

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.12
第41卷 第12期

目次(卷终)

我国地级及以上城市臭氧污染来源及控制区划分	闫慧, 张维, 侯墨, 李银松, 高平, 夏青, 孟晓艳, 范丽雅, 叶代启 (5215)
2015~2018年我国PM _{2.5} 健康损害价值的动态评估	李惠娟, 周德群, 魏永杰 (5225)
2011~2017年中国PM _{2.5} 多尺度时空分异特征分析	杨文涛, 谯鹏, 刘贤赵, 雷雨亮 (5236)
关中地区PM _{2.5} 时空演化及人口暴露风险	黄晓军, 祁明月, 李艳雨, 王森, 黄馨 (5245)
中原城市冬季两次重污染形成机制及来源	贾佳, 丛怡, 高清敏, 王玲玲, 杨静静, 张国辉 (5256)
西北工业城市冬季PM _{2.5} 污染特征及理化性质	杨燕萍, 陈强, 王莉娜, 杨丽丽 (5267)
基于PMF模型的PM _{2.5} 中金属元素污染及来源的区域特征分析	邓林俐, 张凯山, 殷子渊, 李欣悦, 武文琪, 向铎鹏 (5276)
重庆主城区降尘中重金属污染特征及评价	张夏, 刘斌, 肖柏林, 王佳, 万达 (5288)
鄂尔多斯市夏秋季气溶胶新粒子生成过程影响因素分析	孔祥晨, 王红磊, 张连霞, 呼群, 李瑞峰, 许彩琴 (5295)
杭州市城区挥发性有机物污染特征及反应活性	景盛翱, 高雅琴, 沈建东, 王倩, 彭亚荣, 李英杰, 王红丽 (5306)
成都市区夏季大气挥发性有机物污染特征及来源解析	徐晨曦, 陈军辉, 姜涛, 韩丽, 王波, 李英杰, 王成辉, 刘政, 钱骏 (5316)
石家庄市挥发性有机物和臭氧的污染特征及源解析	王帅, 崔建升, 冯亚平, 刘大喜, 陈静, 田亮, 冯超, 王梦璇, 王学臣, 王婷婷 (5325)
厦门市工业源VOCs排放清单及控制对策分析	吴冬阳, 庄马展, 吴艳聪, 金磊, 吴义诚, 高攀峰, 刘建福, 金月正, 潘亚雷, 傅海燕 (5336)
建筑胶黏剂使用VOCs排放系数与排放清单	梁小明, 孙西勃, 苏燕花, 黄礼海, 陈锋, 任璐, 卢清, 赖君怡, 陈朋龙, 陈来国 (5345)
我国西北工业区城市大气多氯联苯来源及健康风险	毛潇萱, 李子璇, 宋世杰, 章晓冬, 高宏, 李春新, 黄韬, 马建民 (5352)
基于广州塔观测的城市近地面甲醛垂直分布特征	黄山, 裴成磊, 张莹, 宋奇聪, 齐吉朋, 赵一鸣, 王鸣, 邵敏 (5362)
新水沙条件下长江中下游干流水体总磷时空变化分析	卓海华, 姜保峰, 吴云丽, 王瑞琳, 陈杰, 兰静 (5371)
三峡库区汉丰湖水体氮磷及化学计量比季节变化特征	钱田, 黄祺, 何丙辉, 李天阳, 刘淑婧, 付适, 曾荣昌, 向可翠 (5381)
衡水湖沉积物营养盐形态分布特征及污染评价	张嘉雯, 魏健, 刘利, 王俭, 朱元荣, 段亮 (5389)
宜兴市横山水库底泥内源污染及释放特征	崔会芳, 陈淑云, 杨春晖, 唐婉莹, 殷鹏, 尹洪斌 (5400)
梅江流域清凉山水库沉积物重金属污染、生态风险评价及来源解析	江涛, 林伟稳, 曹英杰, 黎坤, 翟映雪, 李睿, 陈建耀 (5410)
汉江流域金水河与淇河潜在硝化速率及硝化功能基因的影响因子	赵彬洁, 王旭, 张健, 谭香, 何睿, 周全, 史航, 张全发 (5419)
山东省滨海旅游度假区水体环境典型全氟化合物污染特征及潜在生态风险	王世亮, 曹雪稚 (5428)
太湖重点区域多介质水体中有机磷酸酯的分布特征及来源解析	吕佳佩, 张振飞, 刘杨, 张恒, 王春英, 罗莹, 郭昌胜, 徐建 (5438)
岩溶地下水水体中有机氯农药和多氯联苯的残留特征及健康风险评价	叶凯, 孙玉川, 贾亚男, 朱琳跃, 徐昕 (5448)
澜沧江硅藻的地理分布模式与关键驱动因素	孙胜浩, 陈娟, 王沛芳, 王超, 王洵, 苗令占, 刘胜, 袁秋生 (5458)
白洋淀优势鱼类中喹诺酮类抗生素的生物累积特征及其与环境因子相关性	申立娜, 付雨, 张璐璐, 秦珊, 剧泽佳, 姚波, 崔建升 (5470)
生物炭粒径对负载MgO生物炭吸附水体中磷的影响	王鹏飞, 甄蒙蒙, 储昭升, 崔冠楠 (5480)
Bi ₂ MoO ₆ /Bi ₂ S ₃ 异质结光催化降解四环素-铜复合物	黄文鑫, 魏虎, 蒋彩云, 王玉萍 (5488)
超滤膜负载UiO-66@Fe ₃ O ₄ @UiO-66强化PPCPs去除和膜污染控制	尹越, 吴道文, 孙梦瑶, 吕路, 张炜铭 (5500)
低温季节水平潜流和垂直潜流人工湿地尾水深度处理中试	廖雪珂, 严晗璐, 王智源, 陈诚, 何东, 吴月龙, 陈求稳 (5509)
盐度渐增对水解微生物群落结构与功能的影响	高京, 张少华, 王锐, 金鹏康 (5518)
限NH ₄ ⁺ 和限NO ₂ ⁻ 厌氧氨氧化系统的运行特性及微生物种群特征	宋家俊, 朱明奕, 郭凯成, 汪倩, 刘文如, 沈耀良 (5527)
厌氧氨氧化菌富集培养过程微生物群落结构及多样性	闫冰, 夏嵩, 桂双林, 付嘉琦, 吴九九, 熊继海, 魏源送 (5535)
二价铁活化过氧化钙提高剩余活性污泥的脱水性能	毕薇薇, 阮书瑜, 陈昊傲啸, 梁方艺, 陈智文, 谢松儒, 唐晶, 邓靖 (5544)
中国北方某城市绿地土壤重金属空间分布特征、污染评价及来源解析	赵靓, 梁云平, 陈倩, 徐谦, 荆红卫 (5552)
我国南方水稻产地镉环境质量类别划分技术	窦韦强, 安毅, 秦莉, 林大松, 董明明 (5562)
晒在土壤-农作物系统中的分布特征及富硒土壤阈值	王锐, 邓海, 贾中民, 严明书, 周皎, 何忠庠, 梁绍标, 董金秀, 苏黎明 (5571)
广东鼻咽癌高发区土壤-作物系统重金属迁移特征及健康风险评价	叶脉, 张景茹, 张路路, 李朝晖, 李兴远, 周永章 (5579)
胺鲜酯与螯合剂GLDA联合强化柳枝稷吸收积累镉效果	王正, 孙兆军, SAMEH Mohamed, 王珍, 何俊, 韩磊 (5589)
毛竹遗态Fe/C复合材料对As(V)污染土壤的钝化修复性能	赵宁宁, 何豪, 冯国杰, 朱宗强, 方雅莉, 李超, 朱义年, 张立浩 (5600)
大麦虫幼虫肠道菌群对聚苯乙烯泡沫塑料降解	杨莉, 刘颖, 高婕, 彭霞薇, 白志辉, 庄绪亮 (5609)
1株耐油甲醛降解菌的分离鉴定及降解特性	韩茜, 王蓉蓉, 史纯珍 (5617)
铜尾矿白羊草叶际和根际细菌群落特征	贾彤, 姚玉珊, 王瑞宏 (5628)
生物炭施用对再生水灌溉空心菜根际微生物群落结构及多样性的影响	崔丙健, 崔二革, 胡超, 樊向阳, 高峰 (5636)
废弃物基水热炭改良对水稻产量及氮素吸收的影响	侯朋福, 薛利红, 冯彦房, 余嫻, 杨林章 (5648)
基于GIS和PMF模型的石嘴山市土壤多环芳烃空间分布及来源解析	夏子书, 王玉玉, 钟艳霞, 白一茹, 王幼奇, 杨帆, 李鸣骥 (5656)
氮肥和秸秆还田方式对麦玉轮作土壤N ₂ O排放的影响	许宏伟, 李娜, 冯永忠, 任广鑫, 谢呈辉, 吕宏菲, 马星霞, 郝嘉琪 (5668)
《环境科学》第41卷(2020年)总目录	(5677)
《环境科学》征订启事(5344)	
《环境科学》征稿简则(5361)	
信息(5287, 5499, 5508)	

我国西北工业区城市大气多氯联苯来源及健康风险

毛潇萱¹, 李子璇¹, 宋世杰¹, 章晓冬², 高宏¹, 李春新³, 黄韬¹, 马建民²

(1. 兰州大学资源环境学院甘肃省环境污染预警与控制重点实验室, 兰州 730000; 2. 北京大学城市与环境学院, 北京 100871; 3. 甘肃省化工研究院有限责任公司, 兰州 730000)

摘要: 采用大气被动采样器观测了我国西北城市皋兰的城区和工业集中区 2018 年非取暖季和取暖季大气中 18 种多氯联苯 (PCBs) 的浓度及污染特征, 并利用主成分分析、轨迹模型以及呼吸暴露模型对其污染来源和传输迁移、人群健康风险进行分析和评价。研究区大气 PCBs 浓度为 $110.2 \sim 429.9 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$, 平均污染程度工业园区较高; PCBs 组成以四氯联苯和五氯联苯为主, 并且取暖季四氯联苯所占比重明显上升。PCBs 污染源以燃烧和工业热过程源、含 PCBs 电气设备源和 PCBs 混合源为主, 燃烧和工业热过程源污染贡献高于其他污染源, 污染贡献达到 40.8%; 研究区 PCBs 污染可能在较大程度上受到 UP-PCBs 排放的影响。轨迹分析表明研究区 PCBs 可能会通过大气输送至兰州城区; 非取暖季研究区可能主要受局地污染的影响, 而取暖季则可能会受到西北方向 PCBs 的污染输入。健康风险评价显示各年龄段人群大气 PCBs 暴露的非致癌风险水平较低, 但终生致癌风险已超过 10^{-6} 水平。燃烧和热过程源 PCBs 排放对居民 PCBs 暴露有较强影响, 且居民长期的 PCBs 呼吸暴露可能会对其健康产生不利影响。

关键词: 多氯联苯 (PCBs); 大气污染; 被动采样; 污染来源; 轨迹分析; 呼吸暴露

中图分类号: X511; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)12-5352-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.202005237

Sources and Health Risks of Atmospheric Polychlorinated Biphenyls in an Urban/Industrial Areas, Northwest China

MAO Xiao-xuan¹, LI Zi-xuan¹, SONG Shi-jie¹, ZHANG Xiao-dong², GAO Hong¹, LI Chun-xin³, HUANG Tao¹, MA Jian-min²

(1. Key Laboratory for Environmental Pollution Prediction and Control, Gansu Province, College of Earth and Environmental Sciences, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China; 2. College of Urban and Environmental Sciences, Peking University, Beijing 100871, China; 3. Gansu Chemical Industry Research Institute Co., Ltd., Lanzhou 730000, China)

Abstract: A passive air sampler was used to monitor the concentration and contamination profile of 18 polychlorinated biphenyls (PCBs) in the atmosphere over the urban and industrial area of Gaolan, a city in northwest China, during the non-heating and heating seasons of 2018, and the sources, pollutant transport, and the health risks of PCB exposure were analyzed and assessed using principle component analysis, trajectory modeling, and inhalation exposure modeling. The atmospheric concentration in the study area ranged from 110.2 to $429.9 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$, and the highest average concentration was found at the industrial estate. Tetra-PCBs and penta-PCBs were the dominant homologue groups, and the percentage of tetra-PCBs increased in the heating season. Combustion and industrial thermal processes, PCB-containing electrical equipment, and the combined source of volatilization from paint, combustion, and industrial thermal processes were considered to be the main sources, and the source of combustion and industrial thermal processes contributed the largest proportion of PCBs at 40.8%. Largely, the emission of UP-PCBs would significantly influence PCB pollution in the study area. Trajectory analysis results illustrated that PCBs emitted from sources in the study area would be transmitted to Lanzhou City atmospherically; local pollution would be the main source of PCBs contamination in the study area during the non-heating season, while the atmospheric input of PCBs transmitted from the northwest region would be another source during the heating season. Health risk analysis showed that the non-cancer risk of PCBs exposure was low in all age groups; however, lifetime cancer risks exceeded 10^{-6} . PCBs emitted from combustion and industrial thermal processes sources would have a strong impact on resident exposure to PCBs, and adverse health effects would be caused due to long-term inhalation exposure of the inhabitants to PCBs contamination in the study area.

Key words: polychlorinated biphenyls (PCBs); atmospheric pollution; passive sampling; emission sources; trajectory analysis; inhalation exposure

多氯联苯 (polychlorinated biphenyls, PCBs) 是《斯德哥尔摩公约》最初禁止生产和使用的一类持久性有机污染物 (persistent organic pollutants, POPs), 曾广泛应用于变压器和电容器等电气设备以及导热油、增塑剂和绝缘油等化工产品^[1]。20 世纪 30 年代至 1993 年, 全球共生产 PCBs 约 130 万 t, 主要为三氯联苯、四氯联苯和五氯联苯^[2]。

环境中 PCBs 的来源可分为有意产生 (intentionally produced PCBs, IP-PCBs) 和无意产生

收稿日期: 2020-05-22; 修订日期: 2020-06-08

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金项目 (41701582); 国家自然科学基金项目 (41671460, 41877507)

作者简介: 毛潇萱 (1989 ~), 男, 博士研究生, 实验师, 主要研究方向为持久性有机污染物环境归趋, E-mail: maooxx@lzu.edu.cn

裹密封后带回实验室于 -20°C 低温保存,采样期间共采集到 18 个大气样品,同时进行了野外空白样品的采集。

1.2 样品处理

样品处理中所用的二氯甲烷、正己烷均为色谱纯试剂(瑞典 OCEANPAK 化学公司);硅胶、氧化铝均为 300 ~ 400 目,分别购自青岛海洋化工有限公司、国药集团化学试剂有限公司;浓硫酸(95% ~ 98%)购自天津大茂化学试剂厂;固相萃取(solid-phase extraction, SPE)空柱购自 Biocomma 公司;标准品 28 组分 PCBs 混标(PCB8、18、28、52、44、66、101、81、77、123、118、114、153、105、138、126、187、128、167、156、157、180、169、170、189、195、206 和 209),回收率指示物 PCB30、PCB198、PCB209 和内标 PCB54 均购自美国 Accustandard 公司。

样品采用加速溶剂萃取仪(Thermo Scientific™ Dionex™ ASE™ 350)进行萃取,萃取前加入 20 ng 回收率指示物,萃取溶剂为二氯甲烷-正己烷混合液(1:1,体积比),萃取温度 100°C ,萃取压力 10.3 MPa(1500 psi),静态萃取时间 8 min,循环 2 次,吹扫时间 2 min。萃取液用旋转蒸发仪(EYELA 东京理化器械株式会社,OSB-2100 型)浓缩至 1 mL 左右后经 SPE 柱净化,淋洗液氮吹(美国 Organomation 公司 N-EVAP 氮吹仪)浓缩后转移至进样瓶中,再次浓缩至约 200 μL 后冷藏保存,仪器测试前加入 10 ng 内标物。样品净化所用的 SPE 柱为 6 mL 柱,自下而上依此填入 250 mg 中性氧化铝、500 mg 酸性硅胶和 250 mg 中性硅胶,硅胶和氧化铝使用前在马弗炉中 450°C 活化 5 h,活化后的硅胶和氧化铝添加其质量 3% 的去离子水制得中性硅胶和中性氧化铝,活化后的硅胶加入其质量 44% 的浓硫酸制得酸性硅胶。样品净化前先用 20 mL 正己烷活化 SPE 柱,加入样品后用 15 mL 混合液(二氯甲烷:正己烷,1:1,体积比)淋洗并收集淋洗液,样品净化方法和 SPE 柱的制备可参见文献[22]。

1.3 仪器分析

本研究使用 Thermo Scientific™ TRACE™ 1300-ISQ™ LT 气相色谱质谱联用仪(GC-MS)对样品中指示性多氯联苯(indicator PCBs, i-PCBs, 包括 PCB28、52、101、118、138、153 和 180)和类二噁英多氯联苯(dioxin-like PCBs, dl-PCBs, 包括 PCB77、81、105、114、118、123、126、156、157、167、169 和 189)进行分析测定。采用 EI 源以选择离子扫描模式(SIM)测定样品,载气为高纯氦气(99.999%),流速为 $1\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$,不分流进样;进样口温度为 280°C ;色谱

柱为 TG-5MS(30 m $\times$ 0.25 mm $\times$ 0.25 μm),色谱柱初温 120°C 、保留 1 min,以 $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 升温至 200°C 、保留 1 min,以 $1^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 升温至 245°C ,再以 $20^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ 升温至 290°C 、保留 5 min;传输线温度 250°C ;离子源温度 230°C ;数据结果使用 Thermo Xcalibur 工作站处理得到。

1.4 质量控制与质量保证

依据保留时间和特征离子等对样品进行定性,采用 6 点内标标准曲线对样品进行定量,各目标化合物标准曲线 R^2 均大于 0.99。样品测定中加入标准品测定,以确保仪器偏差不超过 $\pm 10\%$ 。样品处理中加入回收率指示物以确保整个样品处理过程的可控性,测样时加入内标以消除进样体积误差对测定结果的影响。样品采集中增加野外空白,实验室分析过程中每批样品增加一个实验室空白。PCB30、PCB198 和 PCB209 回收率分别为 $(61.37 \pm 12.26)\%$ 、 $(86.61 \pm 17.74)\%$ 和 $(92.73 \pm 22.92)\%$ 。仪器检出限(IDL)为信噪比 $S/N \geq 3$ 时化合物的量,即 0.007 ~ 0.420 ng;方法检出限(MDL)为 7 次空白实验所得各化合物响应值的 3 倍标准偏差,即 0.201 ~ 3.807 ng;最终数据结果经回收率校正和空白扣除。

2 结果与讨论

2.1 PCBs 污染水平和特征

$\sum_{18}$ PCBs 在全部样品中浓度为 $110.2 \sim 429.9\text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$ (中值: $263.8\text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$),园区点观测到最高浓度; $\sum_7$ i-PCBs 浓度为 $30.9 \sim 146.9\text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$ (中值: $76.8\text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$), $\sum_{12}$ dl-PCBs 浓度为 $53.8 \sim 370.8\text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$ (中值: $168.7\text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$), $\sum_{18}$ PCBs 浓度与 $\sum_{12}$ dl-PCBs 存在显著的正相关关系($r = 0.909, P < 0.001$),而与 $\sum_7$ i-PCBs 相关性较差,由于 $\sum_{12}$ dl-PCBs 既可源于电气设备和化工产品中 PCBs 的释放,又可来源于燃烧过程^[23],因此研究区 PCBs 污染可能与 UP-PCBs 的排放存在一定的相关性。与同样采用 PUF-PAS 观测 PCBs 污染的研究相比可以看出(表 1),各研究 PCBs 浓度处于相似的污染水平,但本研究污染水平明显低于土耳其和中国广东等地在重工业和电子垃圾拆解工业聚集区的 PCBs 观测结果^[11~13,24],特别是在土耳其的重工业区^[11,12],并且各研究中 PCBs 浓度均呈现出工业区高于其他地区的特征。

表 1 采用 PUF-PAS 监测技术的 PCBs 污染研究

Table 1 Contamination of PCBs derived by PUF-PAS

国家/城市	采样点类型(采样点数目)	观测时间(年-月)	PCBs	浓度水平/ $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$	文献
中国	城市(17)、农村(3)	2008-03 ~ 2008-05	$\sum_{202}$ PCBs	300 ~ 2 500 (Max; 7700) 台湾地区; 22	[6]
中国/天津	城市生活区和工业区(10)	2008-06 ~ 2009-01	$\sum_{12}$ PCBs	30.8 ~ 301	[10]
中国/广东	城市(21)	2005-08 ~ 2005-10	$\sum_{32}$ PCBs	170 ~ 2000	[24]
中国/皋兰	农业地区、工业区(9)	2018-06 ~ 2019-01	$\sum_{18}$ PCBs	110.2 ~ 429.9	本研究
日本	城市(14)、城郊(4)、农村(37)	2008-03 ~ 2008-05	$\sum_{202}$ PCBs	40 ~ 760 (Max; 7300)	[6]
韩国	城市(16)、城郊(2)、农村(12)	2008-03 ~ 2008-05	$\sum_{202}$ PCBs	36 ~ 600	[6]
土耳其/科卡埃利	工业区(23)	2015-02 ~ 2016-02	$\sum_{41}$ PCBs	177 ~ 41 781	[11]
土耳其/阿利亚加	工业地区(17)、非工业区(23)	2009-07 ~ 2010-05	$\sum_{35}$ PCBs	349 ~ 94 363	[12]
土耳其/屈塔希亚	城市工业区(22)、农村(19)	2014-01 ~ 2014-08	$\sum_{41}$ PCBs	19.6 ~ 675.1	[13]
阿尔及利亚/阿尔及尔	城市工业区(1)、农村(1)、工业区(1)	2008-07 ~ 2009-11	$\sum_{12}$ PCBs	14.3 ~ 66	[14]
越南	城市(7)、城郊(2)、农村(6)	2012-06 ~ 2013-02	$\sum_{32}$ PCBs	136 ~ 1 518	[25]
南极洲/乔治岛	背景(5)	2009-12 ~ 2010-02	$\sum_{20}$ PCBs	5.3 ~ 38.0	[26]

非取暖季 $\sum_{18}$ PCBs 在对照点、园区点和城区点的浓度分别为 142.8、261.3 和 (217.1 ± 84.5) $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$, 取暖季 $\sum_{18}$ PCBs 浓度则为 206.3、429.9 和 (298.6 ± 73.6) $\text{pg}\cdot\text{m}^{-3}$. 从全年来看, 各区域 $\sum_{18}$ PCBs 平均浓度呈现取暖季高于非取暖季的特点, 园区点 PCBs 污染较其他区域呈现较高水平; 相较非取暖季, 取暖季各区域平均污染呈现 $\sum_7$ i-PCBs 浓度下降, 而 $\sum_{12}$ dl-PCBs 浓度上升的状况. 考虑到秋冬季节取暖, 这可能与 UP-PCBs 的燃烧排放有关. 然而城区的各采样点间 $\sum_{18}$ PCBs、 $\sum_7$ i-PCBs 和 $\sum_{12}$ dl-PCBs 浓度变化却无一致的季节特征(图 2), 这可能与各采样点附

近不同 PCBs 污染源相关. PCBs 组成以四氯联苯和五氯联苯为主, 占 $\sum_{18}$ PCBs 的质量分数分别为 16.9%~73.9% (中值: 38.6%) 和 19.4%~67.4% (中值: 42.9%) (图 3). 煤和木柴的燃烧、工业热过程等会带来 PCBs 的排放, 并且所排放的 PCBs 以三氯联苯、四氯联苯和五氯联苯为主^[27,28]. 同时, 四氯联苯和五氯联苯总计在 PCBs 产品 Aroclor1248 和 Aroclor1254 中所占比例分别为 72.2% 和 73.9%^[2], 因此较高的四氯联苯和五氯联苯可能与含有此类 PCBs 的产品使用和回收或热过程等有关. 就不同采样季节, 四氯联苯浓度所占比例在取暖季的城区点和园区点均呈现上升的趋势, 由于家庭煤和木柴燃烧所排放的 PCBs

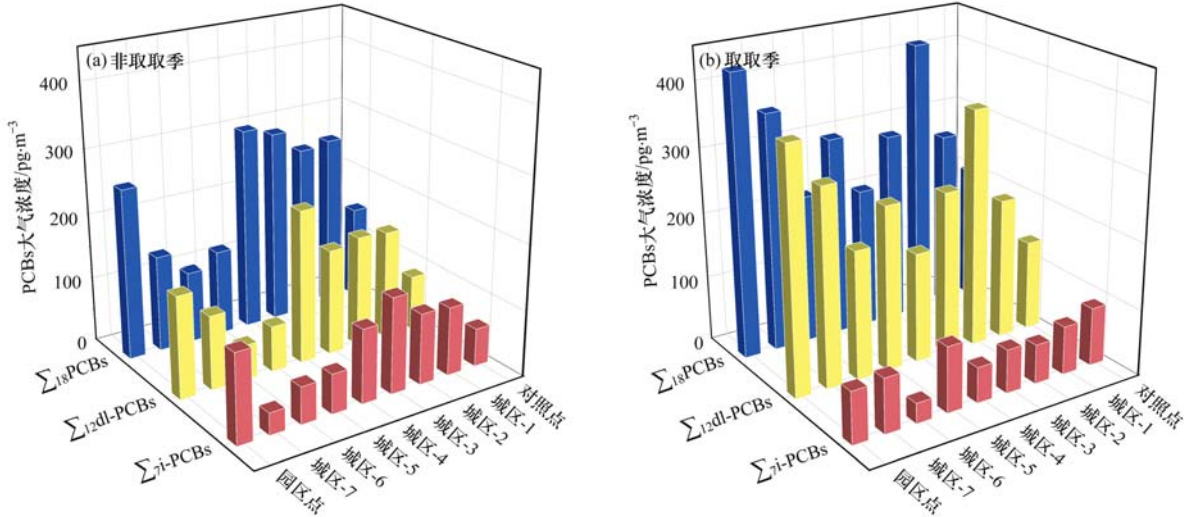


图 2 非取暖季、取暖季 $\sum_{18}$ PCBs、 $\sum_7$ i-PCBs 和 $\sum_{12}$ dl-PCBs 大气浓度

Fig. 2 Concentrations of $\sum_{18}$ PCBs, $\sum_7$ i-PCBs, and $\sum_{12}$ dl-PCBs during the non-heating and heating seasons

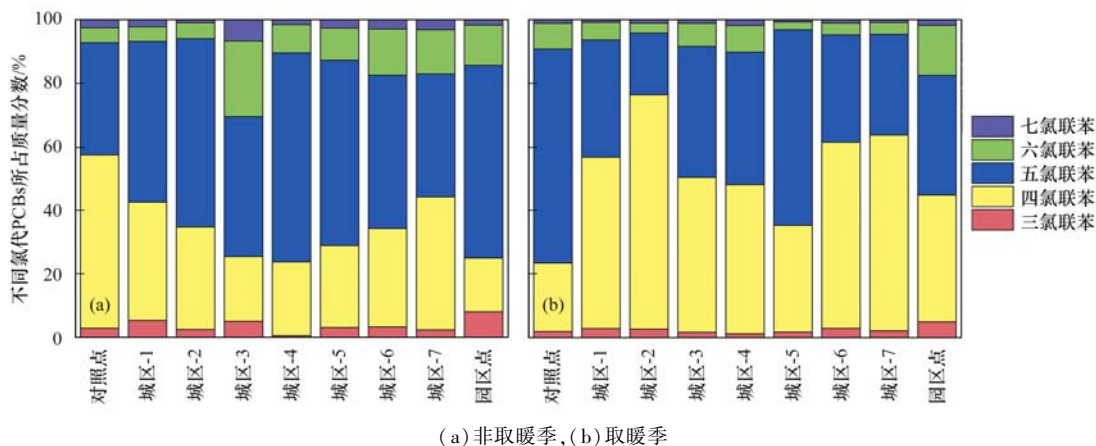


图3 不同氯代 PCBs 在 $\sum_{18}$ PCBs 中所占比例

Fig. 3 Percentage of PCBs with different chlorination levels among $\sum_{18}$ PCBs

以四氯联苯为主^[28],而研究区以农业人口居多,因此考虑秋冬季家庭取暖 PCBs 排放可能是四氯联苯浓度上升的原因之一。

2.2 PCBs 污染来源

按与研究区 PCBs 污染的相关性,选择 PCB28、52、77、81、105、114、118、123、126、153、169 和 189 作为变量进行主成分分析 (principal component analysis, PCA), 获得 5 个主成分, 解释总方差累积 87.1% (KMO 检验 = 0.483; Bartlett 检验近似卡方 = 122.2, Sig. < 0.001). 将 PCA 分析所得的各成分因子得分 (factor score) 作为自变量, 研究区 PCBs 污染浓度作为因变量, 用逐步回归方法 (stepwise regression) 对数据进行多元线性回归 (multiple linear regression, MLR) 分析 ($R^2 = 0.866$; Sig. < 0.001), 最终分析获得 3 个主成分 (图 4)。

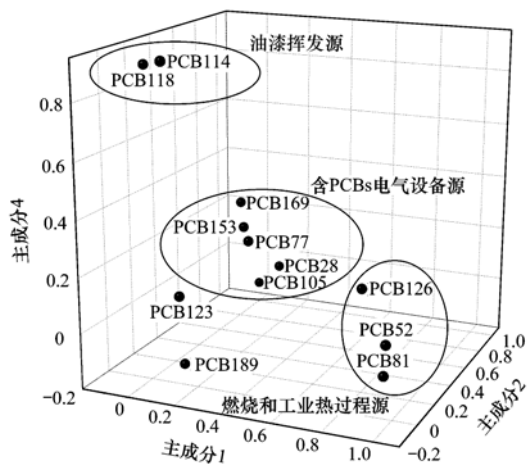


图4 主成分分析因子载荷

Fig. 4 Factor loading obtained from PCA

主成分 1 在 PCB52、81 和 126 上有较大的载荷, 解释总方差的 21.9%。PCB77、81、126 和 169 在燃煤、有色金属冶炼及再生和工业与市政废弃物

焚烧等高温过程的副产物中含量相对较高^[29~31], 并且 PCB126 在铝和铜二次冶金行业 PCBs 排放中更为突出^[32]; 家庭煤和木柴的燃烧也会带来 PCBs 的排放, 并以四氯联苯为主^[28]。由于 PCB52 和 81 均为四氯联苯, 而 PCB77 和 126 是燃烧过程 PCBs 排放的指示物^[33], 并且其在研究区大气环境中具有相对较高的浓度, 因此考虑主成分 1 是以家庭煤和木柴燃烧排放为主的燃烧和工业热过程源。

主成分 2 因子载荷主要分布于 PCB28 和 105, 在 PCB153 和 169 上也有较高载荷, 解释总方差的 19.4%。Zhao 等^[34]在对 PCBs 进行源解析时发现代表电子废弃物的因子在 PCB28 上具有较高的载荷, 并且 PCBs 组成特征与其在电子废弃物排放源处所得到的观测结果类似。此外, 在 PCBs 产品 (美国 Aroclor 系列) 中 PCB105 和 118 含量普遍较高^[29], 我国生产的 1 号 PCBs 主要以三氯联苯为主, 广泛用于电容器和电力变压器^[35]。因此主成分 2 所代表的污染源可能与含 PCBs 的电气设备的使用和回收等活动有关, 因此归为含 PCBs 电气设备源。

主成分 4 中 PCB114 和 118 呈现出较高的载荷, 解释总方差的 16.6%。我国曾生产的 2 号 PCBs 产品组成与美国 Aroclor1254 类似, 以 PCB110、101、118、95 和 138 等单体含量较高^[36], 主要用作油漆添加剂^[37], 而 PCB114、167、169 和 156 等在 Aroclor 产品中含量较低或未含有此类单体^[36], 但家庭煤、木柴燃烧和工业热过程却会带来三氯联苯、四氯联苯和五氯联苯的排放^[27,28], 因此考虑该成分可能为包含油漆挥发、燃烧和工业热过程的 PCBs 混合源。

基于 MLR 分析, 得到的回归模型如式 (1), 模型中各系数均为标准化后的结果:

$$Z = 0.657F_1 + 0.511F_2 + 0.443F_4 \quad (1)$$

$$(R^2 = 0.866, \text{Sig.} < 0.001)$$

式中, Z 为标准化后的大气 PCBs 浓度; F_1 表示主成分 1, 即燃烧和工业热过程源; F_2 为主成分 2, 即含 PCBs 的电气设备源; F_4 为主成分 4, 即 PCBs 混合源。

各类污染源对于研究区 PCBs 污染的贡献计算如下:

$$\text{污染源贡献率}(\%) = B_i / \sum B_i \quad (2)$$

式中, B_i 为回归模型中各因子标准化后的系数。

结果显示, 燃烧和工业热过程对于研究区 PCBs 污染贡献最大, 达到了 40.8%。含 PCBs 的电气设备源贡献为 31.7%, PCBs 混合源贡献为 27.5%。由于研究区农业人口居多, 加之工业区与城镇居民生活区域之间距离较近, 因此由于燃烧和工业热过程所带来的 UP-PCBs 排放应得到足够的重视。

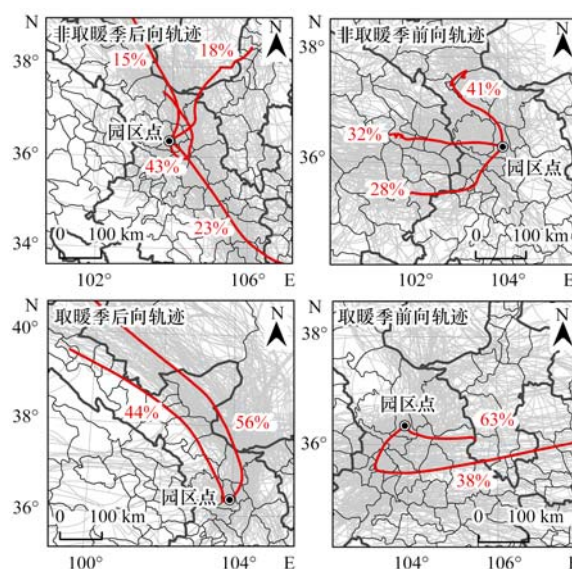
2.3 PCBs 污染潜在影响

本研究运用轨迹模型 (Hybrid single-particle Lagrangian integrated trajectory, HYSPLIT) 从大气传输方面进一步探究工业园区污染物排放对皋兰城区的潜在影响以及可能存在的长距离污染传输。模型采用美国国家环境预报中心全球数据分析系统所提供的 GDAS 气象数据 (数据分辨率为 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$)。本研究对研究区非取暖季和取暖季距离地面 10 m 高度 72 h 前向和后向轨迹进行了模拟, 并对采样期间的轨迹进行聚类分析, 结果如图 5 所示。

非取暖季前向轨迹显示研究区大气以向西北方向移动为主, 对于位于园区东南方位的皋兰城区而言, 园区所排放的污染物对城区的影响较为有限, 而位于皋兰西侧的地区均存在受污染传输影响的可能, 特别是对于西部地区重要的中心城市兰州, 聚类结果显示 28% 的轨迹会通过兰州市。通过非取暖季后向轨迹可以看出, 由于甘肃中南部夏季多大风天气^[38], 且黄土高原沟壑纵横、地形较为复杂, 使得观测期间所得大气轨迹纵横交错, 大气运动轨迹较为复杂, 聚类结果显示各方向均有大气通过研究区, 但占比最大的聚类结果 (43%) 距离较短, 主要表现为局地大气输入, 因此非取暖季局地污染对于研究区贡献可能较大。

取暖季前向轨迹聚类结果显示研究区以西、西北风为主, 距离较短的聚类结果占比为 63%, 说明研究区所造成的污染主要以局地污染为主, 特别是对位于该轨迹方向的皋兰城区, 可能会在很大程度上受到园区污染排放的影响, 加之冬季取暖所带来的 PCBs 排放, 城区居民将面临更高剂量的 PCBs 暴露。此外, 另一条聚类轨迹通过兰州城区, 且占比达

38%。由此可以看出两个采样季研究区对于兰州市都存在有一定程度的大气输送, 因此其污染排放对于兰州可能会产生一定的影响。通过对取暖季后向轨迹的分析发现, 受蒙古-西伯利亚高压的控制, 西北风成为研究区取暖季的盛行风向, 表明污染可以通过远距离传输输送至研究区。



浅色灰线为每日 72 h 轨迹, 红色线为聚类分析结果

图 5 非取暖季和取暖季的 72 h 大气前向和后向轨迹及聚类分析结果

Fig. 5 The 72 h backward and forward trajectories and the results of cluster analysis during the non-heating and heating seasons

2.4 PCBs 呼吸暴露

PCBs 可以通过经口摄入、皮肤接触和呼吸吸入等 3 种主要的途径进入人体, 摄食通常被认为是 PCBs 人体暴露的主要途径, 而对于受 PCBs 污染较严重的区域而言, 呼吸暴露则是人群暴露的一个重要途径^[39]。美国环境保护署 (U. S. EPA) 以日均暴露剂量 (average daily dose, ADD) 作为非致癌健康效应的评价依据, 它表示暴露发生期间的平均暴露水平或暴露剂量, 计算公式如式 (3)^[40]:

$$ADD = \frac{C \times IR \times ED}{BW \times AT} \quad (3)$$

式中, C 为与人体接触的介质 (空气、土壤和水等) 中污染物的含量; IR 为摄入或吸入速率; ED 为暴露时间 (各类事件暴露时间总和); BW 为暴露者体重; AT 为用来平均暴露剂量的天数。当 IR 为呼吸速率时, ADD 则为呼吸暴露剂量。由此所带来的非致癌风险一般用危害商 (hazard quotients, HQ) 来衡量, 计算公式如式 (4):

$$HQ = \frac{ADD}{RfD} \quad (4)$$

式中, RfD 为 U. S. EPA 所提供的参考剂量

(reference dose), PCBs 的 RfD 为 $2 \times 10^{-5} \text{ mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ ^[41]. HQ 基准值为 1, 小于基准值则表示污染危害较小; 反之则具有一定的非致癌风险.

当用终生寿命(LT)替换公式(3)中的参数 AT 后, 得到终生日均暴露剂量(lifetime ADD, LADD), 可作为癌症风险筛查评估的依据^[40]:

$$\text{LADD} = \frac{C \times \text{IR} \times \text{ED}}{\text{BW} \times \text{LT}} \quad (5)$$

式中, LT 为终生寿命. 考虑到人体不同成长阶段呼吸速率、体重以及暴露时间的不同, 按式(6)对 LADD 进行计算:

$$\text{LADD} = \left(C \times \sum_i \frac{\text{IR}_i \times \text{ED}_i}{\text{BW}_i} \right) / \text{LT} \quad (6)$$

式中, IR_i 、 BW_i 和 ED_i 为不同年龄阶段的呼吸速率、体重和暴露时间.

dl-PCBs 相对于 2,3,7,8-四氯二苯并对二噁英(2,3,7,8-TCDD)的毒性当量因子(toxic equivalency factor, TEF)如表 2 所示.

表 2 世界卫生组织多氯联苯 TEF 值^[42]

Table 2 WHO TEF values for PCBs			
化合物名称	TEF 值	化合物名称	TEF 值
PCB77	0.000 1	PCB118	0.000 03
PCB81	0.000 3	PCB123	0.000 03
PCB126	0.1	PCB156	0.000 03
PCB169	0.03	PCB157	0.000 03
PCB105	0.000 03	PCB167	0.000 03
PCB114	0.000 03	PCB189	0.000 03

表 3 PCBs 呼吸暴露参数^[44,45]

Table 3 Inhalation exposure factors for PCBs						
项目	儿童(0~6)		青少年(7~17)		成年(≥18)	
	男性	女性	男性	女性	男性	女性
呼吸速率/ $\text{m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$	5.71	5.58	11.78	11.36	19.02	14.17
体重/kg	11.24	10.65	39.45	37.76	62.34	54.37
室外活动时间/ $\text{h} \cdot \text{d}^{-1}$	1.22		1.67		4.68	

剂量产生了更大的影响. 就不同性别来看, 儿童和青少年阶段女性暴露剂量均略高于男性, 而成年男性暴露剂量却明显高于女性. 由于儿童和青少年阶段男女呼吸速率大致相似^[45], 使得体重上的差别对

根据式(7)可得到 dl-PCBs 的毒性当量浓度(toxic equivalent concentration, TEQ concentration):

$$\text{TEQ concentration} = \sum_i C_i \times \text{TEF}_i \quad (7)$$

式中, C_i 是 dl-PCBs 单体浓度; TEF_i 是 dl-PCBs 单体对应 TEF 值.

因污染物暴露导致的终生癌症风险(lifetime cancer risk, LCR)可由式(8)计算得到:

$$\text{LCR} = \text{LADD} \times \text{SF} \quad (8)$$

式中, SF 为斜率因子(slope factor, SF), U. S. EPA 给出了二噁英和 PCBs 的 SF 值^[11], 分别为 $150\,000 \text{ kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$ 和 $2 \text{ kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$. 当癌症风险小于 10^{-6} 时, 认为风险可以接受; 当癌症风险介于 $10^{-4} \sim 10^{-6}$ 时, 认为该风险需引起注意; 而当风险值高于 10^{-4} 时, 认为该风险已超出可接受水平^[43]. 风险计算中所使用的参数如表 3 所示.

式(3)中 C 为采样期间皋兰城区 $\sum_{18}$ PCBs 平均浓度($257.8 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$), 不同年龄段人群 AT 值均为 365 d, ED 值为参加室外活动的天数(365 d)和室外活动时间的乘积, 分别为 438、610 和 1 708 h, 由此可得各类人群在采样期间的日均呼吸暴露剂量如表 4 所示.

成年暴露剂量明显高于儿童和青少年, 主要因为暴露时间和呼吸速率较高所致; 儿童暴露剂量高于青少年, 相比呼吸速率而言, 体重增长对于暴露

其暴露剂量产生了更突出的影响. 危害商值各年龄段均远低于 1, 即研究区各年龄段人群非致癌风险较低, 但成年非致癌风险相较更为突出, 比其他年龄段人群高约 2 倍.

表 4 PCBs 日均呼吸暴露剂量和危害商

Table 4 ADD and HQ values of PCBs						
项目	儿童(0~6)		青少年(7~17)		成年(≥18)	
	男性	女性	男性	女性	男性	女性
日均呼吸暴露剂量 $\times 10^{-9} / \text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$	6.55	6.75	5.36	5.40	15.3	13.1
危害商 $\times 10^{-4}$	3.28	3.38	2.68	2.70	7.67	6.55

终生日均暴露剂量(LADD)计算中 LT 值男性为 69.6 a(25 404 d)、女性为 73.3 a(26 754 d)^[45]. 如表 5 所示, $\sum_{18}$ PCBs 终生日均暴露剂量 LADD

($\sum_{18}$ PCBs) 男性略高于女性. 依据 TEQ 所得的 LADD(TEQ)以及非 dl-PCBs 的 6 种 PCBs 的 LADD($\sum_6$ PCBs)均呈现出相同的暴露剂量特征. 在

LADD(TEQ)中由于 PCB126 其 TEF 值较大且在研究区环境中浓度相对较高,使得 PCB126 对 TEQ 和 LADD(TEQ)的贡献达 $(85.7 \pm 8.1)\%$,而因为 PCB126 是燃烧源 PCBs 排放的标志物^[33],说明研究区燃烧和工业热过程源对本地居民 PCBs 暴露可能

有较强的影响. 最终本地居民 $\sum_{18}$ PCBs 的终身癌症风险 LCR($\sum_{18}$ PCBs)如表 5 所示,LCR 值已超过 10^{-6} 水平,未超过 10^{-4} ,表明因燃烧和工业热过程所主导的 PCBs 暴露风险对于长期居住在研究区的人群已构成一定的风险.

表 5 PCBs 终生日均暴露剂量和终生癌症风险

Table 5 LADD and LCR values of PCBs

项目	类型	男性	女性
终生日均暴露剂量 /mg·(kg·d) ⁻¹	LADD($\sum_{18}$ PCBs)	1.30×10^{-8}	1.14×10^{-8}
	LADD(TEQ)	7.39×10^{-11}	6.52×10^{-11}
	LADD($\sum_6$ PCBs)	3.23×10^{-9}	2.85×10^{-9}
终生癌症风险	LCR($\sum_{18}$ PCBs)	1.11×10^{-5}	9.79×10^{-6}

3 结论

(1) 研究区大气 $\sum_{18}$ PCBs 浓度为 $110.2 \sim 429.9 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$,与国内 PCBs 污染水平相当,但明显低于重工业和电子垃圾拆解聚集区域;研究区 $\sum_{18}$ PCBs 平均浓度园区点较高,且各区域取暖季高于非取暖季;PCBs 组成以四氯联苯和五氯联苯为主,研究区可能受 UP-PCBs 排放的影响.

(2) 研究区 PCBs 主要源于燃烧和工业热过程源、含 PCBs 的电气设备源以及 PCBs 混合源,各污染源贡献率分别为 40.8%、31.7% 和 27.5%,UP-PCBs 的排放对研究区 PCBs 污染可能起到了主导作用.

(3) 研究区非取暖季 PCBs 污染会随气流迁移至兰州市区,而研究区 PCBs 污染则以局地污染为主;取暖季受到西风、西北风的影响皋兰城区会受到工业区污染排放的影响,并且研究区 PCBs 可能仍会通过大气传输至兰州城区,而且在盛行风作用下研究区可能会受到来自西北方向 PCBs 的污染输入.

(4) 研究区城区各年龄段居民 PCBs 日均呼吸暴露剂量(ADD)为 $5.36 \times 10^{-9} \sim 15.3 \times 10^{-9} \text{ mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$,成年人 ADD 相对最高,儿童和青少年中女性 ADD 高于男性,成年男性 ADD 高于女性;各年龄段人群非致癌风险均呈较低水平. 男性终生癌症风险为 1.11×10^{-5} ,女性为 9.79×10^{-6} ,研究区燃烧和热过程源 PCBs 排放对居民健康影响较大,且居民长期的 PCBs 呼吸暴露会对身体健康带来一定风险.

参考文献:

[1] 中华人民共和国履行《关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约》国家实施计划[EB/OL]. <http://chm.pops.int/Portals/0/download.aspx?d=UNEP-POPS-NIP-China-1.Chinese.pdf>, 2007-04-18.

[2] Breivik K, Sweetman A, Pacyna J M, *et al.* Towards a global historical emission inventory for selected PCB congeners- a mass balance approach: 1. Global production and consumption[J]. Science of the Total Environment, 2002, **290**(1-3): 181-198.

[3] Cui S, Qi H, Liu L Y, *et al.* Emission of unintentionally produced polychlorinated biphenyls (UP-PCBs) in China: Has this become the major source of PCBs in Chinese air? [J]. Atmospheric Environment, 2013, **67**: 73-79.

[4] Breivik K, Sweetman A, Pacyna J M, *et al.* Towards a global historical emission inventory for selected PCB congeners- A mass balance approach: 2. Emissions [J]. Science of the Total Environment, 2002, **290**(1-3): 199-224.

[5] Breivik K, Sweetman A, Pacyna J M, *et al.* Towards a global historical emission inventory for selected PCB congeners- A mass balance approach: 3. An update [J]. Science of the Total Environment, 2007, **377**(2-3): 296-307.

[6] Hogarh J N, Seike N, Kobara Y, *et al.* Passive air monitoring of PCBs and PCNs across East Asia: a comprehensive congener evaluation for source characterization[J]. Chemosphere, 2012, **86**(7): 718-726.

[7] Cui S, Fu Q, Ma W L, *et al.* A preliminary compilation and evaluation of a comprehensive emission inventory for polychlorinated biphenyls in China [J]. Science of the Total Environment, 2015, **533**: 247-255.

[8] Bartlett P W, Isaksson E, Hermanson M H. ‘New’ unintentionally produced PCBs in the Arctic [J]. Emerging Contaminants, 2019, **5**: 9-14.

[9] Zhao S Z, Breivik K, Liu G R, *et al.* Long-term temporal trends of polychlorinated biphenyls and their controlling sources in China [J]. Environmental Science & Technology, 2017, **51**(5): 2838-2845.

[10] Ding L, Li Y M, Wang P, *et al.* Spatial concentration, congener profiles and inhalation risk assessment of PCDD/Fs and PCBs in the atmosphere of Tianjin, China[J]. Chinese Science Bulletin, 2013, **58**: 971-978.

[11] Cetin B, Yurdakul S, Gungormus E, *et al.* Source apportionment and carcinogenic risk assessment of passive air sampler-derived PAHs and PCBs in a heavily industrialized region[J]. Science of the Total Environment, 2018, **633**: 30-41.

[12] Aydin Y M, Kara M, Dumanoglu Y, *et al.* Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) in ambient air of an industrial region in Turkey[J]. Atmospheric Environment, 2014, **97**: 271-285.

[13] Dumanoglu Y, Gaga E O, Gungormus E, *et al.* Spatial and seasonal variations, sources, air-soil exchange, and carcinogenic

- risk assessment for PAHs and PCBs in air and soil of Kutahya, Turkey, the province of thermal power plants[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **580**: 920-935.
- [14] Moussaoui Y, Tuduri L, Kerchich Y, *et al.* Atmospheric concentrations of PCDD/Fs, dl-PCBs and some pesticides in northern Algeria using passive air sampling[J]. *Chemosphere*, 2012, **88**(3): 270-277.
- [15] 皋兰县人民政府. 皋兰县情简介[EB/OL]. http://www.gaolan.gov.cn/art/2019/6/14/art_1913_660422.html, 2019-06-14.
- [16] 秦兰兰, 王有乐. 规划环境影响评价指标体系初探及实证研究[J]. *环境工程*, 2015, **33**(2): 143-146.
Qin L L, Wang Y L. Case study on the indicator system of planned environmental impact assessment [J]. *Environmental Engineering*, 2015, **33**(2): 143-146.
- [17] 仇焕广, 严健标, 李登旺, 等. 我国农村生活能源消费现状、发展趋势及决定因素分析——基于四省两期调研的实证研究[J]. *中国软科学*, 2015, (11): 28-38.
Qiu H G, Yan J B, Li D W, *et al.* Residential energy consumption in rural China: current situation and determinants for future trend- An empirical study based on filed survey data of 4 provinces[J]. *China Soft Science*, 2015, (11): 28-38.
- [18] Pozo K, Harner T, Lee S C, *et al.* Seasonally resolved concentrations of persistent organic pollutants in the global atmosphere from the first year of the gaps study [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(3): 796-803.
- [19] Wilford B H, Harner T, Zhu J P, *et al.* Passive sampling survey of polybrominated diphenyl ether flame retardants in indoor and outdoor air in Ottawa, Canada: implications for sources and exposure[J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(20): 5312-5318.
- [20] Harner T, Su K, Genualdi S, *et al.* Calibration and application of PUF disk passive air samplers for tracking polycyclic aromatic compounds (PACs)[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **75**: 123-128.
- [21] Markovic M Z, Prokop S, Staebler R M, *et al.* Evaluation of the particle infiltration efficiency of three passive samplers and the PS-1 active air sampler[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **112**: 289-293.
- [22] He W, Chen Y R, Yang C, *et al.* Optimized multiresidue analysis of organic contaminants of priority concern in a daily consumed fish (Grass Carp)[J]. *Journal of Analytical Methods in Chemistry*, 2017, **2017**: 9294024.
- [23] Trinh M M, Kuo C H, Chang M B. Characterization of PCDD/Fs and dl-PCBs emission from combustion of PCB-containing oil in a fluidized-bed incinerator[J]. *Chemosphere*, 2019, **225**: 35-42.
- [24] 王俊, 张干, 李向东, 等. 利用 PUF 被动采样技术监测珠江三角洲地区大气中多氯联苯分布[J]. *环境科学*, 2007, **28**(3): 478-481.
Wang J, Zhang G, Li X D, *et al.* Monitoring of polychlorinated biphenyls in the atmosphere of the Pearl River Delta using PUF-passive air sampler[J]. *Environmental Science*, 2007, **28**(3): 478-481.
- [25] Wang W T, Wang Y H, Zhang R J, *et al.* Seasonal characteristics and current sources of OCPs and PCBs and enantiomeric signatures of chiral OCPs in the atmosphere of Vietnam[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **542**: 777-786.
- [26] Li Y M, Geng D W, Liu F B, *et al.* Study of PCBs and PBDEs in King George Island, Antarctica, using PUF passive air sampling[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **51**: 140-145.
- [27] Kim K S, Hirai Y, Kato M, *et al.* Detailed PCB congener patterns in incinerator flue gas and commercial PCB formulations (Kanechlor)[J]. *Chemosphere*, 2004, **55**(4): 539-553.
- [28] Lee R G M, Coleman P, Jones J L, *et al.* Emission factors and importance of PCDD/Fs, PCBs, PCNs, PAHs and PM₁₀ from the domestic burning of coal and wood in the U. K. [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, **39**(6): 1436-1447.
- [29] 孙晓菲. 京杭大运河苏北段表层沉积物中 PCBs 分布特征及释放规律研究[D]. 徐州: 中国矿业大学, 2013.
- [30] Nieuwoudt C, Quinn L P, Pieters R, *et al.* Dioxin-like chemicals in soil and sediment from residential and industrial areas in central South Africa[J]. *Chemosphere*, 2009, **76**(6): 774-783.
- [31] Chi K H, Chang M B, Kao S J. Historical trends of PCDD/Fs and dioxin-like PCBs in sediments buried in a reservoir in Northern Taiwan[J]. *Chemosphere*, 2007, **68**(9): 1733-1740.
- [32] Ba T, Zheng M H, Zhang B, *et al.* Estimation and characterization of PCDD/Fs and dioxin-like PCBs from secondary copper and aluminum metallurgies in China [J]. *Chemosphere*, 2009, **75**(9): 1173-1178.
- [33] Habibullah-Al-Mamun M, Kawser Ahmed M, Saiful Islam M, *et al.* Occurrence, distribution and possible sources of polychlorinated biphenyls (PCBs) in the surface water from the Bay of Bengal coast of Bangladesh [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, **167**: 450-458.
- [34] Zhao S Z, Jones K C, Li J, *et al.* Evidence for major contributions of unintentionally produced PCBs in the air of China: implications for the national source inventory [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, **54**(4): 2163-2171.
- [35] Xing Y, Lu Y L, Dawson R W, *et al.* A spatial temporal assessment of pollution from PCBs in China[J]. *Chemosphere*, 2005, **60**(6): 731-739.
- [36] 张志, 齐虹, 刘丽艳, 等. 中国生产的多氯联苯 (PCBs) 组分特征[J]. *黑龙江大学自然科学学报*, 2009, **26**(6): 809-815.
Zhang Z, Qi H, Liu L Y, *et al.* Congener and homologue profiles of polychlorinated biphenyls (PCBs) produced in China [J]. *Journal of Natural Science of Heilongjiang University*, 2009, **26**(6): 809-815.
- [37] Zhang H J, Zhao X F, Ni Y W, *et al.* PCDD/Fs and PCBs in sediments of the Liaohe River, China: levels, distribution, and possible sources[J]. *Chemosphere*, 2010, **79**(7): 754-762.
- [38] 李耀辉, 张存杰, 高学杰. 西北地区大风日数的时空分布特征[J]. *中国沙漠*, 2004, **24**(6): 715-723.
Li Y H, Zhang C J, Gao X J. Temporal and spatial characteristics of gale weather over Northwest China[J]. *Journal of Desert Research*, 2004, **24**(6): 715-723.
- [39] Carpenter D O. Polychlorinated biphenyls (PCBs): routes of exposure and effects on human health [J]. *Reviews on Environmental Health*, 2006, **21**(1): 1-24.
- [40] U. S. EPA. Guidelines for exposure assessment[R]. EPA/600/Z-92/001. Washington, DC: Risk Assessment Forum, 1992.
- [41] Boldrocchi G, Monticelli D, Omar Y M, *et al.* Trace elements and POPs in two commercial shark species from Djibouti: implications for human exposure [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **669**: 637-648.
- [42] Van den Berg M, Birnbaum L S, Denison M, *et al.* The 2005 World Health Organization reevaluation of human and mammalian toxic equivalency factors for dioxins and dioxin-like compounds

- [J]. *Toxicological Sciences*, 2006, **93**(2): 223-241.
- [43] U. S. EPA. Guidelines for carcinogen risk assessment [R]. EPA/630/P-03/001F. Washington, DC: Risk Assessment Forum, 2005.
- [44] U. S. EPA. Exposure factors handbook: 2011 edition [R]. EPA/600/R-09/052F. Washington, DC: National Center for Environmental Assessment, 2011.
- [45] 王宗爽, 段小丽, 刘平, 等. 环境健康风险评价中我国居民暴露参数探讨[J]. *环境科学研究*, 2009, **22**(10): 1164-1170.
- Wang Z S, Duan X L, Liu P, *et al.* Human exposure factors of Chinese people in environmental health risk assessment [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2009, **22**(10): 1164-1170.

《环境科学》征稿简则

1. 来稿报道成果要有创新性,论点明确,文字精炼,数据可靠.全文不超过8 000字(含图、表、中英文摘要及参考文献).国家自然科学基金项目、国家科技攻关项目、国际合作项目或其它项目请在来稿中注明(在首页以脚注表示).作者投稿时请先登陆我刊网站(www.hjxx.ac.cn)进行注册,注册完毕后以作者身份登录,按照页面给出的提示信息投稿即可.

2. 稿件请按 GB 7713-87《科学技术报告、学位论文和学术论文的编写格式》中学术论文的规范撰写.论文各部分的排列顺序为:题目;作者姓名;作者工作单位、地址、邮政编码;中文摘要;关键词;中图分类号;英文题目;作者姓名及单位的英译名;英文摘要;关键词;正文;致谢;参考文献.

3. 论文题目应简练并准确反映论文内容,一般不超过 20 字,少用副标题.

4. 中文摘要不少于 300 字,以第三人称写.摘要内容包括研究工作的目的、方法、结果(包括主要数据)和结论,重点是结果和结论.英文摘要与中文对应,注意人称、时态和语言习惯,以便准确表达内容.

5. 前言包括国内外前人相关工作(引文即可)和本工作的目的、特点和意义等.科普知识不必赘述.

6. 文中图表应力求精简,同一内容不得用图表重复表达,要有中英文对照题目.图应大小一致,曲线粗于图框,图中所有字母、文字字号大小要统一.表用三线表.图表中术语、符号、单位等应与正文一致.

7. 计量单位使用《中华人民共和国法定计量单位》(SI).论文中物理计量单位用字母符号表示,如 mg(毫克),m(米),h(小时)等.科技名词术语用国内通用写法,作者译的新名词术语,文中第一次出现时需注明原文.

8. 文中各级标题采用 1, 1.1, 1.1.1 的形式,左起顶格书写,3 级以下标题可用(1), (2)……表示,后缩 2 格书写.

9. 文中外文字母、符号应标明其大小写,正斜体.生物的拉丁学名为斜体.缩略语首次出现时应给出中文全称,括号内给出英文全称和缩略语.

10. 未公开发表资料不列入参考文献,可在出现页以脚注表示.文献按文中出现的先后次序编排.常见文献书写格式为:
期刊:作者(外文也要姓列名前).论文名[J].期刊名,年,卷(期):起页-止页.

图书:作者.书名[M].出版地:出版社,年.起页-止页.

会议文集:作者.论文名[A].见(In):编者.文集名[C].出版地:出版社(单位),年.起页-止页.

学位论文:作者.论文名[D].保存地:保存单位,年份.

报告:作者.论文名[R].出版地:出版单位,出版年.

专利:专利所有者.专利题名[P].专利国别:专利号,出版日期.

11. 来稿文责自负,切勿一稿多投.编辑对来稿可作文字上和编辑技术上的修改和删节.在 3 个月内未收到本刊选用通知,可来电询问.

12. 投稿请附作者单位详细地址,邮编,电话号码,电子邮箱等.编辑部邮政地址:北京市 2871 信箱;邮编:100085;电话:010-62941102,010-62849343;传真:010-62849343;E-mail:hjxx@rcees.ac.cn;网址:www.hjxx.ac.cn

CONTENTS

Sources and Control Area Division of Ozone Pollution in Cities at Prefecture Level and Above in China	YAN Hui, ZHANG Wei, HOU Mo, <i>et al.</i> (5215)
Dynamic Assessment of PM _{2.5} Health Damage Value in China from 2015 to 2018	LI Hui-juan, ZHOU De-qun, WEI Yong-jie (5225)
Analysis of Multi-scale Spatio-temporal Differentiation Characteristics of PM _{2.5} in China from 2011 to 2017	YANG Wen-tao, QIAO Peng, LIU Xian-zhao, <i>et al.</i> (5236)
Spatio-temporal Evolution and Population Exposure Risk to PM _{2.5} in the Guanzhong Area	HUANG Xiao-jun, QI Ming-yue, LI Yan-yu, <i>et al.</i> (5245)
Formation Mechanism and Source Analysis of Two Heavy Pollution Periods in Winter in a Central Plains City	JIA Jia, CONG Yi, GAO Qing-min, <i>et al.</i> (5256)
Winter Pollution Characteristics and Physicochemical Properties of PM _{2.5} in a Northwest Industrial City	YANG Yan-ping, CHEN Qiang, WANG Li-na, <i>et al.</i> (5267)
Characterization of Metal Pollution of Regional Atmospheric PM _{2.5} and Its Sources Based on the PMF Model	DENG Lin-li, ZHANG Kai-shan, YIN Zi-yuan, <i>et al.</i> (5276)
Pollution Characteristics and Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Deposition in Core Urban Areas, Chongqing	ZHANG Xia, LIU Bin, XIAO Bo-lin, <i>et al.</i> (5288)
Factors Influencing New Atmospheric Particle Formation in Ordos During Summer and Autumn 2019	KONG Xiang-chen, WANG Hong-lei, ZHANG Lian-xia, <i>et al.</i> (5295)
Characteristics and Reactivity of Ambient VOCs in Urban Hangzhou, China	JING Sheng-ao, GAO Ya-qin, SHEN Jian-dong, <i>et al.</i> (5306)
Characteristics and Sources of Atmospheric Volatile Organic Compounds Pollution in Summer in Chengdu	XU Chen-xi, CHEN Jun-hui, JIANG Tao, <i>et al.</i> (5316)
Characteristics and Source Apportionment of VOCs and O ₃ in Shijiazhuang	WANG Shuai, CUI Jian-sheng, FENG Ya-ping, <i>et al.</i> (5325)
Analysis of Industrial VOCs Emission Inventory and Countermeasures in Xiamen	WU Dong-yang, ZHUANG Ma-zhan, WU Yan-cong, <i>et al.</i> (5336)
Emission Inventory and Emission Factors of Volatile Organic Compounds (VOCs) from Architectural Adhesives	LIANG Xiao-ming, SUN Xi-bo, SU Yan-hua, <i>et al.</i> (5345)
Sources and Health Risks of Atmospheric Polychlorinated Biphenyls in an Urban/Industrial Areas, Northwest China	MAO Xiao-xuan, LI Zi-xuan, SONG Shi-jie, <i>et al.</i> (5352)
Vertical Distribution of Surface Formaldehyde in the Pearl River Delta Urban Area Based on Observations at the Canton Tower	HUANG Shan, PEI Cheng-lei, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (5362)
Temporal and Spatial Characteristics of Total Phosphorus in the Middle and Lower Yangtze River Mainstem Under New Water and Sediment Conditions	ZHUO Hai-hua, LOU Bao-feng, WU Yun-li, <i>et al.</i> (5371)
Seasonal Variations in Nitrogen and Phosphorus Concentration and Stoichiometry of Hanfeng Lake in the Three Gorges Reservoir Area	QIAN Tian, HUANG Qi, HE Bing-hui, <i>et al.</i> (5381)
Distribution Characteristics and Pollution Assessment of Nutrients in Hengshui Lake Sediments	ZHANG Jia-wen, WEI Jian, LIU Li, <i>et al.</i> (5389)
Endogenous Pollution and Release Characteristics of Bottom Sediments of Hengshan Reservoir in Yixing City	CUI Hui-fang, CHEN Shu-yun, YANG Chun-hui, <i>et al.</i> (5400)
Pollution and Ecological Risk Assessment and Source Apportionment of Heavy Metals in Sediments of Qingliangshan Reservoir in the Meijiang Basin	JIANG Tao, LIN Wei-wen, CAO Ying-jie, <i>et al.</i> (5410)
Influence Factors of Potential Nitrification Rates and Functional Genes Abundance in the Jinshui River and the Qihe River of the Hanjiang River Basin	ZHAO Bin-jie, WANG Xu, ZHANG Jian, <i>et al.</i> (5419)
Contamination Characteristics and Potential Ecological Risks of Typical Perfluoroalkyl Substances in the Water and Sediment of Coastal Tourism Resorts in Shandong Province	WANG Shi-liang, CAO Xue-zhi (5428)
Distribution Characteristics and Source Identification of Organophosphate Esters in Key Waters Areas of Taihu Lake	LÜ Jia-pei, ZHANG Zhen-fei, LIU Yang, <i>et al.</i> (5438)
Residual Characteristics and Health Assessment Analysis of OCPs and PCBs in Karst Groundwater	YE Kai, SUN Yu-chuan, JIA Ya-nan, <i>et al.</i> (5448)
Biogeographic Distribution Patterns of Diatoms in Lancang River and Their Key Drivers	SUN Sheng-hao, CHEN Juan, WANG Pei-fang, <i>et al.</i> (5458)
Bioaccumulation Characteristics of Quinolones (QNs) in Dominant Fish Species and Their Correlation with Environmental Factors in Baiyangdian Lake	SHEN Li-na, FU Yu, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (5470)
Effect of Biomass Particle Size on the Adsorption of Phosphorus from Aqueous Solution by MgO-loaded Biochar	WANG Peng-fei, ZHI Meng-meng, CHU Zhao-sheng, <i>et al.</i> (5480)
Photocatalytic Degradation of Tetracycline and Copper Complex by Bi ₂ MoO ₆ /Bi ₂ S ₃ Heterojunction	HUANG Wen-xin, WEI Hu, JIANG Cai-yun, <i>et al.</i> (5488)
Enhancing PPCPs Removal and Membrane Fouling Control of Ultrafiltration Membrane by UiO-66@Fe ₃ O ₄ @UiO-66	YIN Yue, WU Dao-wen, SUN Meng-yao, <i>et al.</i> (5500)
Advanced Treatment of Tail Water Using Pilot-scale Horizontal and Vertical Subsurface Flow Constructed Wetlands in Low-temperature Seasons	LIAO Xue-ke, YAN Han-lu, WANG Zhi-yuan, <i>et al.</i> (5509)
Metagenomic Insights into Salinity Build-up in Microbial Communities and Metabolism of Hydrolytic Bioreactor Treating High-color PDWW	GAO Jing, ZHANG Shao-hua, WANG Rui, <i>et al.</i> (5518)
Performance and Microbial Characteristics of Ammonium-limited and Nitrite-limited ANAMMOX Systems	SONG Jia-jun, ZHU Ming-yi, GUO Kai-cheng, <i>et al.</i> (5527)
Microbial Community Structure and Diversity During the Enrichment of Anaerobic Ammonium Oxidation Bacteria	YAN Bing, XIA Song, GUI Shuang-lin, <i>et al.</i> (5535)
Enhanced Dewaterability of Waste-Activated Sludge in Presence of Fe(II)-Activated Calcium Peroxide	BI Wei-wei, RUAN Shu-yu, CHEN Wu-ao-xiao, <i>et al.</i> (5544)
Spatial Distribution, Contamination Assessment, and Sources of Heavy Metals in the Urban Green Space Soils of a City in North China	ZHAO Liang, LIANG Yun-ping, CHEN Qian, <i>et al.</i> (5552)
Technological Classification of Cadmium Quality in the Rice Producing Areas of South China	DOU Wei-qiang, AN Yi, QIN Li, <i>et al.</i> (5562)
Distribution Characteristics of Selenium in a Soil-Crop System and the Threshold of Selenium-Rich Soils	WANG Rui, DENG Hai, JIA Zhong-min, <i>et al.</i> (5571)
Transfer Factor and Health Risk Assessment of Heavy Metals in a Soil-Crop System in a High Incidence Area of Nasopharyngeal Carcinoma, Guangdong	YE Mai, ZHANG Jing-ru, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (5579)
DA-6 and GLDA Enhanced <i>Panicum virgatum</i> L. to Phytoextract Cd from Contaminated Soils	WANG Zheng, SUN Zhao-jun, Sameh Mohamed, <i>et al.</i> (5589)
Remediation Performance via the Passivation of a Porous Biomorph Genetic Composite of α -Fe ₂ O ₃ /Fe ₃ O ₄ /C Using a Bamboo Template on As(V) Contaminated Soils	ZHAO Ning-ning, HE Hao, FENG Guo-jie, <i>et al.</i> (5600)
Biodegradation of Expanded Polystyrene Foams in <i>Zophobas morio</i> : Effects of Gut Microbiota	YANG Li, LIU Ying, GAO Jie, <i>et al.</i> (5609)
Isolation, Identification, and Degrading Characteristics of an Oil Resistant Formaldehyde-Degrading Bacterium	HAN Xi, WANG Rong-rong, SHI Chun-zhen (5617)
Characteristics of Phyllosphere and Rhizosphere Bacterial Communities in <i>Bothriochloa ischaemum</i> in Copper Tailings	JIA Tong, YAO Yu-shan, WANG Rui-hong (5628)
Effects of Selected Biochars Application on the Microbial Community Structures and Diversities in the Rhizosphere of Water Spinach (<i>Ipomoea aquatica</i> Forssk.) Irrigated with Reclaimed Water	CUI Bing-jian, CUI Er-ping, HU Chao, <i>et al.</i> (5636)
Effects of Modified Biowaste-based Hydrochar on Rice Yield and Nitrogen Uptake	HOU Peng-fu, XUE Li-hong, FENG Yan-fang, <i>et al.</i> (5648)
Spatial Distribution Characteristics and Source Apportionment of Soil PAHs in Shizuishan City Based on GIS and PMF Model	XIA Zi-shu, WANG Yu-yu, ZHONG Yan-xia, <i>et al.</i> (5656)
Effects of Nitrogen Fertilizer and Straw Returning Methods on N ₂ O Emissions in Wheat-Maize Rotational Soils	XU Hong-wei, LI Na, FENG Yong-zhong, <i>et al.</i> (5668)