生态环境知识网
Eco-Environmental Knowledge Web

环境科学
ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

冠状病毒气溶胶传播及环境影响因素

李雪，蒋靖坤，王东滨，邓建国，贺克斌，郝吉明

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社

2021年7月
第42卷 第7期
Vol.42 No.7

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第 42 卷　第 7 期
2021 年 7 月 15 日

目　次

冠状病毒气溶胶传播及环境影响因素 …… 李雪, 蒋靖坤, 王东滨, 邓建国, 贺克斌, 郝吉明 (3091)
新冠肺炎疫情期间气象条件和排放变化对 $PM_{2.5}$ 的影响 …… 逯世泽, 史旭荣, 薛文博, 雷宇, 严刚 (3099)
基于网格的长三角 $PM_{2.5}$ 分布影响因素及交互效应 …… 黄小刚, 赵景波, 辛未冬 (3107)
ARIMA 时间序列分析模型在臭氧浓度中长期预报中的应用 …… 李颖若, 韩婷婷, 汪君霞, 权维俊, 何迪, 焦热光, 吴进, 郭恒, 马志强 (3118)
中国长三角背景点冬季大气棕碳污染特征及来源解析 …… 赵宇, 吴灿, 王益倩, 陈玉宝, 吕少君, 汪芳琳, 杜伟, 刘仕杰, 丁志健, 王格慧 (3127)
四川盆地 $PM_{2.5}$ 浓度时空变化特征遥感监测与影响因子分析 …… 李梦真, 张廷斌, 易桂花, 秦岩宾, 李景吉, 刘贤, 蒋杰 (3136)
河网连续动态模型构建及其在典型杀生剂时空迁移模拟中的应用 …… 邢成, 张芊芊, 蔡雅雅, 烟晓婷, 应光国 (3147)
九龙江流域河流氮输出对土地利用模式和水文状况的响应 …… 黄亚玲, 黄金良 (3156)
滇池近岸水体微塑料污染与富营养化的相关性 …… 袁海英, 侯磊, 梁启斌, 李佳琛, 任甲 (3166)
白洋淀夏季入淀区沉积物间隙水-上覆水水质特征及交换通量分析 …… 张甜娜, 周石磊, 陈召莹, 张紫薇, 孙悦, 姚波, 崔建升, 李再兴, 罗晓 (3176)
镇江市古运河和金山湖河湖上覆水体和沉积物氮及有机质分布特征及污染评价 …… 原璐彬, 邢书语, 刘鑫, 周晓红, Adelaide Angela Dadzie (3186)
洪湖国际重要湿地沉积物磷空间分布特征及释放风险 …… 刘永九, 黄素珍, 张璐, 彭雪, 张心怡, 葛芳杰, 刘碧云, 吴振斌 (3198)
苏州古城区域河道底泥的重金属污染分布及生态风险评价 …… 白冬锐, 张涛, 包峻松, 陈坦, 王洪涛, 金曦, 金军, 杨婷 (3206)
武汉集中式饮用水源地土壤重金属的时空分布特征及生态风险评价 …… 朱静, 侯耀宗, 邹书成, 曹梦华, 涂书新 (3215)
升金湖河湖交汇区地表-地下水水化学特征及成因分析 …… 崔玉环, 王杰, 刘友存, 郝泷, 高祥 (3223)
青岛市农区地下水硝态氮污染来源解析 …… 寇馨月, 丁军军, 李玉中, 毛丽丽, 李巧珍, 徐春英, 郑欠, 庄姗 (3232)
三峡库区支流浮游植物群落稳定性及其驱动因子分析 …… 何书晗, 欧阳添, 赵璐, 纪璐璐, 杨宋琪, 施军琼, 吴忠兴 (3242)
哈尔滨城市河网丰水期浮游植物群落分布特征及驱动因子 …… 路枫, 李磊, 齐青松, 陆欣鑫, 刘妍, 范亚文 (3253)
湖泊沉积物中微生物群落对天然有机质输入的响应 …… 居琪, 章奇, 曹驰程, 白雷雷, 张晖 (3263)
补给水质与社会活动对白洋淀湿地微生物的影响特征 …… 赵志瑞, 吴会清, 毕玉方, 展庆周, 吴海淼, 袁凯倪, 孟祥源, 李方红 (3272)
蓝藻衰亡过程中上覆水溶解性有机物变化特征 …… 李翔, 李致春, 汪旋, 张思远, 王慧敏, 厉荣强, 王国祥, 李启蒙 (3281)
长江下游快速城市化地区水污染特征及源解析:以秦淮河流域为例 …… 马小雪, 龚畅, 郭加汛, 王腊春, 徐蕴韵, 赵春发 (3291)
长江下游居民区降水地表径流的污染特征 …… 郭文景, 张志勇, 闻学政, 张瀚文, 王岩 (3304)
潮河流域降雨径流事件污染物输出特征 …… 包鑫, 江燕, 胡羽聪 (3316)
不透水地表粗糙度对城市面源颗粒物的累积和冲刷影响 …… 单溪环, 谢文霞, 廖云杰, 房志达, 杨晓晶, 苏静君, 赵洪涛, 李叙勇 (3328)
基于概率方法的中国居民饮水途径砷暴露健康风险评估 …… 秦宁, 刘运炜, 侯荣, 王彩云, 王贝贝, 段小丽 (3338)
蛋白类有机质在水厂各处理单元中的去除特性 …… 李梦雅, 宋钰莹, 张晓岚, 黄海鸥 (3348)
污水处理厂不同单元工艺水中重金属及其纳米颗粒的分布 …… 王杜珈, 何帅, 周小霞 (3358)
基于宏基因组技术分析 MBR 膜清洗后污泥中抗性基因 …… 杜彩丽, 李中淀, 李晓光, 张列宇, 陈素华, 黎佳茜, 李曹乐 (3366)
石化废水处理厂中耐药菌和耐药基因的分布特征与去除效能解析 …… 唐振平, 肖莎莎, 段毅, 刘迎九, 高媛媛, 吴月月, 陈怡雯, 周帅 (3375)
一段式亚硝化厌氧氨氧化 SMBBR 处理中低浓度氨氮废水 …… 吕恺, 邵贤明, 王康舟, 姚雪薇, 彭党聪, 韩芸 (3385)
外加固体缓释碳源的两段反硝化工艺脱氮性能 …… 唐义, 马邕文, 万金泉, 王艳, 叶刚 (3392)
臭氧投量对 SBR 系统污泥沉降性能及脱氮除磷的影响 …… 吕永涛, 朱传首, 张旭阳, 徐超, 潘永宝, 刘爽, 崔双科, 王磊 (3400)
间歇梯度曝气下首段延时厌氧强化好氧颗粒污泥脱氮除磷 …… 张玉君, 李冬, 王歆鑫, 张富国, 张杰 (3405)
提盐速率对序批式生物反应器性能和微生物群落结构的影响 …… 古柏铭, 金春姬, 温淳, 侯金源, 赵阳国, 高孟春 (3413)
低温驯化对自养脱氮颗粒污泥功能活性与菌群结构的影响分析 …… 钱飞跃, 刘雨馨, 王建芳, 刘文如 (3422)
矿渣基改性剂对城市污泥重金属稳定化 …… 张发文, 董明坤, 陈辰慧, 赵长民 (3430)
2000～2018 年长三角土地利用变化对农田生态系统氨排放的影响 …… 王文锦, 王卿, 朱安生, 黄凌, 顾莹, 王杨君, 王敏, 李莉 (3442)
麦秸水热炭及其改良产物对水稻产量和稻田氨挥发排放的影响 …… 韩晨, 侯朋福, 薛利红, 冯彦房, 余姗, 杨林章 (3451)
水肥管理对热带地区双季稻田 CH_4 和 N_2O 排放的影响 …… 李金秋, 邵晓辉, 缑广林, 邓艺欣, 谭诗敏, 徐文娴, 杨秋, 刘文杰, 伍延正, 孟磊, 汤水荣 (3458)
耐盐碱水稻土壤产甲烷菌群落特征及产甲烷途径 …… 杨雨虹, 贺惠, 米铁柱, 刘玥腾, 刘佳音, 张国栋, 李明月, 甄毓 (3472)
铁碳微电解填料对人工湿地温室气体排放的影响 …… 赵仲婧, 郝庆菊, 涂婷婷, 胡曼利, 张尧钰, 江长胜 (3482)
农地土壤重金属 Pb 和 Cd 有效性测定方法的筛选与评价 …… 陈莹, 刘汉燚, 刘娜, 蒋珍茂, 魏世强 (3494)
亚热带高山森林土壤典型重金属的空间分布格局及其影响因素:以云南哀牢山为例 …… 刘旭, 王训, 王定勇 (3507)
深圳市不同土类的重金属环境背景值与理化性质特征 …… 林挺, 赵述华, 郗秀平, 杨坤, 吴静雅, 朱艳, 罗飞 (3518)
同步钝化土壤 Cd 和 As 材料的筛选 …… 周嗣江, 刘针延, 熊双莲, 马烁, 黄倚豪, 雷寅, 曹梦华, 涂书新 (3527)
两种铁基材料对污染农田土壤砷、铅、镉的钝化修复 …… 袁峰, 唐先进, 吴骥子, 赵科理, 叶正钱 (3535)
青藏高原东缘冻土中有机磷酸酯的污染特征 …… 刘丽娅, 印红玲, 蹇林洁, 徐子文, 熊远明, 罗怡, 刘小雯, 徐维新 (3549)
成都平原氮磷化肥施用强度空间分布及影响因素分析 …… 刘奇鑫, 王昌全, 李冰, 赵海岚, 方红艳, 邓茜, 李启权 (3555)
土壤中溶解性有机质对不同类型堆肥的响应差异 …… 席北斗, 王燕, 檀文炳, 余红, 崔东宇, 程东会, 党秋玲 (3565)
《环境科学》征订启事(3315)　《环境科学》征稿简则(3357)　信息(3391, 3441, 3564)

Eco-Environmental Knowledge Web
环 境 科 学
Environmental Science
第42卷第7期 2021年7月
Vol.42, No.7 Jul., 2021

河网连续动态模型构建及其在典型杀生剂时空迁移模拟中的应用

邢成[1,2], 张芊芊[1,2*], 蔡雅雅[1,2], 烟晓婷[1,2], 应光国[1,2]
(1. 华南师范大学环境学院, 广州 510006; 2. 华南师范大学环境研究院, 广东省化学品污染与环境安全重点实验室, 环境理论化学教育部重点实验室, 广州 510006)

摘要: 以三氯生(TCS)和三氯卡班(TCC)为目标污染物,通过监测评价新冠疫情期间杀生剂的河网污染特征; 同时,构建了一维水动力学模型和四级逸度模型耦合的河网连续动态模型,解决了污染物在河网迁移过程中的时间和空间异质性问题,开展了目标杀生剂在石马河流域的迁移模拟. 模型通过率定和实际浓度验证,获得了满意的模拟结果. 结果表明,新冠疫情期间河网中杀生剂的污染浓度是非疫情期间的2倍. TCS和TCC从污水处理厂排出后,在河道中的浓度随着河流迁移的距离增大,呈现先升高后降低的趋势; 而浓度的时间变化特征则受到河段流量的影响,上游低流量区域河网中杀生剂浓度先上升而后下降,且在20 h左右已逐渐趋于稳定; 下游高流量区污染浓度呈现梯形缓慢升高趋势,且浓度最终在24 h时尚未成为稳定值. 因此,对河网中典型杀生剂迁移的时空特征的评估,需在区别流量大小的前提下,分段和分时进行.

关键词:杀生剂; 逸度; 连续动态模拟; 河网; 归趋
中图分类号: X522 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2021)07-3147-09 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.202011202

Construction of Continuous Dynamic Model for River Networks and Its Application in Simulation of Spatiotemporal Migration of Typical Biocides

XING Cheng[1,2], ZHANG Qian-qian[1,2*], CAI Ya-ya[1,2], YAN Xiao-ting[1,2], YING Guang-guo[1,2]
(1. School of Environment, South China Normal University, Guangzhou 510006, China; 2. Guangdong Provincial Key Laboratory of Chemical Pollution and Environmental Safety, Key Laboratory of Theoretical Chemistry of Environment, Ministry of Education, Environmental Research Institute, South China Normal University, Guangzhou 510006, China)

Abstract: Biocides are widely added to personal care products and enter the environment through sewage treatment plant (STP) discharge, which affects ecological health. This paper evaluated the pollution characteristics of triclosan and triclocarban in a river network during the COVID-19 epidemic. Moreover, a continuous dynamic river network model coupling a one-dimensional hydrodynamic model and four-level fugacity model was established to address the temporal and spatial heterogeneity of pollutants in the river network migration process; then, this model was applied to evaluate two biocides in the Shima River Basin. The model passed calibration and in-field concentration verification tests and yielded satisfactory simulation results. The results of the study showed that the concentration of biocides in the river network during the new crown epidemic was twice that of the non-epidemic period. The concentration of triclosan and triclocarban in the river channel first increased and then decreased with the increase of the river migration distance after STP discharge. The time variation characteristics of the concentrations were affected by the river flow. The biocide concentration in the river network of the low flow upstream area first increased and then decreased, gradually stabilizing in about 20 h. The pollution concentration in the high flow downstream area was increased, and the concentration did not stabilize at 24 h. These results indicate the necessity of evaluating the temporal and spatial characteristics of migration of typical biocides in the river network by stages and time on the premise of distinguishing the flow.

Key words:biocide; fugacity; continuous dynamic modelling; river network; fate

三氯生(triclosan, TCS)和三氯卡班(triclocarban,TCC)作为典型的杀生剂,广泛添加于各种个人护理品之中,例如肥皂、牙膏、洗手液、沐浴露和医疗消毒剂等[1,2]. 个人护理品在使用后被冲进下水道,成为生活污水的一部分,再经过城市污水处理厂处理后排入自然环境或者直接排入自然环境中[3,4]. 污水处理厂出水口及受纳河网中TCS的报道浓度高达57.6 μg·L^{-1}[5], TCC高达6.75 μg·L^{-1}[6]. 水环境中的TCS和TCC污染,会对水生生物产生较高的生态风险[7],例如对藻类带来潜在毒性[8],影响甲壳类动物[9]和鱼类[10]的生长,还会对水体中细菌群落的种类和数量造成影响[11]等. 我国TCS和TCC的年估计用量高达1 220 t[12],是欧美等发达国家用量的3倍以上. 去年以来,新冠肺炎疫情暴发,中国进行常态化防控,勤洗手消毒已经成为共识,洗手液和消毒剂的使用更为频繁,可能使得排入环境的杀生剂量激增. 考虑到TCS和TCC河网中

收稿日期: 2020-11-23; **修订日期**: 2021-01-08
基金项目: 国家自然科学基金项目(42077429, 41603105, U1701242)
作者简介: 邢成(1996~),男,硕士研究生,主要研究方向为环境污染物的归趋与模拟,E-mail: cheng.xing@m.scnu.edu.cn
* 通信作者,E-mail:qianqian.zhang@m.scnu.edu.cn

较长的降解半衰期(60 d)[6]、大量的使用现状和持续的排放状态,有必要开展 TCS 和 TCC 在排污口及受纳河网中的污染分布和迁移特征研究,从而为疫情背景下有效实施水质管理和风险评估提供科学数据.

评价污染物在河网中的分布水平和迁移特征,有实地采样监测和应用环境数学模型两种方法[13]. 河流的动态迁移特征,以及各种有机污染物的多介质分布状态,使得实地采样监测受到时空不确定性等因素的限制,且需耗费大量的人力、物力和财力[14]. 在此背景下,构建污染物迁移模型成为了在有限监测数据情况下对污染物开展评估的不可或缺的方法. 基于逸度方法的环境多介质模型,是目前应用最广泛的环境多介质模型[15],已被有效应用于模拟多种类型污染物的环境归趋[12~14],尤其是流域和湖泊等水生环境[14,16,17]. 然而,逸度模型不能反映出河流水文特征的空间连续性; 模型中河段的流量、水深和体积等水文参数是固定的,不能实现空间连续分布. 但是,对河网平流过程的合理描述是确定污染物在水中运输和空间分布的必要条件,而且环境污染物的分布水平不仅取决于排放量、持续时间、排放频率和地点,还取决于随流速和深度变化的河道动力学过程[18]. 大量对杀生剂的研究表明,其浓度受到排污位置和水文特征较大影响[5,6],因此有必要进一步发展同时描述河流的水动力学过程和环境多介质迁移的逸度模型,以真正体现杀生剂等污染物经污染源排放后,在水网中的时空迁移规律,实现河网污染物归趋的准确评价.

石马河是珠三角地区重要的水源地[19],也是我国主要的劳动密集型工业城市[20],个人护理品使用量巨大,杀生剂污染普遍[21]. 因此,本文选取石马河流域为研究区域,以典型杀生剂 TCS 和 TCC 为目标物质,通过污染监测评价新冠疫情期间杀生剂的河网污染特征; 并构建水动力学模型和逸度模型有机耦合的连续动态模型,解决目标污染物在河网迁移过程中的空间和时间异质性问题,同时利用监测浓度进行模型验证. 通过监测方法与模型模拟相结合,综合评价 TCS 和 TCC 的连续动态迁移特征和时空迁移规律,以期为其他有机污染物经源排放后在河网中的动态迁移特征评价提供科学技术支撑.

1 材料与方法

1.1 研究区域概况

石马河属于东江水系的支流之一,发源于深圳市宝安区,河水流向由南向北,流经观澜、塘厦和樟木头等行政区,经桥头镇出水口汇入东江,全长 88 km,流域总面积达1 249 km^2. 年平均降水量1 795 mm,平均气温 22.4℃. 流域内常住人口逾 180 万,GDP 可达3 000亿元以上,占广东省 GDP 的 4%[22].

1.2 样品采集

采样时间为 2020 年 7 月,主要分为两个部分: 第一部分是河道断面数据采集,获取水动力学模型所需的起点距和高程对,流量等水文参数数据; 第二部分是污水处理厂出水和河道水样采集,监测 TCS 和 TCC 在石马河中的污染物浓度,并对模型进行验证. 采样点具体位置如图 1 所示,根据石马河的实际水文情况和国家水文站的位置,设置了 25 个河道监测断面(S1 ~ S25),将石马河分成 24 个河段(编号: 1 ~ 24),采用声学多普勒流速剖面仪(acoustic doppler current profiler,ADCP)测量河道断面和水文学数据,并用 GPS 仪获取采样点的位置和高程数据. S1、S10、S11、S13、S15 和 S16 是污水处理厂出水口,采集污水处理厂出水口水样. 同时,出水口相应的受纳河网,在上游 (S2、S3、S4、S5、S7、S8 和 S9)和下游 (S17、S18、S19、S21、S22、S24 和 S25) 分别设置了 7 个采样点. 同一采样点用 1 L 的棕色玻璃瓶采集三瓶水样,选择河道同一横截面左中右 3 个点的混合样. 采集后的水样加入 50 mL 甲醇和 400 μL 4 $mol \cdot L^{-1}$硫酸,以防止微生物的生物降解,置于 4℃ 保温箱中运回实验室. 水样在 4℃的冷库中保存,并于 48 h 内提取.

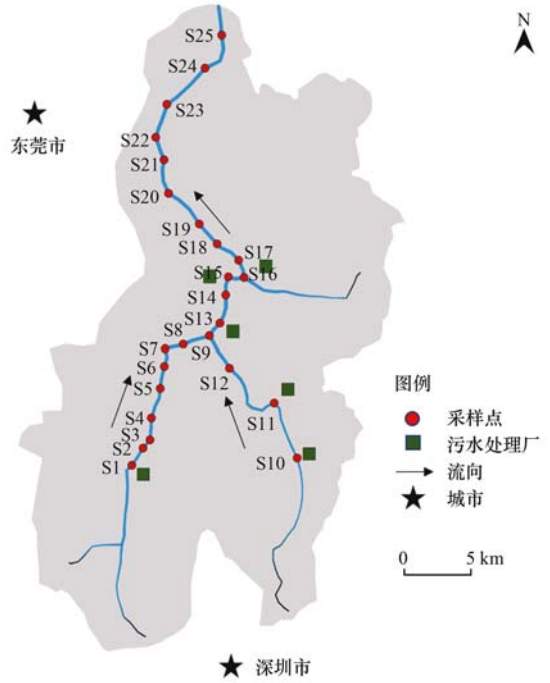

图 1 石马河流域内污水处理厂和采样点分布示意

Fig. 1 Map of sampling sites in Shima River, South China

1.3 样品前处理和分析方法

水中杀生剂的浓度由水相和水中悬浮颗粒物相

两部分组成. 采集的水样用 70 mm GF/F 玻璃纤维滤膜过滤,把负载颗粒物的滤膜剪碎,置于 30 mL 离心管中,并加入 10 mL 甲醇,涡旋 30 s,超声 10 min 接着放入离心机中用3 000 r·min^{-1}速度离心 5 min,然后吸取上层清液到对应的 1 L 水样中. 第二次加入 5 mL 甲醇和 5 mL 0.1% 甲酸重复上述过程进行提取和转移上清液. 在每个水样中加入 100 ng·L^{-1} $^{13}C_{12}$-TCS 和 TCC-d7 作为 TCS 和 TCC 的内标,混合均匀. 依次用 10 mL 甲醇和 10 mL Mili-Q 水将 500 mg 6cc HLB 柱活化,水样以 5 ~ 10 mL·min^{-1}的速度过 HLB 小柱后,用 2 × 50 mL 5% 甲醇的 Mili-Q 水润洗瓶子. 将 HLB 小柱抽干后用 5 mL 甲醇、4 mL 乙酸乙酯和 3 mL 二氯甲烷分别先后洗脱,再用 1 mL 甲醇定容,过有机相滤膜,保存到 2 mL 进样小瓶中,在 -18℃下保存,进行液相色谱-串联质谱(LC-MS/MS)仪器分析. 上述方法 TCS 和 TCC 的回收率在 90% ~ 130% 之间,检出限(limit of detection,LOD)和定量限(limit of quantization,LOQ)分别为:三氯生(LOD:0.21 ng·L^{-1};LOQ:0.70 ng·L^{-1}),三氯卡班(LOD:0.24 ng·L^{-1};LOQ:0.79 ng·L^{-1}). 详细的样品提取和仪器分析方法参考文献[23].

1.4　模型构建及验证

1.4.1　模型描述

以圣维南方程为基础的河道水动力学模型可以很好地模拟河网的运动过程,获取流量、水深和流速等连续动态的水文参数[16]. 河道水动力学模型可以分为一维、二维和三维等不同维度,更高维度的水动力学模型模拟得到的结果更加接近实际情况[24~26]. 但是在实际应用中,考虑到河道的长度远远大于其深度和宽度,为了降低模型的复杂程度,提高计算效率,大量研究者选择一维河道水动力学模型进行模拟[13,16,18,27,28]. 逸度模型按照复杂程度分为一级逸度模型到四级逸度模型[29],随着级别的提高,模型结构也逐渐复杂,四级逸度模型引入了污染物在环境归趋中的时间可变性,可表征污染物的时间变化特征. 因此,本研究构建的连续动态多介质逸度模型是由一维水动力学模型和四级逸度模型耦合而成. 根据国家监测断面和河流的自然水文状况,将整个河流系统划分为若干个河段,对每一个河段展开计算,上一个河段的输出解作为下一个河段的输入解,实现对整个河流系统的污染物归趋模拟.

1.4.2　一维水动力学模型

圣维南方程组构成了河道非恒定流水动力学数值模拟模型的基础[16],圣维南方程组的完整形式称为运动波模型,是质量守恒方程和动量守恒方程的结合.

连续方程:

$$\frac{\partial A}{\partial t}+\frac{\partial O}{\partial x}=0 \tag{1}$$

动量方程:

$$\frac{\partial Q}{\partial t}+\frac{\partial Qu}{\partial x}+gA\frac{\partial Z}{\partial x}+gAS_f=0 \tag{2}$$

式中,A 为河道断面面积(m^2),t 为时间步长(s),Q 为流量(m^3·s^{-1}),x 为距离步长(m),u 为断面流速(m·s^{-1}),g 为重力加速度(m·s^{-2}),Z 为水位(m),S_f 是摩阻比降.

$$S_f=\frac{|Q|Q}{C^2A^2R} \tag{3}$$

式中,C 为谢才系数,R 为水力半径(m),结合曼宁公式 $C=R^{1/6}/n$,方程组可以被化简如下.

连续方程:

$$B\frac{\partial Z}{\partial t}+\frac{\partial Q}{\partial x}=0 \tag{4}$$

动量方程:

$$\frac{\partial Q}{\partial t}+u\frac{\partial Q}{\partial x}+gA\frac{\partial Z}{\partial x}+g\frac{n^2Q|u|}{R^{4/3}} \tag{5}$$

式中,B 为河宽(m),n 为糙率系数.

采用 Preissmann 隐式差分格式对方程组进行离散:

$$\frac{\partial Z}{\partial t}\approx\frac{\Delta Z}{\Delta t}=\frac{Z_{i+(1/2)}^{t+1}-Z_{i+(1/2)}^{t}}{\Delta t}=\frac{\frac{Z_i^{t+1}+Z_{i+1}^{t+1}}{2}-\frac{Z_i^{t}+Z_{i+1}^{t}}{2}}{\Delta t} \tag{6}$$

$$\frac{\partial Q}{\partial x}\approx\frac{\Delta Q}{\Delta x}=\frac{[\theta Q_{i+1}^{t+1}+(1-\theta)Q_{i+1}^{t}]-[\theta Q_i^{t+1}+(1-\theta)Q_i^{t}]}{\Delta x}=\frac{Q_{i+1}^{t+1}-Q_i^{t+1}}{\Delta x} \tag{7}$$

$$u=(u_i^t+u_{i+1}^t)/2 \tag{8}$$

$$Q=(Q_i^t+Q_{i+1}^t)/2 \tag{9}$$

将离散形式(6) ~ (9)代入简化的圣维南方程组[式(4) ~ (5)],得到连续方程和动量方程如下.

连续方程:

$$B\frac{Z_i^{t+1}+Z_{i+1}^{t+1}-Z_i^t-Z_{i+1}^t}{2\Delta t}+\frac{Q_{i+1}^{t+1}-Q_i^{t+1}}{\Delta x}=0 \tag{10}$$

动量方程:

$$\frac{Q_i^{t+1}+Q_{i+1}^{t+1}-Q_i^t-Q_{i+1}^t}{2\Delta t}+u\frac{Q_{i+1}^{t+1}-Q_i^{t+1}}{\Delta x}+gA\frac{Z_{i+1}^{t+1}-Z_i^{t+1}}{\Delta x}+\frac{gn^2|u|}{R^{\frac{4}{3}}}\frac{Q_i^{t+1}+Q_{i+1}^{t+1}}{2}=0 \tag{11}$$

上式采用四阶龙格-库塔(Runge-Kutta)法求解,

初始条件和边界条件定义如下：

$$Q(x,0) = Q_0 \quad (12)$$

$$Z(0,t) = Z(t) \quad (13)$$

在 MATLAB R2017b 软件环境下，对以上圣维南方程组进行编码求解. 求解方程组所需的河道横截面数据(包括起点距和高程对)由 ADCP 实地监测获取，使用 GPS 仪获取高程数据，相邻断面距离通过百度地图距离测量工具获取. 河道横截面流量数据作为模型的初始条件输入. 从广东水文局在石马河流域设置的 3 个水文站点中获取实时水位信息，作为模型的边界条件. 运行模型，得到河段流量、水深和体积的数值解，并将它们定义成全局变量，为下一步四级逸度模型使用.

1.4.3 四级逸度模型

四级逸度模型主要包括空气相、水相和沉积物相这 3 个相，涉及污染物在气相和水相的平流过程以及在各环境相之间的迁移、转化和降解过程. 以各个相之间的总输入通量等于输出通量为假设前提，建立质量平衡方程，表达式为：

$$\frac{V_i Z_i \mathrm{d}f_i}{\mathrm{d}t} = Q_i + \sum (D_{ji} f_i - D_{ij} f_j) - (D_{mi} + D_{ti}) f_i \quad (i,j = 1,2,3,\cdots) \quad (14)$$

式中，$i,j = 1,2,3$ 分别为空气相、水相和沉积物相，V_i 为体积(m^3)，Z_i 为逸度容量[$mol\cdot(m^3\cdot Pa)^{-1}$]，$Q_i$ 为输入速率($mol\cdot h^{-1}$)，D_{ji} 为目标污染物在相邻相之间的迁移速率[$mol\cdot(Pa\cdot h)^{-1}$]，D_{mi} 为降解速率[$mol\cdot(Pa\cdot h)^{-1}$]，D_{ti} 为平流输出速率[$mol\cdot(Pa\cdot h)^{-1}$]. 模型中传输过程与相应 D 值求解方法如表 1 所示.

表 1 传输过程描述和相应的 D 值[1)]

Table 1 Transfer processes and corresponding D values

传输过程	相应 D 值/$mol\cdot(Pa\cdot h)^{-1}$
气相平流流出	$Q_{10t} \times Z_1$
气相平流流入	—
水相平流流出	$Q_{20t} \times Z_2$
水相平流流入	—
从气相到水相扩散	$A_2/[(1/(K_{12} \times Z_{11}) + 1/(K_{21} \times Z_{22}))]$
从水相到气相扩散	$A_2/[(1/(K_{12} \times Z_{11}) + 1/(K_{21} \times Z_{22}))]$
从水相到沉积物相扩散	$A_3/[1/(K_{23} \times Z_{22}) + L_4/(B_3 \times Z_{22})]$
从沉积物相到水相扩散	$A_3/[1/(K_{23} \times Z_{22}) + L_4/(B_3 \times Z_{22})]$
沉积作用	$A_3 \times K_s \times Z_{23}$
再悬浮	$A_3 \times K_r \times Z_{33}$
气相降解作用	$K_{m1} \times A_1 \times h_1 \times Z_1$
水相降解作用	$K_{m2} \times A_2 \times h_2 \times (Z_2 - X_{2f} \times Z_{2f})$
沉积物相降解作用	$K_{m3} \times A_3 \times h_3 \times Z_3$

1)下标 1、2 和 3 分别代表空气相、水相和沉积物相；下标 t、s、r 和 m 分别代表平流作用、沉积作用、再悬浮作用和降解作用；Z_1 表示气相总逸度容量，$Z_1 = Z_{11}$；Z_2 表示水相总逸度容量，$Z_2 = Z_{22} + Z_{23} \times X_{23}$

表 1 中的参数说明和逸度模型所需的其他参数，如表 2 所示. 在 MATLAB R2017b 软件环境下，调用上文求出的各河段水文数据，使用 ODE 法编码求解微分方程. 模型模拟的时间间隔为 5 min，共模拟 24 h，最终可获得各河段不同时间序列的目标污染物浓度. 本模型主要针对河网中水环境的迁移过程评估，因此在模拟结果的描述中均以水环境模拟结果为主.

1.4.4 模型耦合

本研究中石马河流域共划分 24 个河段，采用一维水动力学模型对各河段进行模拟，得到河流的流量、流速、水深和体积的时空数值解. 为了保证数值解的稳定性，对时空网格进行合理划分，使时间步长 Δt 满足 Courant-Fredrick-Levy 稳定条件[37]：

$$\Delta t \leqslant \Delta x/\sqrt{gh}$$

式中，Δx 为距离步长(m)，g 为重力加速度($m\cdot s^{-2}$)，h 为水深(m). 然后，在 MATLAB 平台下，将这些数值解读取到具有相同时空网格的四级逸度模型中，作为河网水文参数，从而实现一维水动力学模型和四级逸度模型的有机耦合，开展污染物进行连续动态归趋模拟.

1.4.5 模型率定和不确定性分析

水力学模型的表现评估主要依据纳什系数(nash-sutcliffe efficiency, NSE)[38,39]，用于评价模拟和观测结果趋势变化差异，NSE 不低于 0.5 则视为结果相对较好[40]. 通过不断修改河道糙率计算相应的 NSE，将最终 NSE 大于 0.5 以上的参数集确定为最后参数集，从而完成模型率定. 本研究采用广东水文局在石马河流域的 3 个汛期专用水位观测点的实时水位数据，对模型进行率定，包括：桥东大桥旧桥(位于桥头镇桥东大桥旧桥)、塘厦(位于塘厦镇石潭埔旧桥)和旗岭(位于常平镇旗岭闸上). 率定后最终 NSE 计算结果非常接近 1.0，认为一维水力学模型能够较好地模拟动态河流特征.

本研究利用前期已经建立的模型敏感性和不确定性分析方法[41]. 首先将各参数分别变化 ±10%，通过计算模型输出结果的相对变化量与输入参数的相对变化量之比，获得灵敏度系数 Cs. 敏感性分析显示，在所有的模型参数中，对 TCS 和 TCC 在水中的浓度变化影响最大的是河道污染物输入量、水域面积、流量和降解半衰期等. 然后，为每个最敏感参数确定参数浮动范围，基于蒙特卡洛的方法，获得模拟浓度的结果范围，并以 SQR(第 1 和第 3 四分位数的差值)量化表征模型. 本研究结果显示，模拟结果的 SQRs 绝大多数在 1 个数量级左右，因此模型的不确定性在可接受范围内.

表 2　多介质模型中使用的参数[1)]

Table 2　Collected parameters used in the multimedia model

符号	单位	定义	数值	文献
h_1	m	空气厚度	1.000×10^{3}	[15]
h_2	m	水深	—	—
h_3	m	沉积物厚度	5.000×10^{-2}	[15]
A_1	m^2	气相面积	—	—
A_2	m^2	水相面积	—	—
A_3	m^2	沉积物相面积	—	—
X_{23}	—	水体悬浮度	—	—
X_{32}	—	沉积物中水的体积分数	7.000×10^{-1}	[15]
O_{23}	—	水中固体中有机碳的含量	3.480×10^{-2}	[30]
O_{33}	—	沉积物中有机碳含量	9.800×10^{-3}	[31]
Q_{01t}	$kg\cdot L^{-1}$	空气平流输入的量	0.000×10^{0}	—
Q_{10t}	$m^3\cdot h^{-1}$	空气平流输出的量	0.000×10^{0}	—
Q_{02t}	$kg\cdot L^{-1}$	水相平流输入的量	—	—
Q_{20t}	$m^3\cdot h^{-1}$	水相平流输出的量	—	—
T	K	区域温度	2.960×10^{2}	[22]
R	$(Pa\cdot m^3)\cdot(mol\cdot K)^{-1}$	通用气体常数	8.314×10^{0}	[15]
H	$(Pa\cdot m^3)\cdot mol^{-1}$	亨利常数	5.500×10^{-3} (TCS) 4.557×10^{-8} (TCC)	[32~34] [31]
P_s	Pa	蒸气压	4.972×10^{-4} (TCS) 4.705×10^{-9} (TCC)	[32,35~37] [31]
K_{OC}	$L\cdot kg^{-1}$	有机碳归一化分配系数	2.357×10^{4} (TCS) 5.596×10^{4} (TCC)	[31] [31]
K_{m1}	h^{-1}	气相降解速率	1.182×10^{1} (TCS) 1.476×10^{1} (TCC)	[31] [31]
K_{m2}	h^{-1}	水相降解速率	4.304×10^{2} (TCS) 1.859×10^{3} (TCC)	[31] [31]
K_{m3}	h^{-1}	沉积物相降解速率	3.524×10^{3} (TCS) 7.395×10^{3} (TCC)	[31] [31]
B_1	$m^2\cdot h^{-1}$	气体分子扩散系数	4.000×10^{-2}	[15]
B_2	$m^2\cdot h^{-1}$	水体分子扩散系数	4.746×10^{-6} (TCS) 4.510×10^{-6} (TCC)	[31] [31]
B_3	$m^2\cdot h^{-1}$	沉积物分子扩散系数	5.869×10^{-7} (TCS) 5.351×10^{-7} (TCC)	[31] [31]
K_{12}	$m\cdot h^{-1}$	气相到水相的传质系数	3.000×10^{0}	[15]
K_{21}	$m\cdot h^{-1}$	水相到气相的传质系数	3.000×10^{-2}	[15]
K_{23}	$m\cdot h^{-1}$	水相到沉积物相的传质系数	1.000×10^{-2}	[15]
L_3	m	沉积物相的扩散路径长度	2.500×10^{-2}	[15]
K_s	$m\cdot h^{-1}$	水中沉降率	4.600×10^{-6}	[15]
K_r	$m\cdot h^{-1}$	沉积物中的再悬浮速率	1.140×10^{-8}	[15]
f'	%	STP 目标化合物的去除率	9.453×10^{-1} (TCS) 9.715×10^{-1} (TCC)	[31] [31]

1)水深 h_2、水相面积 A_2、水相平流输入的量 Q_{02t} 和水相平流输出的量 Q_{20t} 由水动力学模型模拟得出，$A_1 = A_2 = A_3$；水体悬浮度 X_{23} 使用国标法 GB 11901-89 在实验室测定

2　结果与讨论

2.1　典型杀生剂的监测浓度

石马河 TCS 和 TCC 的监测浓度如表 3 所示. 监测浓度最高的点 TCS 为 S1，TCC 为 S11. 流域中 TCS 浓度范围可相差 7 倍以上，而 TCC 仅为 3 倍左右. S1 为深圳观澜污水处理厂的出水口，处理规模 6.5 万 $t\cdot d^{-1}$[42]，是研究区域内日处理量最大的污水处理厂. 而 S11 为塘厦石桥头污水处理厂，其处理工艺为 A^2/O，对 TCC 的处理效率较前者偏低，再加上较小的河流流量，因此使得排出了高浓度的目标物质. 流域中 TCS 和 TCC 最低的监测浓度均分布在 S25. 该点位于石马河最下游，其所在河段的流量远大于上游(7.430 $m^3\cdot s^{-1}$ vs. 31.588 $m^3\cdot s^{-1}$)，因此对目标物质的浓度具有较大稀释作用. 整体来看，石马河下游的目标杀生剂浓度与上游保持在一个等级，表

明二者在河网中受到了吸附、降解等作用的影响,因此各污染源排放后产生的累积效应影响不大,这与以往的研究结果相类似[21].

表 3 石马河三氯生和三氯卡班的监测浓度/ng·L^{-1}

Table 3 Measured concentrations of TCS and TCC in Shima River/ng·L^{-1}

采样点	TCS	TCC	位置特征
S1	44.83	14.17	污水处理厂
S2	25.73	13.47	上游
S3	18.57	12.17	上游
S4	30.00	13.1	上游
S5	37.90	14.03	上游
S7	27.20	14.43	上游
S8	32.63	16.17	上游
S9	23.80	16.60	上游
S10	42.13	26.37	污水处理厂
S11	37.60	30.77	污水处理厂
S13	30.20	16.23	污水处理厂
S15	28.60	21.37	污水处理厂
S17	34.00	17.83	下游
S18	35.40	18.27	下游
S19	24.37	16.2	下游
S21	25.53	16.77	下游
S22	22.90	17.27	下游
S24	15.47	14.43	下游
S25	6.03	9.97	下游

本次采样时间处于新冠肺炎疫情期间. 本文从已有研究中查找了近年来石马河 TCS 和 TCC 的监测浓度共 8 组[21,43],汇总后与本研究结果进行了比对,结果如图 2 所示. 疫情期间石马河水体中 TCS 的浓度范围为 23 ~ 33 ng·L^{-1},浓度中位数为 26 ng·L^{-1}; TCC 的浓度主要处于 13 ~ 17 ng·L^{-1},浓度中位数为 15 ng·L^{-1}. 非疫情期间石马河水体中 TCS 的浓度范围为 16 ~ 40 ng·L^{-1},中位数为 25 ng·L^{-1}; TCC 的浓度范围为 6 ~ 10 ng·L^{-1},中位数为 7 ng·L^{-1}. 可以看出,疫情期间的石马河水体中 TCS 浓度略高于非疫情期间,而 TCC 的浓度则明显偏高,相差约 2 倍左右. 2016 年美国 FDA 已禁止洗手液和沐浴露中添加 TCS 和 TCC[44],我国虽未颁布相关法令,但受国际影响,商家在多种个人护理品产品中已停止添加 TCS 和 TCC 作为杀菌物质[45]. 因此可以确定,人们在疫情期间更加频繁地洗手以及更大量消毒剂的使用,是水体中杀生剂浓度升高的重要原因.

2.2 典型杀生剂的河网模拟浓度与模型验证

TCS 和 TCC 在石马河中的各采样点模拟浓度及相应监测浓度如图 3 所示. 石马河上游各个点位 TCS 和 TCC 的模拟浓度最高为 46.3 ng·L^{-1}和 13.8 ng·L^{-1},均位于点 S5; 最低为 18.3 ng·L^{-1}和 4.59 ng·L^{-1},均位于点 S3 点. 随着河流的流向来

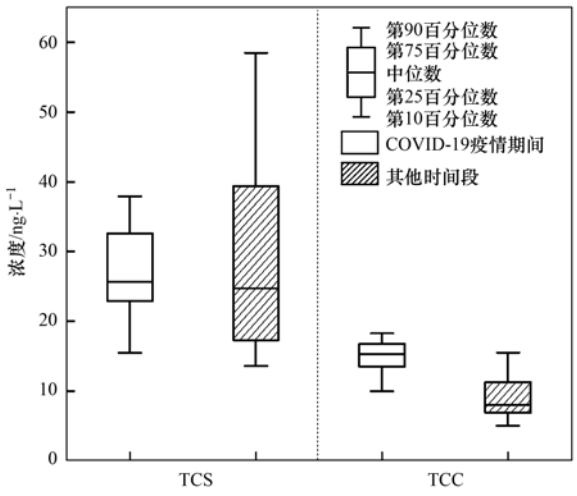

图 2 石马河疫情期间和非疫情期间三氯生和三氯卡班浓度箱线图

Fig. 2 Boxplots showing concentration distribution of TCS and TCC in Shima River during COVID-19 and other periods

看,上游 TCS 和 TCC 的模拟浓度总体上呈现一种先升高再降低的趋势. 石马河下游目标污染物的模拟浓度也表现出与上游类似的趋势,但总体浓度低于上游水平. 下游 TCS 和 TCC 模拟浓度最高为 26.91 ng·L^{-1}和 13.8 ng·L^{-1},均位于点 S21; 最低为 8.46 ng·L^{-1}和 9.97 ng·L^{-1},分别位于点 S24 和 S25 点. 总体来看,如图 3 所示,沿着河道的流向,各采样点的监测结果与相应点位模拟结果的变化趋势一致. 其中,S21 处的不一致变化,主要是由于该点位上游邻近堤坝,由于调蓄作用造成流量的率定结果影响较大,从而使得预测值与监测值存在一定误差.

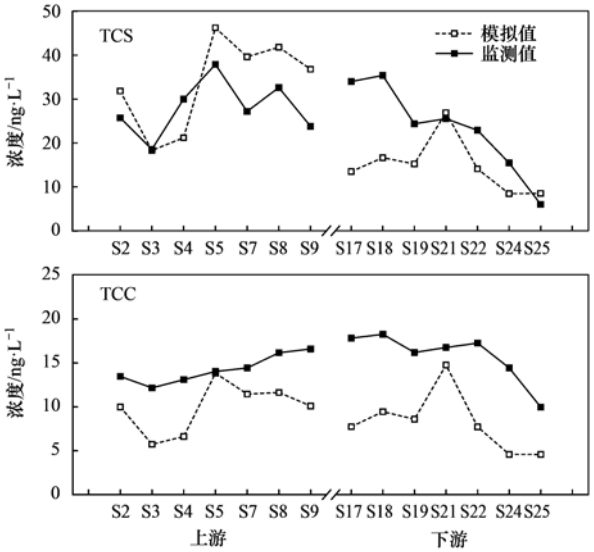

图 3 石马河三氯生和三氯卡班的模拟浓度与监测浓度

Fig. 3 Simulated concentrations and measured concentrations of TCS and TCC in Shima River

为了进一步验证模拟结果与监测结果的差

异，本文计算了 TCS 和 TCC 的模拟浓度和对应监测浓度差异的对数值（logarithmic transformed differences，LTDs），并绘制了他们的频率分布曲线，如图 4 所示. 总体看来，所有预测浓度和监测浓度的差异值均在 0.5 个数量级以内，表明了很好的模拟结果[46]. 为了整体评价流域各点位模拟结果和监测数据的吻合程度，以反映模拟空间特征的准确性，本研究进一步计算了柯西不等式系数（Theil's inequality coefficient，TIC）[47]. 当 TIC 小于 0.5 时，表明模拟值与监测值吻合度较好[48]. 计算结果发现，TCS 和 TCC 的 TIC 分别为 0.20 和 0.27，远小于 0.5. 因此，无论是整体浓度比对，还是各个点位的拟合程度评价，本模型均表现出很好的模拟结果.

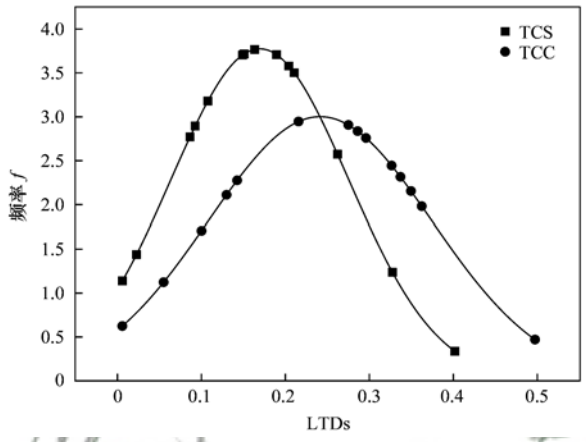

图 4　三氯生和三氯卡班模拟浓度与预测浓度差异取对数后的正态分布曲线

Fig. 4　Log-transformed distributions of observed and simulated concentrations

2.3　水体中典型杀生剂迁移的时空特征

TCS 和 TCC 经污水处理厂排出并进入河网后的 24 h 浓度变化如图 5 所示. 总体来看，石马河上游河段左支流（河段编号：1～8）仅有一个污水处理厂，污染物是单点源排放，24 h 河网逸度容量趋于饱和，污染物浓度随着距离增加逐渐减小. 右支流（河段编号：9～11）有多个污水处理厂，污染物呈现多点源排放，导致污染物的浓度随着距离增加而逐渐升高. 两条支流在河段 12 处交汇，使得污染物累积，而交汇后河道流量增大，污染物在河段 13 处浓度又迅速降低. 石马河下游河段（河段编号：17～24）的污染浓度从 1～24 h 呈现梯形缓慢升高趋势，每小时增长率约为 4%，且浓度最终尚未成为稳定值. 表明下游各河段在 24 h 内还未达到稳态，持续的杀生剂输入将进一步抬升这些河道中杀生剂的浓度. 这是由于下游区域除污水处理厂以外的其他排污口少，但河道水流量大（$>19.021\ m^3 \cdot s^{-1}$），杀生剂在水中的逸度阈值较其他区域较大，而下游河段杀生剂浓度仅受到其上游污水处理厂排放量的影响. 此外，从迁移距离和时间综合来看，两种杀生剂由 S16 点附近排入河道后迅速稀释，然后随着河水的流动迁移，浓度在距离其 8.7、15.6 和 21.0 km 分别降低了约 20%、30% 和 40%. 水中的吸附和降解等过程，是浓度降低的主要原因[2,41]. 相比之下，石马河上游水流量小（$<11.626\ m^3 \cdot s^{-1}$），TCS 和 TCC 的浓度经历了先上升而后下降的趋势，浓度在 20 h 左右已逐渐趋于稳定. 因此，对河网中典型杀生剂迁移的时空特征的评估，需在区别流量大小的前提下，分段和分时进行.

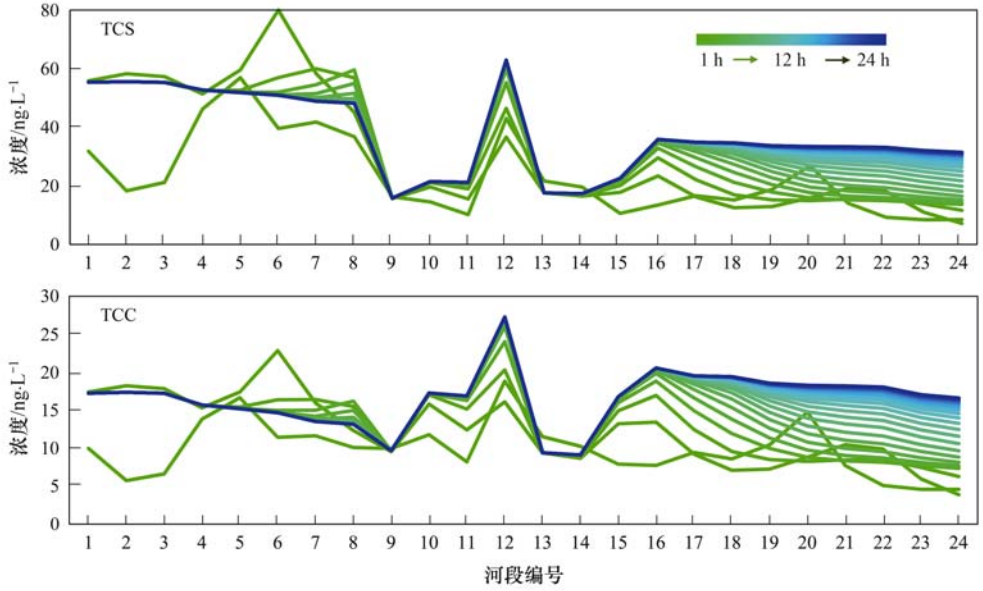

图 5　石马河三氯生和三氯卡班浓度的时空分布

Fig. 5　Temporal and spatial distribution of TCS and TCC concentrations in Shimahe River

3 结论

(1)本研究将一维水动力学模型和四级逸度模型进行有机耦合,解决了污染物在河网迁移过程中的时间和空间异质性问题,实现污染物的连续动态归趋模拟.将模拟浓度与监测浓度进行匹配验证,得到了满意的结果.

(2)对石马河河网中 TCS 和 TCC 的实地采样和监测发现,在新冠肺炎疫情期间,河网中两种物质的浓度较非疫情期间的监测值有明显的升高,增长了 1 倍以上.

(3)通过连续动态模型模拟,获得了 TCS 和 TCC 的不同时间和迁移距离的污染水平.从污水处理厂排出后,TCS 和 TCC 在河道中的浓度随着河流迁移的距离增大,呈现先升高后降低的趋势.而浓度的时间变化则受到流量大小的影响,上游低流量区域河网中杀生剂浓度先上升而后下降;下游高流量区污染浓度呈现梯形缓慢升高趋势.

参考文献:

[1] Halden R U, Lindeman A E, Aiello A E, *et al*. The florence statement on triclosan and triclocarban[J]. Environmental Health Perspectives, 2017, **125**(6), doi: 10.1289/EHP1788.

[2] Singer H, Müller S, Tixier C, *et al*. Triclosan: occurrence and fate of a widely used biocide in the aquatic environment: field measurements in wastewater treatment plants, surface waters, and lake sediments[J]. Environmental Science & Technology, 2002, **36**(23): 4998-5004.

[3] Chalew T E A, Halden R U. Environmental exposure of aquatic and terrestrial biota to triclosan and triclocarban[J]. Journal of the American Water Resources Association, 2009, **45**(1): 4-13.

[4] Ying G G, Kookana R S. Triclosan in wastewaters and biosolids from Australian wastewater treatment plants[J]. Environment International, 2007, **33**(2): 199-205.

[5] Kolpin D W, Furlong E T, Meyer M T, *et al*. Pharmaceuticals, hormones, and other organic wastewater contaminants in U. S. streams, 1999- 2000: a national reconnaissance [J]. Environmental Science & Technology, 2002, **36**(6): 1202-1211.

[6] Halden R U, Paull D H. Co-occurrence of triclocarban and triclosan in U. S. water resources[J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(6): 1420-1426.

[7] Zhao J L, Ying G G, Liu Y S, *et al*. Occurrence and risks of triclosan and triclocarban in the Pearl River system, South China: from source to the receiving environment[J]. Journal of Hazardous Materials, 2010, **179**(1-3): 215-222.

[8] Yang L H, Ying G G, Su H C, *et al*. Growth-inhibiting effects of 12 antibacterial agents and their mixtures on the freshwater microalga *Pseudokirchneriella subcapitata* [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2008, **27**(5): 1201-1208.

[9] Orvos D R, Versteeg D J, Inauen J, *et al*. Aquatic toxicity of triclosan[J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2002, **21**(7): 1338-1349.

[10] Heidler J, Sapkota A, Halden R U. Partitioning, persistence, and accumulation in digested sludge of the topical antiseptic triclocarban during wastewater treatment [J]. Environmental Science & Technology, 2006, **40**(11): 3634-3639.

[11] Drury B, Scott J, Rosi-Marshall E J, *et al*. Triclosan exposure increases triclosan resistance and influences taxonomic composition of benthic bacterial communities[J]. Environmental Science & Technology, 2013, **47**(15): 8923-8930.

[12] Zhao J L, Zhang Q Q, Chen F, *et al*. Evaluation of triclosan and triclocarban at river basin scale using monitoring and modeling tools: implications for controlling of urban domestic sewage discharge[J]. Water Research, 2013, **47**(1): 395-405.

[13] Wang C, Feng Y J, Zhao S S, *et al*. A dynamic contaminant fate model of organic compound: a case study of Nitrobenzene pollution in Songhua River, China[J]. Chemosphere, 2012, **88**(1): 69-76.

[14] Zhang Q Q, Ying G G, Chen Z F, *et al*. Multimedia fate modeling and risk assessment of a commonly used azole fungicide climbazole at the river basin scale in China[J]. Science of the Total Environment, 2015, **520**: 39-48.

[15] Mackay D, Paterson S. Evaluating the multimedia fate of organic chemicals: a level Ⅲ fugacity model[J]. Environmental Science & Technology, 1991, **25**(3): 427-436.

[16] Kilic S G, Aral M M. A fugacity based continuous and dynamic fate and transport model for river networks and its application to Altamaha River[J]. Science of the Total Environment, 2009, **407**(12): 3855-3866.

[17] Warren C S, Mackay D, Bahadur N P, *et al*. A suite of multi-segment fugacity models describing the fate of organic contaminants in aquatic systems: application to the Rihand Reservoir, India[J]. Water Research, 2002, **36**(17): 4341-4355.

[18] Wang C, Feng Y J, Sun Q F, *et al*. A multimedia fate model to evaluate the fate of PAHs in Songhua River, China [J]. Environmental Pollution, 2012, **164**: 81-88.

[19] Gao L, Li S H, Wang Z W, *et al*. Contamination, potential mobility, and origins of lead in sediment cores from the Shima River, south China[J]. Environmental Pollution, 2018, **242**: 1128-1136.

[20] 李燕, 贺灿飞, 朱彦刚. 我国劳动密集型产业地理分布研究[J]. 地理与地理信息科学, 2010, **26**(1): 66-72.
Li Y, He C F, Zhu Y G. An empirical research on the geographical distribution of labor-intensive industries in China [J]. Geography and Geo-Information Science, 2010, **26**(1): 66-72.

[21] Chen Z F, Ying G G, Liu Y S, *et al*. Triclosan as a surrogate for household biocides: an investigation into biocides in aquatic environments of a highly urbanized region[J]. Water Research, 2014, **58**: 269-279.

[22] 广东省统计局. 广东统计年鉴2019-2020[M]. 北京: 中国统计出版社, 2019-2020.

[23] Chen Z F, Ying G G, Lai H J, *et al*. Determination of biocides in different environmental matrices by use of ultra-high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2012, **404**(10): 3175-3188.

[24] Dong F, Mi C X, Hupfer M, *et al*. Assessing vertical diffusion in a stratified lake using a three-dimensional hydrodynamic model [J]. Hydrological Processes, 2020, **34**(5): 1131-1143.

[25] Gessler D, Hall B, Spasojevic M, *et al*. Application of 3D mobile bed, hydrodynamic model [J]. Journal of Hydraulic Engineering, 1999, **125**(7): 737-749.

[26] Yu C S, Duan J. Two-dimensional hydrodynamic model for

surface-flow routing [J]. Journal of Hydraulic Engineering, 2014, **140**(9), doi: 10.1061/(ASCE)HY.1943-7900.0000913.

[27] Zhu F F, Huang W R, Cai Y, *et al*. Development of a river hydrodynamic model for studying surface-ground water interactions affected by climate change in Heihe River, China [J]. Journal of Coastal Research, 2014, **68**(S1): 129-135.

[28] Zhang X Q, Bao W M, Qu S M, *et al*. One-dimensional hydrodynamic model accounting for tidal effect [J]. Hydrology Research, 2012, **43**(1-2): 113-122.

[29] 张少轩, 张冰, 张芊芊, 等. 化学品环境归趋模型及应用 [J]. 环境化学, 2019, **38**(8): 1684-1707.
Zhang S X, Zhang B, Zhang Q Q, *et al*. Chemical environmental fate models and their applications[J]. Environmental Chemistry, 2019, **38**(8): 1684-1707.

[30] Yu H Y, Zhang B Z, Giesy J P, *et al*. Persistent halogenated compounds in aquaculture environments of South China: implications for global consumers' health risk via fish consumption [J]. Environment International, 2011, **37**(7): 1190-1195.

[31] Zhang Q Q, Zhao J L, Liu Y S, *et al*. Multimedia modeling of the fate of triclosan and triclocarban in the Dongjiang River Basin, South China and comparison with field data [J]. Environmental Science: Processes & Impacts, 2013, **15**(11): 2142-2152.

[32] Bock M, Lyndall J, Barber T, *et al*. Erratum: probabilistic application of a fugacity model to predict triclosan fate during wastewater treatment[J]. Integrated Environmental Assessment and Management, 2010, **6**(4): 393-404.

[33] Liu G Q, Zhang G, Li X D, *et al*. Sedimentary record of polycyclic aromatic hydrocarbons in a sediment core from the Pearl River Estuary, South China[J]. Marine Pollution Bulletin, 2005, **51**(8-12): 912-921.

[34] Meylan W M, Howard P H. Computer estimation of the Atmospheric gas-phase reaction rate of organic compounds with hydroxyl radicals and ozone[J]. Chemosphere, 1993, **26**(12): 2293-2299.

[35] Reiss R, Mackay N, Habig C, *et al*. An ecological risk assessment for triclosan in lotic systems following discharge from wastewater treatment plants in the United States [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2002, **21**(11): 2483-2492.

[36] Ying G G, Yu X Y, Kookana R S. Biological degradation of triclocarban and triclosan in a soil under aerobic and anaerobic conditions and comparison with environmental fate modelling[J]. Environmental Pollution, 2007, **150**(3): 300-305.

[37] Liu W C, Liu S Y, Hsu M H, *et al*. Water quality modeling to determine minimum instream flow for fish survival in tidal rivers [J]. Journal of Environmental Management, 2005, **76**(4): 293-308.

[38] Krause P, Boyle D P, Bäse F. Comparison of different efficiency criteria for hydrological model assessment [J]. Advances in Geosciences, 2005, **5**: 89-97.

[39] Wang C, Feng Y J, Gao P, *et al*. Simulation and prediction of phenolic compounds fate in Songhua River, China[J]. Science of the Total Environment, 2012, **431**: 366-374.

[40] Moriasi D N, Arnold J G, Van Liew M W, *et al*. Model evaluation guidelines for systematic quantification of accuracy in watershed simulations[J]. Transactions of the ASABE, 2007, **50**(3): 885-900.

[41] Zhang Q Q, Ying G G, Chen Z F, *et al*. Basin-scale emission and multimedia fate of triclosan in whole China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2015, **22**(13): 10130-10143.

[42] 深圳市宝安区观澜污水处理厂[J]. 特区经济, 2007, (9): 323.

[43] Liu W R, Yang Y Y, Liu Y S, *et al*. Biocides in the river system of a highly urbanized region: a systematic investigation involving runoff input[J]. Science of the Total Environment, 2018, **624**: 1023-1030.

[44] FDA News Release. FDA issues final rule on safety and effectiveness of antibacterial soaps[EB/OL]. http://www.fda.gov/NewsEvents/Newsroom/PressAnnouncements/ucm517478.htm, 2016-09-02.

[45] 北京晨报. 牙膏大牌回应安全质疑 高露洁已停产三氯生牙膏[EB/OL]. http://www.chinadaily.com.cn/dfpd/jingji/2011-09/07/content_13637282.htm, 2011-09-07.

[46] Cao H Y, Tao S, Xu F L, *et al*. Multimedia fate model for hexachlorocyclohexane in Tianjin, China [J]. Environmental Science & Technology, 2004, **38**(7): 2126-2132.

[47] Bliemel F. Theil's forecast accuracy coefficient: a clarification [J]. Journal of Marketing Research, 1973, **10**(4): 444-446.

[48] Min F Y, Yang M, Wang Z C. Knowledge-based method for the validation of complex simulation models [J]. Simulation Modelling Practice and Theory, 2010, **18**(5): 500-515.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 42 No. 7

Jul. 15, 2021

CONTENTS

Transmission of Coronavirus via Aerosols and Influence of Environmental Conditions on Its Transmission ····· LI Xue, JIANG Jing-kun, WANG Dong-bin, *et al.* (3091)

Impacts of Meteorology and Emission Variations on $PM_{2.5}$ Concentration Throughout the Country During the 2020 Epidemic Period ····· LU Shi-ze, SHI Xu-rong, XUE Wen-bo, *et al.* (3099)

Factors and Their Interaction Effects on the Distribution of $PM_{2.5}$ in the Yangtze River Delta Based on Grids ····· HUANG Xiao-gang, ZHAO Jing-bo, XIN Wei-dong (3107)

Application of ARIMA Model for Mid- and Long-term Forecasting of Ozone Concentration ····· LI Ying-ruo, HAN Ting-ting, WANG Jun-xia, *et al.* (3118)

Pollution Characteristics and Sources of Wintertime Atmospheric Brown Carbon at a Background Site of the Yangtze River Delta Region in China ····· ZHAO Yu, WU Can, WANG Yi-qian, *et al.* (3127)

Spatio-temporal Variation Characteristics Monitored by Remotely Sensed Technique of $PM_{2.5}$ Concentration and Its Influencing Factor Analysis in Sichuan Basin, China ····· LI Meng-zhen, ZHANG Ting-bin, YI Gui-hua, *et al.* (3136)

Construction of Continuous Dynamic Model for River Networks and Its Application in Simulation of Spatiotemporal Migration of Typical Biocides ····· XING Cheng, ZHANG Qian-qian, CAI Ya-ya, *et al.* (3147)

Response of Riverine Nitrogen Exports to Land Use Pattern and Hydrological Regime in the Jiulong River Watershed ····· HUANG Ya-ling, HUANG Jin-liang (3156)

Correlation Between Microplastics Pollution and Eutrophication in the Near Shore Waters of Dianchi Lake ····· YUAN Hai-ying, HOU Lei, LIANG Qi-bin, *et al.* (3166)

Analysis of Water Quality and Exchange Flux of Interstitial Water-Overlying Water in Sediments of Baiyangdian Entrance Area in Summer ····· ZHANG Tian-na, ZHOU Shi-lei, CHEN Zhao-ying, *et al.* (3176)

Distribution Characteristics and Pollution Evaluation of Nitrogen and Organic Matter in Overlying Water and Sediment of Guyun River and Jinshan Lake in Zhenjiang City ····· YUAN Lu-bin, XING Shu-yu, LIU Xin, *et al.* (3186)

Spatial Distribution Characteristics of Phosphorus Fractions and Release Risk in Sediments of Honghu International Importance Wetland ····· LIU Yong-jiu, HUANG Su-zhen, ZHANG Lu, *et al.* (3198)

Pollution Distribution and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in River Sediments from the Ancient Town of Suzhou ····· BAI Dong-rui, ZHANG Tao, BAO Jun-song, *et al.* (3206)

Spatio-temporal Distribution Characteristic and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils Around Centralized Drinking Water Sources in Wuhan ····· ZHU Jing, HOU Yao-zong, ZOU Shu-cheng, *et al.* (3215)

Hydro-chemical Characteristics and Ion Origin Analysis of Surface Groundwater at the Shengjin Lake and Yangtze River Interface ····· CUI Yu-huan, WANG Jie, LIU You-cun, *et al.* (3223)

Identifying the Sources of Groudwater NO_3^--N in Agricultural Region of Qingdao ····· KOU Xin-yue, DING Jun-jun, LI Yu-zhong, *et al.* (3232)

Analysis of Phytoplankton Community Stability and Influencing Factors in a Tributary of the Three Gorges Reservoir ····· HE Shu-han, OUYANG Tian, ZHAO Lu, *et al.* (3242)

Distribution Characteristics and Influencing Factors of Phytoplankton Community in Harbin Urban River Network During Wet Season ····· LU Feng, LI Lei, QI Qing-song, *et al.* (3253)

Response of Microbial Community to Natural Organic Matter Input in Lake Sediments ····· JU Qi, ZHANG Qi, CAO Chi-cheng, *et al.* (3263)

Effects of Water Supply Quality and Social Activity on the Microbial Community in Baiyangdian Wetland ····· ZHAO Zhi-rui, WU Hui-qing, BI Yu-fang, *et al.* (3272)

Characteristics of Dissolved Organic Matter in Overlying Water During Algal Bloom Decay ····· LI Xiang, LI Zhi-chun, WANG Xuan, *et al.* (3281)

Water Pollution Characteristics and Source Apportionment in Rapid Urbanization Region of the Lower Yangtze River: Considering the Qinhuai River Catchment ····· MA Xiao-xue, GONG Chang, GUO Jia-xun, *et al.* (3291)

Contamination Characteristics of Surface Runoff in Densely Populated Areas in Downstream Yangtze River, China ····· GUO Wen-jing, ZHANG Zhi-yong, WEN Xue-zheng, *et al.* (3304)

Characteristics of Pollutant Dynamics Under Rainfall-Runoff Events in the Chaohe River Watershed ····· BAO Xin, JIANG Yan, HU Yu-cong (3316)

Influence of Impervious Surface Roughness on Accumulation and Erosion of Urban Non-Point Source Particles ····· SHAN Xi-huan, XIE Wen-xia, LIAO Yun-jie, *et al.* (3328)

Probabilistic Risk Assessment of Arsenic Exposure Through Drinking Water Intake in Chinese Residents ····· QIN Ning, LIU Yun-wei, HOU Rong, *et al.* (3338)

Removal Behavior of Protein-like Dissolved Organic Matter During Different Water Treatment Processes in Full-Scale Drinking Water Treatment Plants ····· LI Meng-ya, SONG Yu-ying, ZHANG Xiao-lan, *et al.* (3348)

Distribution of Heavy Metals and Their Corresponding Nanoparticles in Different Treatment Unit Processes in the Sewage Treatment Plant ····· WANG Du-jia, HE Shuai, ZHOU Xiao-xia (3358)

Metagenomic Analysis of Resistance Genes in Membrane Cleaning Sludge ····· DU Cai-li, LI Zhong-hong, LI Xiao-guang, *et al.* (3366)

Distribution and Removal of Antibiotic-Resistant Bacteria and Antibiotic Resistance Genes in Petrochemical Wastewater Treatment Plants ····· TANG Zhen-ping, XIAO Sha-sha, DUAN Yi, *et al.* (3375)

Treatment of Medium Ammonium Wastewater by Single-stage Partial Nitritation-ANAMMOX SMBBR ····· LÜ Kai, SHAO Xian-ming, WANG Kang-zhou, *et al.* (3385)

Two-Stage Denitrification Process Performance with Solid Slow-Release Carbon Source ····· TANG Yi, MA Yong-wen, WAN Jin-quan, *et al.* (3392)

Effect of Ozone Dosage on Sludge Settleability and Biological Nutrient Removal in SBR System ····· LÜ Yong-tao, ZHU Chuan-shou, ZHANG Xu-yang, *et al.* (3400)

First Extended Anaerobic Phase Enhanced Nitrogen and Phosphorus Removal by Aerobic Granular Sludge Under Intermittent Gradient Aeration ····· ZHANG Yu-jun, LI Dong, WANG Xin-xin, *et al.* (3405)

Effect of Rate of Salinity Increase on the Performance and Microbial Community Structure of Sequencing Batch Reactors ····· GU Bai-ming, JIN Chun-ji, WEN Chun, *et al.* (3413)

Effects of Cold Acclimation on the Activity of Autotrophic Nitrogen Removal in Granular Sludge and Its Bacterial Population Structure ····· QIAN Fei-yue, LIU Yu-xin, WANG Jian-fang, *et al.* (3422)

Stabilization of Heavy Metals in Municipal Sludge Using a Slag-Based Modifying Agent ····· ZHANG Fa-wen, DONG Ming-kun, CHEN Chen-hui, *et al.* (3430)

Role of Land Use Changes on Ammonia Emissions from Agricultural Ecosystems in the Yangtze River Delta Region from 2000 to 2018 ····· WANG Wen-jin, WANG Qing, ZHU An-sheng, *et al.* (3442)

Effects of Wheat Straw Hydrochar and Its Modified Product on Rice Yield and Ammonia Volatilization from Paddy Fields ····· HAN Chen, HOU Peng-fu, XUE Li-hong, *et al.* (3451)

Effects of Water and Fertilization Management on CH_4 and N_2O Emissions in Double-rice Paddy Fields in Tropical Regions ····· LI Jin-qiu, SHAO Xiao-hui, GOU Guang-lin, *et al.* (3458)

Community Characteristics of Methanogens and Methanogenic Pathways in Salt-tolerant Rice Soil ····· YANG Yu-hong, HE Hui, MI Tie-zhu, *et al.* (3472)

Effect of Ferric-carbon Micro-electrolysis on Greenhouse Gas Emissions from Constructed Wetlands ····· ZHAO Zhong-jing, HAO Qing-ju, TU Ting-ting, *et al.* (3482)

Screening and Evaluation of Methods for Determining Available Lead (Pb) and Cadmium (Cd) in Farmland Soil ····· CHEN Ying, LIU Han-yi, LIU Na, *et al.* (3494)

Spatial Distribution Trends and Influencing Factors of Typical Heavy Metals in Subtropical Alpine Forest Soils: A Case Study from Ailao Mountain in Yunnan Province ····· LIU Xu, WANG Xun, WANG Ding-yong (3507)

Environmental Background Values of Heavy Metals and Physicochemical Properties in Different Soils in Shenzhen ····· LIN Ting, ZHAO Shu-hua, XI Xiu-ping, *et al.* (3518)

Screening of Amendments for Simultaneous Cd and As Immobilization in Soil ····· ZHOU Si-jiang, LIU Zhen-yan, XIONG Shuang-lian, *et al.* (3527)

Simultaneous Immobilization of Arsenic, Lead, and Cadmium in Paddy Soils Using Two Iron-based Materials ····· YUAN Feng, TANG Xian-jin, WU Ji-zi, *et al.* (3535)

Pollution Characteristics of Organophosphate Esters in Frozen Soil on the Eastern Edge of Qinghai-Tibet Plateau ····· LIU Li-ya, YIN Hong-ling, JIAN Lin-jie, *et al.* (3549)

Analysis of Spatial Distribution and Influencing Factors of Nitrogen and Phosphorus Fertilizer Application Intensity in Chengdu Plain ····· LIU Qi-xin, WANG Chang-quan, LI Bing, *et al.* (3555)

Different Responses of Soil Dissolved Organic Matter to Different Types of Compost ····· XI Bei-dou, WANG Yan, TAN Wen-bing, *et al.* (3565)