Cd、Ba 和 Sn 等有毒的金属离子,这是微塑料毒性的来源之一^[43]。本研究通过 SEM-EDS 分析,5 种重金属元素在微塑料表面均被检测到,同时不同微塑料表面位置上的金属元素具有差异性,结果表明微塑料携带的金属元素并不完全是塑料生产过程中所添加物,也可能通过吸附并积聚周围环境中的重金属而形成。这一吸附累积过程可能与塑料表面附着的有机物质对表面的改性有关^[44],金属阳离子或络合物可与微塑料表面的带电位点或中性区域相互作用,并与水合氧化物共同沉淀或吸附^[45]。值得注意的是,这些金属元素可能在水生生物体内酸性、酶富集消化系统中被激活,从而影响它们的繁殖和发育,并干扰其体内重要的生物代谢过程^[46,47]。相关性分析发现,碎片类、纤维类微塑料与 Cu、Cd、Pb 显著相关($P < 0.05$),其原因可能是环境中聚乙烯和低密度聚乙烯颗粒受到磨损、挤压后,二价金属阳离子和含氧阴离子与微塑料表面带电的非极性位点间相互作用,以及中性金属和疏水性化合物间的非特异性相互作用增加了吸附重金属的可能^[8];彩色微塑料($F = 11.9, P = 0.002$)是影响重金属含量的关键因素,其原因可能是微塑料表面的着色剂(如 TiO_2 、 PbF_2 等)会释放到环境中,从而

增加沉积物重金属的含量^[38]。本研究还发现,微塑料与沉积物理化因素的共同作用不仅导致沉积物中重金属的位置发生移动,而且显著提高了其有效态比例,可促进重金属形态间的转化。游离有效态重金属比例的提高,使得水生生物机体面临更大的生态风险,影响湿地生态安全,并威胁人类健康。

4 结论

(1) 鄱阳湖湖口-长江段沉积物中微塑料丰度范围为 356 ~ 1452 $\text{n}\cdot\text{kg}^{-1}$,平均丰度值为 982.33 $\text{n}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。形态主要以碎片类、纤维类和薄膜类为主,其聚合物成分主要为聚乙烯、低密度聚乙烯和聚丙烯。微塑料表面具有粗糙、多孔、裂痕和撕裂特征,Cu、Pb、Zn、Cd 和 Cr 这 5 种重金属在其表面均有吸附。

(2) 重金属 Cu、Pb、Zn、Cd 和 Cr 在沉积物中均有不同程度积累,各元素有效态所占比例依次为 Cd (73.48%) > Pb (51.44%) > Zn (35.66%) > Cu (28.83%) > Cr (18.02%)。

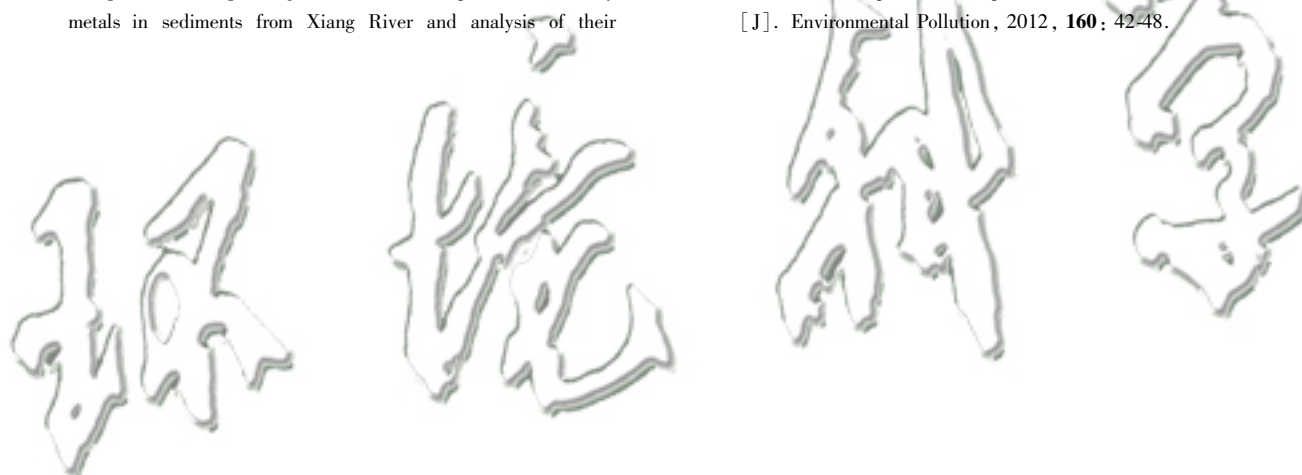
(3) 沉积物的理化因素(TOC、pH 值、EC 及粒径)是影响微塑料吸附重金属的关键因素,理化因素和微塑料对重金属有效态比例的贡献率分别为 37.7% 和 0.7%,两者的共同作用达 49.6% ($P < 0.05$),可导致重金属形态向有效态转化。微塑料可作为重金属的附着载体将进一步增强重金属污染物的生物有效性,对湿地生态安全构成潜在威胁。

参考文献:

- [1] 樊星月. “塑料世”崛起[J]. 大自然探索, 2015, (12): 34-39.
- [2] Nizzetto L, Futter M, Langaas S. Are agricultural soils dumps for microplastics of urban origin? [J]. Environmental Science & Technology, 2016, **50**(20): 10777-10779.
- [3] Gallagher A, Rees A, Rowe R, et al. Microplastics in the Solent estuarine complex, UK: An initial assessment [J]. Marine Pollution Bulletin, 2016, **102**(2): 243-249.
- [4] Mrosovsky N, Ryan G D, James M C. Leatherback turtles: the menace of plastic [J]. Marine Pollution Bulletin, 2009, **58**(2): 287-289.
- [5] Koelmans A A, Besseling E, Wegner A, et al. Correction to plastic As a carrier of POPs to aquatic organisms: a model analysis [J]. Environmental Science & Technology, 2013, **47**(15): 8992-8993.
- [6] Rochman C M, Hentschel B T, Teh S J, et al. Long-term sorption of metals is similar among plastic types: implications for plastic debris in aquatic environments [J]. PLoS One, 2014, **9**(1): 1-10.
- [7] Chakraborty P, Ramteke D, Chakraborty S. Geochemical partitioning of Cu and Ni in mangrove sediments: relationships with their bioavailability [J]. Marine Pollution Bulletin, 2015, **93**(1-2): 194-201.
- [8] Brennecke D, Duarte B, Paiva F, et al. Microplastics as vector for heavy metal contamination from the marine environment [J].

- Estuarine, Coastal and Shelf Science, 2016, **178**: 189-195.
- [9] Karami A, Romano N, Galloway T, *et al.* Virgin microplastics cause toxicity and modulate the impacts of phenanthrene on biomarker responses in African catfish (*Clarias gariepinus*) [J]. Environmental Research, 2016, **151**: 58-70.
- [10] Palleyi S, Banoo S, Kar R N, *et al.* Textural and geochemical characteristics of off shore sediment of North Bay of Bengal: a statistical approach for marine metal pollution [J]. International Journal of Sediment Research, 2015, **30**(3): 208-222.
- [11] Moore F, Nematollahi M J, Keshavarzi B. Heavy metals fractionation in surface sediments of Gowatr bay-Iran [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2015, **187**(1): 4117.
- [12] Pedro S, Duarte B, Reis G, *et al.* Metal partitioning and availability in estuarine surface sediments: Changes promoted by feeding activity of *Scrobicularia plana* and *Liza ramada* [J]. Estuarine, Coastal and Shelf Science, 2015, **167**: 240-247.
- [13] Yin H, Deng J, Shao S, *et al.* Distribution characteristics and toxicity assessment of heavy metals in the sediments of Lake Chaohu, China [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2011, **179**(14): 431-442.
- [14] Wang Z S, Wang Y S, Chen L Q, *et al.* Assessment of metal contamination in coastal sediments of the Maluan Bay (China) using geochemical indices and multivariate statistical approaches [J]. Marine Pollution Bulletin, 2015, **99**(1-2): 43-53.
- [15] 王鹏, 陈波, 张华. 基于高通量测序的鄱阳湖典型湿地土壤细菌群落特征分析 [J]. 生态学报, 2017, **37**(5): 1650-1658.
- Wang P, Chen B, Zhang H. High throughput sequencing analysis of bacterial communities in soils of a typical Poyang Lake wetland [J]. Acta Ecologica Sinica, 2017, **37**(5): 1650-1658.
- [16] 张建, 黄小兰, 张婷, 等. 鄱阳湖河湖交错带重金属污染对微生物群落与多样性的影响 [J]. 湖泊科学, 2018, **30**(3): 640-649.
- Zhang J, Huang X L, Zhang T, *et al.* Effects of heavy metal pollution on microbial community and diversity in lake-river ecotone of Lake Poyang [J]. Journal of Lake Sciences, 2018, **30**(3): 640-649.
- [17] Dai L J, Wang L Q, Li L F, *et al.* Multivariate geostatistical analysis and source identification of heavy metals in the sediment of Poyang Lake in China [J]. Science of the Total Environment, 2017, **621**: 1433-1444.
- [18] Jiang Y H, Xie H Q, Zhang H, *et al.* Dissolved heavy metals distribution and risk assessment in the Le'an River subjected to violent mining activities [J]. Polish Journal of Environmental Studies, 2018, **27**(4): 1559-1572.
- [19] 周隆胤, 简敏菲, 余厚平, 等. 乐安河—鄱阳湖段底泥微塑料的分布特征及其来源 [J]. 土壤学报, 2018, **55**(5): 1222-1232.
- Zhou L Y, Jian M F, Yu H P, *et al.* Distribution of microplastics and its source in the sediments of the Le'an river in Poyang Lake [J]. Acta Pedologica Sinica, 2018, **55**(5): 1222-1232.
- [20] Yuan W K, Liu X N, Wang W F, *et al.* Microplastic abundance, distribution and composition in water, sediments, and wild fish from Poyang Lake, China [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2019, **170**: 180-187.
- [21] 胡春华. 历史时期鄱阳湖湖口长江倒灌分析 [J]. 地理学报, 1999, **54**(1): 77-82.
- Hu C H. A historical study on the back flows of water from the Changjiang River to the Poyang Lake at HuKou, Jiangxi [J]. Acta Geographica Sinica, 1999, **54**(1): 77-82.
- [22] 张本, 陆中光, 朱宏富, 等. 鄱阳湖研究 [M]. 上海: 上海科学技术出版社, 1988. 15-71.
- Zhang B, Lu Z G, Zhu H F, *et al.* Studies on Poyang lake [M]. Shanghai: Shanghai Science and Technology Press, 1988. 15-71.
- [23] Håkanson L, Janasson M. Principles of lake sedimentology [M]. Berlin, Heidelberg: Springer, 1983. 82-91.
- [24] 鲁如坤. 土壤农业化学分析方法 [M]. 北京: 中国农业科技出版社, 2000.
- [25] Prata J C, da Costa J P, Duarte A C, *et al.* Methods for sampling and detection of microplastics in water and sediment: a critical review [J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2019, **110**: 150-159.
- [26] 周倩, 章海波, 周阳, 等. 滨海滩涂土壤中微塑料的分离及其表面微观特征 [J]. 科学通报, 2016, **61**(14): 1604-1611.
- Zhou Q, Zhang H B, Zhou Y, *et al.* Separation of microplastics from a coastal soil and their surface microscopic features [J]. Chinese Science Bulletin, 2016, **61**(14): 1604-1611.
- [27] 简敏菲, 李玲玉, 徐鹏飞, 等. 鄱阳湖-乐安河湿地水环境中重金属污染的时空分布特征 [J]. 环境科学, 2014, **35**(5): 1759-1765.
- Jian M F, Li L Y, Xu P F, *et al.* Spatiotemporal variation characteristics of heavy metals pollution in the water, soil and sediments Environment of the Lean River-Poyang Lake Wetland [J]. Environmental Science, 2014, **35**(5): 1759-1765.
- [28] Davidson C M, Thomas R P, McVey S E, *et al.* Evaluation of a sequential extraction procedure for the speciation of heavy metals in sediments [J]. Analytica Chimica Acta, 1994, **291**(3): 277-286.
- [29] Palma P, Ledo L, Alvarenga P. Assessment of trace element pollution and its environmental risk to freshwater sediments influenced by anthropogenic contributions: the case study of Alqueva reservoir (Guadiana Basin) [J]. CATENA, 2015, **128**: 174-184.
- [30] Rui J P, Li J B, Wang S P, *et al.* Responses of bacterial communities to simulated climate changes in alpine meadow soil of the Qinghai-Tibet plateau [J]. Applied and Environmental Microbiology, 2015, **81**(17): 6070-6077.
- [31] 伍恒赞, 罗勇, 张起明, 等. 鄱阳湖沉积物重金属空间分布及潜在生态风险评价 [J]. 中国环境监测, 2014, **30**(6): 114-119.
- Wu H Y, Luo Y, Zhang Q M, *et al.* Spatial distribution and potential ecological risk assessment of heavy metals in sediments of Poyang Lake [J]. Environmental Monitoring in China, 2014, **30**(6): 114-119.
- [32] 张大文, 罗林广, 张莉, 等. 鄱阳湖表层沉积物中砷及重金属赋存形态及其潜在生态风险 [J]. 长江流域资源与环境, 2014, **23**(8): 1132-1138.
- Zhang D W, Luo L G, Zhang L, *et al.* Speciation and potential ecological risk assessment of as and heavy metals in surface sediments of Poyang lake [J]. Resources and Environment in the Yangtze Basin, 2014, **23**(8): 1132-1138.
- [33] 何纪力, 郭依勤, 桂小文. 江西省土壤环境背景值专家系统 [J]. 中国环境监测, 1992, **8**(3): 66-69.
- [34] Su L, Xue Y G, Li L Y, *et al.* Microplastics in Taihu Lake, China [J]. Environmental Pollution, 2016, **216**: 711-719.
- [35] Peng G Y, Zhu B S, Yang D Q, *et al.* Microplastics in sediments of the Changjiang Estuary, China [J]. Environmental Pollution, 2017, **225**: 283-290.
- [36] Fischer E K, Paglialonga L, Czech E, *et al.* Microplastic

- pollution in lakes and lake shoreline sediments-a case study on Lake Bolsena and Lake Chiusi (central Italy) [J]. Environmental Pollution, 2016, **213**: 648-657.
- [37] Ballent A, Corcoran P L, Madden O, *et al.* Sources and sinks of microplastics in Canadian Lake Ontario nearshore, tributary and beach sediments[J]. Marine Pollution Bulletin, 2016, **110**(1): 383-385.
- [38] Sahin S, Yayla P. Effects of testing parameters on the mechanical properties of polypropylene random copolymer [J]. Polymer Testing, 2005, **24**(5): 613-619.
- [39] Su L, Cai H W, Kolandhasamy P, *et al.* Using the Asian clam as an indicator of microplastic pollution in freshwater ecosystems [J]. Environmental Pollution, 2018, **234**: 347-355.
- [40] Costa M F, do Sul J A I, Silva-Cavalcanti J S, *et al.* On the importance of size of plastic fragments and pellets on the strandline: a snapshot of a Brazilian beach [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2010, **168**(1-4): 299-304.
- [41] 王鸣宇, 张雷, 秦延文, 等. 湘江表层沉积物重金属的赋存形态及其环境影响因子分析[J]. 环境科学学报, 2011, **31**(11): 2447-2458.
- Wang M Y, Zhang L, Qin Y W, *et al.* Speciation of heavy metals in sediments from Xiang River and analysis of their environmental factors[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2011, **31**(11): 2447-2458.
- [42] Galán E, Gómez-Ariza J L, González I, *et al.* Heavy metal partitioning in river sediments severely polluted by acid mine drainage in the Iberian Pyrite Belt[J]. Applied Geochemistry, 2003, **18**(3): 409-421.
- [43] Imhof H K, Laforsch C, Wiesheu A C, *et al.* Pigments and plastic in limnetic ecosystems: a qualitative and quantitative study on microparticles of different size classes [J]. Water Research, 2016, **98**: 64-74.
- [44] Turner A, Holmes L A. Adsorption of trace metals by microplastic pellets in fresh water[J]. Environmental Chemistry, 2015, **12**(5): 600-610.
- [45] Ashton K, Holmes L, Turner A. Association of metals with plastic production pellets in the marine environment[J]. Marine Pollution Bulletin, 2010, **60**(11): 2050-2055.
- [46] Cole M, Lindeque P, Halsband C, *et al.* Microplastics as contaminants in the marine environment: a review[J]. Marine Pollution Bulletin, 2011, **62**(12): 2588-2597.
- [47] Holmes L A, Turner A, Thompson R C, *et al.* Adsorption of trace metals to plastic resin pellets in the marine environment [J]. Environmental Pollution, 2012, **160**: 42-48.



CONTENTS

Spatiotemporal Variations of PM _{2.5} Pollution Evolution in China in Recent 20 Years	SHI Yan, LIU Rui-mei, LUO Yi, <i>et al.</i> (1)
Characteristics of Aerosol Particulate Concentrations and Their Climate Background in Shanghai During 2007-2016	ZHENG Qing-feng, SHI Jun, TAN Jian-guo, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (90)
Fine Particulate Emission Characteristics of an Ultra-Low Emission Coal-Fired Power Plant	WANG Run-fang, MA Da-wei, JIANG Shao-yi, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (106)
Characteristic of Surface Ozone and Meteorological Parameters Analysis in Anyang City	YANG Jian, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (125)
Exhaust Smoke of Non-Road Vehicles in Typical Cities of Eastern China	LU Jun, HU Qing-yao, YANG Qiang, <i>et al.</i> (133)
Emission Status and Standards of Volatile Organic Compounds from Chinese and Foreign Bulk Petroleum Terminals	HU Wei, REN Bi-qi, HUANG Yu-hu, <i>et al.</i> (139)
Secondary Organic Aerosol Mass Yield and Characteristics from 4-ethylguaiaacol Aqueous ·OH Oxidation: Effects of Initial Concentration	ZHUANG Yu, CHEN Yan-tong, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (166)
Hydrochemical and Isotopic Characteristics of the Lake Balkhash Catchment, Kazakhstan	SHEN Bei-bei, WU Jing-lu, Jilili Abuduwali, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (213)
Spatial Characteristics, Risk Assessment, and Source Analysis of Elements in Surface Sediments from the Baiyangdian Lake	WANG Jing-zhong, LIU Zhao, WEI Hao, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (273)
Characteristics and Mechanism of Monothioarsenate Adsorption on Sand, Sediment, and Goethite	LIAO Dan-xue, SHAN Hui-mei, PENG San-xi, <i>et al.</i> (284)
Substructure Characteristics of Combined Acid-Base Modified Sepiolite and Its Adsorption for Cd(II)	XIE Sha, XU Ying-ming, YAN Cui-xia, <i>et al.</i> (293)
Characteristics of Nitrogen Metabolism by Denitrifying Bacterial Agents in Low Dissolved Oxygen Black Odor Water	ZHAO Zhi-rui, LIU Shuo, LI Duo, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (313)
Measurements of Bacterial Community and Biodiversity from Activated Sludge for a Wastewater Treatment Containing Starch	ZHAO Ting-ting, QIAO Kai, WANG Lei, <i>et al.</i> (321)
Process Control and Operation Optimization of PN-SAD Coupling Process Based on SBR-ABR	CHEN Chong-jun, ZHANG Min, JIANG Ying, <i>et al.</i> (330)
Effects of Intermittent Starvation on the Operation of the SNAD Process	LI Dong, LIU Zhi-cheng, XU Gui-da, <i>et al.</i> (337)
Nitrogen Removal from Mature Landfill Leachate via Denitrification-Partial Nitrification-ANAMMOX Based on a Zeolite Biological Aerated Filter	CHEN Xiao-zhen, WANG Xiao-jun, Karasuta Chayangkun, <i>et al.</i> (345)
Rapid Achievement of Nitrifying Micro-granular Sludge and Its Nitrification Function	LIU Wen-ru, SONG Jia-jun, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (377)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes and Mobile Genetic Elements in Beijing Vegetable Base Soils	ZHANG Ru-feng, SONG Yuan, GAO Hao-ze, <i>et al.</i> (385)
Stoichiometric Characteristics of Purple Sloping Cropland Under Long-term Fertilization and Cultivation	DU Ying-ni, LI Tian-yang, HE Tian-hui, <i>et al.</i> (394)
Ecological Stoichiometry of Carbon, Nitrogen, and Phosphorus in Subtropical Paddy Soils	SONG Jia-ling, SHENG Hao, ZHOU Ping, <i>et al.</i> (403)
Denitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation in Soil Nitrogen Migration Process in a Farmland of Wanshangang Lake	CHEN Zhi-hao, QIN Yun-bin, DING Bang-jing, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (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, <i>et al.</i> (489)