

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第34卷 第1期

Vol.34 No.1

**2013**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

长三角背景地区秋冬季节大气气态总汞含量特征研究 ..... 窦红颖,王书肖,王龙,张磊,郝吉明(1)

厦门城区大气颗粒物 PM<sub>10</sub> 中有机酸源谱特征分析 ..... 杨冰玉,黄星星,郑桢,刘碧莲,吴水正(8)

兴隆大气气溶胶中水溶性无机离子分析 ..... 李杏茹,宋爱利,王英锋,孙颖,刘子锐,王跃思(15)

气相组分对氨吸收同步脱除模拟烟气 SO<sub>2</sub> 和 NO<sub>x</sub> 的影响 ..... 王鸿,朱天乐,王美艳(21)

麦秸全量还田下太湖地区两种典型水稻土稻季氨挥发特性比较 ..... 汪军,王德建,张刚,王远(27)

单光子/光电子在线质谱实时分析聚氯乙烯热分解/燃烧产物 ..... 陈文东,侯可勇,陈平,李芳龙,赵无垠,崔华鹏,花磊,谢园园,李海洋(34)

碱性活性炭表面特征及其吸附甲烷的研究 ..... 张梦竹,李琳,刘俊新,孙永军,李国滨(39)

夏季黄渤海表层海水中二甲亚砜(DMSO)的浓度分布 ..... 王敏,张洪海,杨桂朋(45)

2010年秋季长江口口外海域 CDOM 的三维荧光光谱-平行因子分析 ..... 闫丽红,陈学君,苏荣国,韩秀荣,张传松,石晓勇(51)

基于集合均方根滤波的太湖叶绿素 a 浓度估算与预测 ..... 李渊,李云梅,王桥,张卓,郭飞,吕恒,毕坤,黄昌春,郭宇龙(61)

基于 HJ1A-CCD 数据的高光谱影像重构研究 ..... 郭宇龙,李云梅,朱利,徐德强,李渊,檀静,周莉,刘阁(69)

重庆雪玉洞岩溶地下河地球化学敏感性研究 ..... 徐尚全,杨平恒,殷建军,毛海红,王鹏,周小萍(77)

区域点源和非点源磷入河量计算的二元统计模型 ..... 陈丁江,孙嗣畅,贾颖娜,陈佳勃,吕军(84)

秦淮河典型河段总氮总磷时空变异特征 ..... 李跃飞,夏永秋,李晓波,熊正琴,颜晓元(91)

湘江沉积物镉和汞质量基准的建立及其应用 ..... 蒋博峰,桑磊鑫,孙卫玲,郝伟,李丽,邓宝山(98)

丹江口水库迁建区土壤重金属分布及污染评价 ..... 张雷,秦延文,郑丙辉,时瑶,韩超男(108)

汾河水库周边土壤重金属含量与空间分布 ..... 李晋昌,张红,石伟(116)

黄河下游引黄灌区地下水重金属分布及健康风险评估 ..... 张妍,李发东,欧阳竹,赵广帅,李静,柳强(121)

胶州湾、套子湾及四十里湾表层沉积物中有机氯农药的含量和分布特征 ..... 刘艺凯,钟广财,唐建辉,潘晓辉,田崇国,陈颖军(129)

基于干扰梯度的钦江流域底栖动物完整性指数候选参数筛选 ..... 卢东琪,张勇,蔡德所,刘朔孺,陈燕海,王备新(137)

海洋细菌 *Marinobacter adhaerens* HY-3 分离鉴定及对中肋骨条藻的化感作用 ..... 王洪斌,陈文慧,李信书,李士虎,阎斌伦(145)

水稻秸秆浸泡液对铜绿微囊藻生理特性的影响 ..... 苏文,孔繁翔,于洋,贾育红,张民(150)

化感物质肉桂酸乙酯对蛋白核小球藻生长及生理特性的影响 ..... 高李李,郭沛涌,苏光明,魏燕芳(156)

无负压供水模式下管网水力模拟与安全评价分析 ..... 王欢欢,刘书明,姜帅,孟凡琳,白璐(163)

天然有机物的相对分子量分布及亲疏水性对微滤膜组合工艺中膜污染的影响 ..... 胡孟柳,林洁,许光红,董秉直(169)

不同基质条件下透性处理对脱硫弧菌硫酸盐还原活性的影响 ..... 徐慧伟,张旭,李立明,郑光洁,李广贺(177)

基于零价铁的双金属体系对六氯苯还原脱氯研究 ..... 曾宪委,刘建国,聂小琴(182)

负载型 TiO<sub>2</sub> 光电催化降解孔雀石绿的动力学研究 ..... 张小娜,周少奇,周晓(188)

污水厂微孔曝气系统工况下充氧性能测试与分析 ..... 吴媛媛,周小红,施汉昌,邱勇(194)

微气泡及其产生方式对活性污泥混合液性质的影响 ..... 刘春,马锦,张磊,张静,张明,吴根(198)

不同氮浓度冲击对颗粒污泥脱氮过程中 N<sub>2</sub>O 产生量的影响 ..... 韩雪,高大文(204)

模拟电镀污泥重金属浸出液对氧化亚铁硫杆菌活性的影响 ..... 谢鑫源,孙培德,楼菊青,郭茂新,马王钢(209)

嗜麦芽窄食单胞菌对铜镉的吸附特性与离子交换 ..... 白洁琼,尹华,叶锦韶,彭辉,唐立栲,何宝燕,李跃鹏(217)

阴离子表面活性剂改性水滑石吸附硝基苯的特性研究 ..... 夏燕,朱润良,陶奇,刘汉阳(226)

活性氧化铝对水中磷的去除与回收研究 ..... 孟文娜,谢杰,吴德意,张振家,孔海南(231)

北京城区可吸入颗粒物分布与呼吸系统疾病相关分析 ..... 杨维,赵文吉,官兆宁,赵文慧,唐涛(237)

北京市市售鸡蛋和鸭蛋中全氟化合物的污染水平研究 ..... 齐彦杰,周珍,史亚利,孟昭福(244)

北京市场常见淡水食用鱼体内农药残留水平调查及健康风险评估 ..... 千志勇,金芬,孙景芳,原盛广,郑蓓,张文婧,安伟,杨敏(251)

多效应残差法(MERA)表征二甲亚砜-农药二元混合物毒性相互作用 ..... 霍向晨,刘树深,张晶,张瑾(257)

利用 DGGE-菌落原位杂交法分离土壤中精喹禾灵降解菌 ..... 吕欣,彭霞薇,呼庆,马安周,江泽平,魏远(263)

不同白腐真菌复配方式对产酶的影响 ..... 孟瑶,梁红,高大文(271)

不同施肥措施对土壤活性有机碳的影响 ..... 张瑞,张贵龙,姬艳艳,李刚,常泓,杨殿林(277)

垦殖对湿地土壤有机碳垂直分布及可溶性有机碳截留的影响 ..... 霍莉莉,邹元春,郭佳伟,吕宪国(283)

黄河三角洲碱蓬湿地土壤有机碳及其组分分布特征 ..... 董洪芳,于君宝,管博(288)

丘陵林地土壤酸化改良剂的集中施用-自然扩散修复技术研究 ..... 方熊,刘菊秀,尹光彩,赵亮,刘世忠,褚国伟,李义勇(293)

重度滴滴涕污染土壤低温等离子体修复条件优化研究 ..... 陈海红,骆永明,滕应,刘五星,潘澄,李振高,黄玉娟(302)

无定形 Fe(OH)<sub>3</sub> 和 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 共沉淀态 As 的化学提取 ..... 陈义萍,王少锋,贾永锋(308)

铝和锰对外生菌根真菌生长、养分吸收及分泌作用的影响 ..... 李华,黄建国,袁玲(315)

污泥和餐厨垃圾联合干法中温厌氧消化性能研究 ..... 段妮娜,董滨,李江华,戴翎翎,戴晓虎(321)

高比表面生物质炭的制备、表征及吸附性能 ..... 李坤权,李焯,郑正,桑大志(328)

基于情景分析的浙江沿海地区环境污染防治战略研究 ..... 田金平,陈吕军,杜鹏飞,钱易(336)

微生物全细胞传感器在重金属生物可利用度监测中的研究进展 ..... 侯启会,马安周,庄绪亮,庄国强(347)

**2012 城市生态学术研讨会会议论文**

北京市城乡环境梯度下街尘中重金属污染特征 ..... 何小艳,顾培,李叙勇,赵洪涛(357)

北京市道路灰尘中污染物含量沿城乡梯度、道路密度梯度的变化特征 ..... 唐荣莉,马克明,张育新,毛齐正(364)

北京城市典型下垫面降雨径流污染初始冲刷效应分析 ..... 任玉芬,王效科,欧阳志云,侯培强(373)

洋河流域张家口段河流水质演化及驱动因子分析 ..... 虎博,王铁宇,吕永龙,杜立宇,罗维(379)

低碳交通电动汽车减排潜力及其影响因素分析 ..... 施晓清,李笑诺,杨建新(385)

北京市社区生活垃圾分类收集实效调查及其长效管理机制研究 ..... 邓俊,徐琬莹,周传斌(395)

人工湿地在应用中存在的问题及解决措施 ..... 黄锦楼,陈琴,许连煌(401)

《环境科学》征订启事(26) 《环境科学》征稿简则(68) 信息(76,144,301,400) 专辑征稿通知(394)

# 北京市市售鸡蛋和鸭蛋中全氟化合物的污染水平研究

齐彦杰<sup>1,2</sup>, 周珍<sup>2</sup>, 史亚利<sup>2</sup>, 孟昭福<sup>1\*</sup>

(1. 西北农林科技大学资源环境学院, 杨凌 712100; 2. 中国科学院生态环境研究中心环境化学与生态毒理学国家重点实验室, 北京 100085)

**摘要:** 研究了北京市市售蛋类中全氟化合物的污染水平. 分别对 14 个主要蛋类批发市场中 59 个摊位的鸡蛋和鸭蛋进行了样品采集, 采用高效液相色谱-串联质谱法 (HPLC-MS/MS) 对 17 种全氟化合物 (11 种全氟羧酸盐、3 种全氟磺酸盐、1 种全氟磺酰胺和 2 种氟化调聚酸) 进行了系统性分析. 结果表明北京市市售鸡蛋和鸭蛋样品中均存在一定浓度的全氟化合物污染, 其中鸡蛋中共检出 9 种全氟化合物, 以全氟壬酸 (PFNA)、全氟庚酸 (PFHpA) 和全氟辛酸 (PFOA) 为主, 平均含量分别为 0.105、0.073 和 0.069  $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ; 鸭蛋中共检出 10 种全氟化合物, 以全氟辛烷磺酸 (PFOS) 和 PFOA 为主, 平均含量分别为 0.378  $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$  和 0.296  $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ . 鸡蛋和鸭蛋中均未检出全氟戊酸 (PFPeA)、全氟十四酸 (PFTA)、全氟丁烷磺酸 (PFBS) 和 8:2 饱和调聚酸 (FOEA). 鸭蛋中总 PFCs 约是鸡蛋的 3.4 倍. 鸡蛋中 PFNA 和 PFHpA 之间 ( $r=0.954$ ) 以及鸭蛋中全氟十一酸 (PFUnDA) 和全氟十三酸 (PFTrDA) 之间 ( $r=0.915$ ) 均存在较强的正相关性. 对人体健康风险评价结果显示, 北京市市售鸡蛋和鸭蛋中 PFOS 和 PFOA 污染水平不会对北京市居民产生即时危害.

**关键词:** 鸡蛋; 鸭蛋; 全氟化合物; 高效液相色谱-串联质谱法; 污染水平

中图分类号: X836 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2013)01-0244-07

## Pollution Levels of Perfluorochemicals in Chicken Eggs and Duck Eggs from the Markets in Beijing

QI Yan-jie<sup>1,2</sup>, ZHOU Zhen<sup>2</sup>, SHI Ya-li<sup>2</sup>, MENG Zhao-fu<sup>1</sup>

(1. College of Resources and Environment, Northwest A & F University, Yangling 712100, China; 2. State Key Laboratory of Environmental Chemistry and Ecotoxicology, Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China)

**Abstract:** Pollution levels of perfluorochemicals in eggs purchased from the markets in Beijing had been investigated. The egg samples of chicken and duck were collected from the 59 stalls of 14 main eggs wholesale markets in Beijing, respectively. Systematic analyses were made for seventeen kinds of perfluorochemicals (11 perfluorinated carboxylates (PFCAs), 3 perfluorinated sulfonates (PFSAs), perfluorooctane sulfonamide (FOSA), 2-perfluorooctylethanoic acid (FOEA) and 2H-perfluoro-2-decenoic acid (FOUEA) by a high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (HPLC-MS/MS). The results showed that there was a certain perfluorochemical contamination in all egg samples. Nine kinds of perfluorochemicals were detected in chicken eggs, perfluorononanoic acid (PFNA), perfluoroheptanoic acid (PFHpA) and perfluorooctanoate acid (PFOA) are dominant, and their average concentrations were 0.105, 0.073 and 0.069  $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ , respectively. Ten kinds of perfluorochemicals were detected in the duck eggs, perfluorooctane sulfonate (PFOS) and PFOA are dominant, and their average concentrations were 0.378 and 0.296  $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ , respectively. Perfluoropentanoic acid (PFPeA), perfluorotetradecanoic acid (PFTA), perfluorobutane sulfonate (PFBS) and 2-perfluorooctylethanoic acid (FOEA) were not detected in all samples. The total concentration of PFCs in the duck eggs was 3.4 times of that in the chicken eggs. A strong positive correlation ( $r=0.954$ ) was not only observed between of PFNA and PFHpA in chicken eggs, but also found between perfluoroundecanoic acid (PFUnDA) and perfluorotridecanoic acid (PFTrDA) in duck eggs ( $r=0.915$ ). The results of health-based risk assessment showed that there was little immediate risk of exposure to PFOS and PFOA via the consumption of chicken eggs and duck eggs purchased from the markets in Beijing.

**Key words:** chicken eggs; duck eggs; perfluorinated compounds; high performance liquid chromatography tandem mass spectrometry (HPLC-MS/MS); pollution levels

全氟化合物是一类新型含氟有机化合物, 具有非常独特的疏水疏油等物理化学性质. 由于具有极高键能的碳氟键 (键能达  $480.3 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ ), 全氟化合物具有很高的化学稳定性和生物惰性, 因而难以光解、水解及生物降解, 可在环境中持久存在, 且具有较强的生物蓄积性. 自 20 世纪 50 年代美国 3M 公司首次将电化学氟化法应用于全氟化合物的制备

以来, 全氟化合物被大量生产, 广泛应用于工业及人们的日常生活消费品中<sup>[1]</sup>. 大量研究表明, 全氟化

收稿日期: 2012-03-20; 修订日期: 2012-04-29

基金项目: 环境保护公益性行业科研专项 (201009026-03); 国家自然科学基金重点项目 (20837003); 国家自然科学基金重大项目 (20890111)

作者简介: 齐彦杰 (1987 ~ ), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为环境生物工程, E-mail: 3359236\_good@163.com

\* 通讯联系人, E-mail: zfmeng@126.com

合物会通过各种途径进入各环境介质,而且由于其大量生产和广泛应用,该类化合物已经成为全球性污染物.近年来,全氟化合物造成的环境污染问题以及对人体健康造成的危害已经引起了国际社会的高度关注.2009年5月,在瑞士日内瓦举行的第四届持久性有机污染物斯德哥尔摩大会缔约国会议上,全氟辛基磺酸及其盐类、全氟辛基磺酰氟作为新增持久性有机污染物被正式列入公约附件B中加以限制<sup>[2]</sup>.

目前,在全球范围内几乎所有的环境介质中均可检测到全氟化合物,如水体<sup>[3]</sup>、土壤<sup>[4]</sup>、大气<sup>[5]</sup>和尘埃<sup>[6]</sup>等,在不同地区的生物组织<sup>[7]</sup>和血液<sup>[8]</sup>以及人体血液<sup>[9]</sup>中也发现了全氟化合物,甚至在偏远的极地地区<sup>[10]</sup>也检测到了全氟化合物.毒理学研究发现,全氟化合物具有肝脏毒性、神经毒性、发育毒性和免疫毒性等,而且会通过食物链进行生物累积和放大<sup>[11]</sup>,因此处于食物链顶端的人类无疑将受到一定的潜在健康危害.

迄今,全氟化合物的相关研究较多地集中于其环境污染水平及迁移转化<sup>[12,13]</sup>、动物组织和血液<sup>[8]</sup>、人体血液<sup>[14]</sup>及其毒理效应<sup>[15]</sup>等方面,而对人体暴露途径、暴露水平及其风险等研究较少.已有研究认为,人体暴露于全氟化合物的途径主要有饮食摄入、饮用水、空气和室内灰尘吸入等,其中饮食摄入为最主要的暴露途径<sup>[16]</sup>.与大多数持久性有机污染物不同,全氟化合物更易与蛋白质结合,沉积在动物组织和血液蛋白中<sup>[2]</sup>,因此动物源性食品在全氟化合物的人体暴露中占有重要地位.已有的少量关于人体饮食暴露方面的研究主要关注食品包装<sup>[17]</sup>、肉制品<sup>[17]</sup>、奶制品<sup>[18]</sup>、海产品<sup>[19]</sup>等方面,对作为人体蛋白质摄入重要来源的蛋类食品研究较少<sup>[20]</sup>.与世界发达国家的研究相比,我国在全氟化合物人体暴露途径和水平方面的研究开展较晚,仅有一些零星的研究.如Zhang等<sup>[6]</sup>通过对中国15个省市中17个城市的肉类、蛋类及室内灰尘进行研究,评估了人体对全氟化合物的暴露源和途径,结果表明膳食是最主要的途径;Li等<sup>[21]</sup>研究了北京市高碑店某污水处理厂附近湖中5种食用鱼的血液,结果表明,PFOS平均浓度(5.74~64.2 ng·mL<sup>-1</sup>,湿重)均最高,但不会对人体健康造成直接危害.笔者也在采自北京市场的肉类<sup>[2]</sup>和奶制品<sup>[18]</sup>中检测到了轻微的全氟化合物污染,但其污染尚不会对人体构成健康危害.以上情况表明动物源性食品中确实普遍存在不同程度的全氟化合物污

染,进行其污染水平研究对正确认识和评估全氟化合物人体暴露水平和健康风险具有重要意义.

本研究将在已经进行的北京市全氟化合物肉类和奶类污染状况研究的基础上,通过对北京市重点大型批发市场的鸡蛋和鸭蛋进行采样分析,较全面了解全氟化合物污染水平,以期对全氟化合物暴露途径、暴露水平和健康风险提供数据支撑.

## 1 材料与方法

### 1.1 仪器与试剂

色谱系统选用P680二元梯度泵,UltiMate 3000自动进样器和Chromeleon 6.70色谱工作站(美国Dionex公司);分析柱为Acclaim 120 C<sub>18</sub>反相柱(3 μm,4.6 mm×150 mm)(美国Dionex公司).质谱检测采用API 3200三重四极杆串联质谱系统(MS/MS)(美国ABI),该检测器配有电喷雾离子化源(ESI),系统采用Analyst 1.4.2工作软件控制.

全氟丁酸(perfluorobutyric acid,PFBA)、全氟丁烷磺酸(perfluorobutane sulfonate,PFBS)、全氟戊酸(perfluoropentanoic acid,PFPeA)、全氟己酸(perfluorohexanoic acid,PFHxA)、全氟己烷磺酸(perfluorohexane sulfonate,PFHxS)、全氟庚酸(perfluoroheptanoic acid,PFHpA)、全氟辛酸(perfluorooctanoate acid,PFOA)、全氟辛烷磺酰胺(perfluorosulfonamide,FOSA)、全氟壬酸(perfluorononanoic acid,PFNA)、全氟癸酸(perfluorodecanoic acid,PFDA)、全氟十一酸(perfluoroundecanoic acid,PFUnDA)、全氟十二酸(perfluorododecanoic acid,PFDoDA)、全氟十三酸(perfluorotridecanoic acid,PFTrDA)、全氟十四酸(perfluorotetradecanoic acid,PFTA)、8:2饱和调聚酸(2-perfluorooctylethanoic acid,FOEA)、8:2不饱和调聚酸(2H-perfluoro-2-decenoic acid,FOUEA)和四丁基硫酸氢铵(TBA)均购自Alfa Aesar公司;内标物<sup>13</sup>C<sub>4</sub>-PFOS(sodium perfluoro-1-[1,2,3,4-<sup>13</sup>C<sub>4</sub>]octanesulfonate,MPFOS)和<sup>13</sup>C<sub>4</sub>-PFOA(perfluoron-[1,2,3,4-<sup>13</sup>C<sub>4</sub>]octanoic acid,MPFOA)均购自加拿大Wellington Laboratories;全氟辛烷磺酸(perfluorooctane sulfonate,PFOS)购自Sigma-Aldrich公司;甲醇(色谱纯)购自美国Fisher公司.

固相萃取柱Oasis WAX(Weak Anion Exchange,6cc,150 mg)购自Waters公司.

所用纯水均由Milli-Q Advantage A10系统(美国,Millipore)提供(电阻率为18.2 MΩ·cm<sup>-1</sup>).

## 1.2 样品采集与制备

2011年9月,分别对北京市14个大型蛋类批发市场中的59个摊位的鸡蛋和鸭蛋进行了样品采集,并将所采集的样品装入防压样品箱中运回实验室.将每个采样点8颗蛋的蛋液混匀,250 r·min<sup>-1</sup>振荡2 h;称取1 g于15 mL聚丙烯管中,-20℃冷藏备用.

## 1.3 样品前处理

鸡蛋和鸭蛋中全氟化合物的提取采用离子对液液萃取法.前处理过程如下:

向1 g蛋液混合样品中加入内标(2 ng MPFOS和2 ng MPFOA)、1 mL TBA(0.5 mol·L<sup>-1</sup>)和2 mL碳酸钠缓冲液(0.25 mol·L<sup>-1</sup>,pH=10),混匀;加入5 mL MTBE,250 r·min<sup>-1</sup>振荡20 min,3 500 r·min<sup>-1</sup>离心10 min,取上清液于相应编号的15 mL聚丙烯管中.向沉淀部分再次加入5 mL MTBE以相同方法再萃取两次,收集萃取液,氮吹至0.5 mL.12 000 r·min<sup>-1</sup>离心10 min,取上清液于50 mL PET瓶中,用去离子水稀释至50 mL,以1 d·s<sup>-1</sup>的速度过WAX萃取柱.WAX萃取柱使用前依次用4 mL氨水甲醇溶液(含0.5%的氨水)、4 mL甲醇和5 mL水进行活化.样品过柱后,用4 mL醋酸盐缓冲液(25 mmol·L<sup>-1</sup>,pH=4)、10 mL去离子水淋洗柱子.干燥后,依次用4 mL甲醇和4 mL氨水甲醇溶液(含

0.5%的氨水)洗脱.收集洗脱液,经氮气浓缩至1 mL以下,用甲醇定容至1 mL,16 000 r·min<sup>-1</sup>离心10 min,取上清液进样测定.

## 1.4 液相色谱与质谱条件

色谱条件:Dionex液相色谱系统,A相:氨水甲醇溶液(含0.1%的氨水),B相:NH<sub>4</sub>Ac溶液(50 mmol·L<sup>-1</sup>),二元梯度淋洗.流速:1 mL·min<sup>-1</sup>.进样量:10 μL.具体的色谱淋洗条件如下:0~4 min,28% B~5% B;4~7 min,5% B;7~10 min,5% B~28% B.

质谱条件:分析物经色谱分离后用质谱检测,采用电喷雾离子化源(ESI)负离子模式,以MRM方式扫描;气帘气0.17 MPa;碰撞气0.021 MPa;离子喷雾电压-2 000 V;温度400℃;离子源 Gas1,0.34 MPa; Gas2,0.28 MPa.

## 1.5 质量保证与质量控制

本研究以内标法定量.羧酸类及调聚酸以MPFOA定量,磺酸类及磺酰胺以MPFOS定量.标准曲线由9个不同浓度的标准溶液(0.05、0.1、0.2、0.5、1、2、5、20、50 ng·mL<sup>-1</sup>)绘制,线性相关系数均大于0.99,权重系数为1/x<sup>2</sup>.17种化合物的仪器检出限在0.018~0.176 ng·mL<sup>-1</sup>之间,蛋液混合样品中各种全氟化合物的加标回收率及方法检出限见表1.

表1 线性方程、线性系数、方法检出限、线性范围及加标回收率

分析物	内标	线性方程	线性系数	方法检出限 /ng·g <sup>-1</sup>	线性范围 /ng·mL <sup>-1</sup>	空白加标回收率/% 标准偏差/(n=3)	样品加标回收率/% 标准偏差/(n=3)
PFBA	MPFOA	$y = 1.45x + 0.124$	0.990 0	0.118	0.2~50	103±2	101±3
PFPeA	MPFOA	$y = 1.55x + 0.046$	0.998 3	0.026	0.05~50	93±2	103±1
PFHxA	MPFOA	$y = 0.926x + 0.002 96$	0.991 8	0.047	0.05~50	90±4	100±7
PFHpA	MPFOA	$y = 0.804x + 0.014 3$	0.995 1	0.033	0.05~50	97±7	102±5
PFOA	MPFOA	$y = 0.503x + 0.026 1$	0.993 7	0.077	0.1~50	96±2	99±1
PFNA	MPFOA	$y = 0.649x + 0.024 4$	0.991 7	0.018	0.05~50	98±2	94±3
PFDA	MPFOA	$y = 0.642x - 0.015 6$	0.994 0	0.077	0.1~50	97±9	100±4
PFUnDA	MPFOA	$y = 0.638x + 0.005 05$	0.993 4	0.022	0.05~50	88±2	102±7
PFDoA	MPFOA	$y = 0.306x + 0.01$	0.992 6	0.041	0.05~50	83±6	99±9
PFTTrA	MPFOA	$y = 0.585x + 0.010 6$	0.994 7	0.029	0.05~50	83±6	69±4
PFTA	MPFOA	$y = 0.494x + 0.013 4$	0.997 6	0.042	0.05~50	91±11	33±3
PFBS	MPFOS	$y = 0.749x + 0.010 3$	0.992 3	0.032	0.05~50	105±6	105±5
PFHxS	MPFOS	$y = 0.748x + 0.012 7$	0.991 4	0.030	0.1~50	94±13	95±2
PFOS	MPFOS	$y = 0.609x + 0.015 9$	0.995 8	0.061	0.1~50	97±3	99±2
FOSA	MPFOS	$y = 0.689x + 0.015 3$	0.995 9	0.019	0.05~50	84±9	91±2
FOUEA	MPFOA	$y = 0.35x + 0.041 5$	0.993 0	0.176	0.5~50	101±3	102±5
FOEA	MPFOA	$y = 0.067 7x - 4.32 \times 10^{-5}$	0.994 4	0.043	0.05~50	108±7	100±4

为了降低检测限及避免污染,研究中尽可能避免使用含有聚四氟乙烯材料及易于对全氟化合物发

生不可逆吸附的玻璃材质的色谱管路、器皿和耗材,色谱管路为PEAK塑料管路或不锈钢管路.所

有仪器在使用前均用甲醇清洗干净,每一批次样品加做一个方法空白,如果方法空白的浓度高于检出限,则需要重新处理分析样品。每检测 11 个样品进行一次标准作为质量控制,监测仪器信号的偏移;如果检测的仪器信号偏移原始信号的 20%,则重新制作标准进行定量。

### 1.6 数据分析

本研究全氟化合物含量均以湿重计,如果样品浓度低于检出限则计为 0。数据分析使用 PASW Statistics 18.0 (SPSS Inc., 2009) 软件,用 Pearson 相关分析法对检出的全氟化合物进行分析,显著性水平取  $\alpha = 0.05$ 。

### 1.7 人体健康风险评估

人体暴露于全氟化合物的健康风险需通过危害指数 (hazard ratios, HR) 进行,危害指数是居民对食品的平均日摄入量 (average daily intake, ADI) 与全氟化合物参考剂量值 (reference dose, RfD) 的比值<sup>[22]</sup>。目前除了 PFOS 和 PFOA 外,其他全氟化合物还没有标准参考剂量值,因此本文仅对人体暴露于 PFOS 和 PFOA 的健康风险进行评估。本研究利用 US EPA 规定的致癌因子及参考剂量来评价 PFOS 和 PFOA 对人群健康构成的潜在风险。

具体评价公式为:

$$\text{居民平均日摄入量 (ADI)} = \text{蛋类摄入量} [\text{g} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}, \text{湿重}] \times \text{PFOS/PFOA 的含量水平} (\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}, \text{湿重}) \quad (1)$$

$$\text{危害指数 (HR)} = \text{ADI/RfD} \quad (2)$$

式中,HR > 1,人体暴露污染物具有潜在健康风险;HR < 1,人体暴露污染的潜在健康风险较低。

## 2 结果与讨论

### 2.1 鸡蛋和鸭蛋中全氟化合物的污染水平和特征

北京市 14 个主要蛋类批发市场中 59 个摊位的鸡蛋和鸭蛋中全氟化合物污染水平见表 2。从中可知,鸡蛋中共检出 9 种全氟化合物,以 PFNA、PFHpA 和 PFOA 为主,含量范围分别为 ND ~ 0.644、ND ~ 0.435 和 ND ~ 0.978  $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ ,平均含量分别为 0.105、0.073 和 0.069  $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ ;鸭蛋中共检出 10 种全氟化合物,以 PFOS 和 PFOA 为主,含量范围分别为 ND ~ 1.290 和 ND ~ 0.843  $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ ,平均含量分别为 0.378  $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$  和 0.296  $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。鸡蛋中 FOSA、PFNA、PFHpA 和 PFOA 的检出率 ( $n = 59$ ) 较高,分别为 64%、51%、46% 和 41%,PFHxA、PFUnDA 和 FOUEA 的检出率均只有 2%;鸭蛋中全氟化合物检出率 ( $n = 9$ ) 总体要高于鸡蛋,以 PFNA、PFUnDA、PFOA、PFOS 和 PFDA 为主,检出率分别

表 2 鸡蛋和鸭蛋中检出全氟化合物的含量<sup>1)</sup>/ $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$

Table 2 Concentrations of perfluorinated compounds (PFCs) detected in chicken eggs and duck eggs/ $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$

组别	项目	PFBA	PFHxA	PFHpA	PFOA	PFNA	PFDA	PFUnDA
鸡蛋 ( $n = 59$ )	最大值	ND	1.656	0.435	0.978	0.644	ND	0.068
	最小值	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	平均值	ND	0.028	0.073	0.069	0.105	ND	0.001
	中位值	ND	ND	ND	ND	0.018	ND	ND
	检出率/%	0	2	46	41	51	0	2
鸭蛋 ( $n = 9$ )	最大值	0.160	ND	0.034	0.843	0.231	0.152	0.356
	最小值	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	平均值	0.032	ND	0.007	0.296	0.099	0.080	0.136
	中位值	ND	ND	ND	0.178	0.109	0.131	0.101
	检出率/%	22	0	22	67	89	56	78
组别	项目	PFDoDA	PFTTrDA	PFHxS	PFOS	FOSA	FOUEA	$\sum$ PFCs
鸡蛋 ( $n = 59$ )	最大值	ND	ND	0.159	0.171	0.053	0.060	2.273
	最小值	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0
	平均值	ND	ND	0.013	0.009	0.020	0.001	0.320
	中位值	ND	ND	ND	ND	0.024	ND	0.154
	检出率/%	0	0	15	10	64	2	68
鸭蛋 ( $n = 9$ )	最大值	0.060	0.132	0.205	1.290	ND	ND	1.925
	最小值	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0
	平均值	0.007	0.029	0.034	0.378	ND	ND	1.098
	中位值	ND	ND	ND	0.109	ND	ND	1.204
	检出率/%	11	22	33	67	0	0	100

1) ND (not detected) 表示未检出,PFPeA、PFTA、PFBS 和 FOEA 均未检出

为 89%、78%、67%、67% 和 56%，PFHxS、PFBA、PFHpA、PFTrDA 和 PFDoDA 的检出率在 11%~33% 之间。鸡蛋和鸭蛋中均未检出 PFPeA、PFTA、PFBS 和 FOEA。总体来讲，鸭蛋中  $\sum$  PFCs 约是鸡蛋的 3.4 倍。

对鸡蛋和鸭蛋中检出的全氟化合物含量分别进行 Pearson 相关分析发现，鸡蛋样品中 PFNA 和 PFHpA 之间和鸭蛋样品中 PFUnDA 和 PFTrDA 之间存在较强的正相关性， $r$  值分别为 0.954、0.915，表明它们可能有相同或者相似的污染来源。

迄今为止，生物体对全氟化合物的暴露途径多样并各有差别，但总体与人体类似，只是在膳食的种类与结构、生活习性、食物链等级和区域等方面可能会有很大的差异。在相同环境中，膳食应该是蛋鸡和蛋鸭暴露于全氟化合物的主要途径<sup>[23]</sup>。蛋鸡和蛋鸭饲料的主要成分是玉米、谷物、豆饼、鱼粉和肉骨粉等副产物，其饮食中的污染物可能来自这些成分。Zhang 等<sup>[3]</sup>和潘媛媛等<sup>[24]</sup>等在鱼和贝类等食品中均检测到了一定程度的全氟化合物污染。有报道食品包装<sup>[25]</sup>中也存在全氟化合物污染，因此，饲料包装也可能是蛋鸡和蛋鸭体内全氟化合物的污染源。在不同环境中，蛋鸡和蛋鸭对全氟化合物的暴露途径会有很多差异，关于饮用水<sup>[26]</sup>、空气及室内灰尘<sup>[6]</sup>中全氟化合物的污染已均有报道。鸭蛋中全氟化合物污染水平高于鸡蛋，且以 PFOS 和 PFOA 为主，而目前在水环境中检测到的全氟化合物多以全氟羧酸类和磺酸类为主，且以 PFOS 和 PFOA 为代表；与鸡相比，鸭在生活习性上与所在地的水环境有更多地接触，因此鸭蛋中全氟化合物污染水平可能更多受到水环境的影响。

## 2.2 与国内外相关研究的比较

如图 1 所示，鸡蛋中共检出 9 种全氟化合物，以

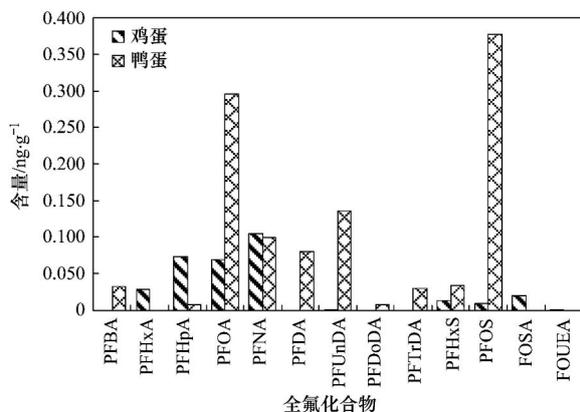


图 1 鸡蛋和鸭蛋中全氟化合物含量

Fig. 1 Concentrations of the perfluorochemicals in chicken eggs and duck eggs

PFNA 和 PFHpA 为主，PFOS 含量占 PFCs 总量的 2.9% 以上，含量范围为 ND ~ 0.171 ng·g<sup>-1</sup>，和 Wang 等<sup>[20]</sup>的研究结果有所不同，在其研究中，只有 PFOS 和 PFUnDA 在所有鸡蛋中被检出，PFOS 含量占 PFCs 总量的 99.8% 以上，含量范围为 34.7 ~ 86.9 ng·g<sup>-1</sup>；蛋黄中 PFOS 含量几乎占 PFCs 总量的 100%，含量范围为 87.6.7 ~ 107 ng·g<sup>-1</sup>，蛋清中则检测不到。本研究鸡蛋中 PFOS 含量相对较低，可能原因有两个：一是本研究鸡蛋中全氟化合物污染水平整体比较低；二是样品为蛋黄和蛋清的混合液，蛋黄中高含量的 PFOS 因蛋黄与蛋清混合被稀释，而使混合样中 PFOS 含量偏低。Yoo 等<sup>[27]</sup>研究发现，PFOA 在鸡体内的消除速率约是 PFOS 的 7 倍，Wang 等<sup>[20]</sup>的研究与其相符，但本研究和 Zhang 等<sup>[6]</sup>的研究鸡蛋中 PFOA 的含量比 PFOS 均高出一个数量级。Yoo 等<sup>[27]</sup>对鸡的暴露实验发现 PFOA 和 PFOS 含量分别在鸡肾和鸡肝中最高。王杰明等<sup>[28]</sup>在鸡心、鸡肝和鸡胸肉中均未检出 PFOA，以湿重计，鸡心和鸡胸肉中含量最高的均是 PFHpA，为 0.06 ng·g<sup>-1</sup>，PFOS 含量均为 0.03 ng·g<sup>-1</sup>；鸡肝中 PFOS 含量最高，为 0.12 ng·g<sup>-1</sup>，故全氟化合物在鸡各组织器官内的分布以及鸡对其具体暴露途径有待探究。

本研究鸭蛋中全氟化合物以 PFOS 和 PFOA 为主，含量分别为 0.378 ng·g<sup>-1</sup> 和 0.296 ng·g<sup>-1</sup>。经分析原因如下：迄今为止，PFOS 和 PFOA 是人们生产最多和应用最广泛的两类全氟化合物，其污染的广度和深度远远超出人们的预料；PFOS 和 PFOA 是许多全氟化合物的重要前体，因其极好的稳定性而在水体中很难降解，也是目前水体中最具有代表性的两类全氟化合物；在蛋鸭的饲养模式中，天然水塘、湖泊、海滩、人工水池或农田等是不可或缺的，因此，蛋鸭更易受到水环境和水生生物的影响；蛋鸭具有嗜腥性，在其饲养管理中必须保证饲料中有一定比例的动物性原料，尤以鱼粉、肉粉和贝壳粉等高蛋白副产品最为常见；以干重计，潘媛媛等<sup>[24]</sup>发现鱼肉中 PFOS 的含量比较高，达 73.8 ng·g<sup>-1</sup>，在贝类中发现了较低含量的 PFOA 和痕量的 PFOS；Zhang 等<sup>[3]</sup>对采自中国 11 省 13 个城市的市售淡水鱼和海鲜的研究发现淡水鱼和海鲜中 PFOS 含量最高，为 0.92 ng·g<sup>-1</sup>，其次是 PFOA，含量为 0.28 ng·g<sup>-1</sup>，均已湿重计。Herzke 等<sup>[29]</sup>对野生欧绒鸭蛋的研究结果与本研究相似，以湿重计，PFOS 和 PFOA 含量分别为 27.767 ng·g<sup>-1</sup> 和 3.457 ng·g<sup>-1</sup>，

鸭蛋中总 PFCs 约是本研究鸭蛋中总 PFCs 的 34.5 倍,可能因为野生鸭更易受到自然环境的影响,各环境介质中全氟化合物污染均有报道. 本研究鸡蛋和鸭蛋中总 PFCs 分别为  $0.320 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$  和  $1.098 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ,鸭蛋中总 PFCs 约是鸡蛋的 3.4 倍,这与 Zhang 等<sup>[6]</sup>对采自中国 15 省 17 个城市中鸡蛋和鸭蛋的研究结果相似.

目前,有关鸡蛋和鸭蛋的研究总体仍然比较缺乏,因此,本研究与相关研究进行了比较. 本研究的鸡蛋中全氟化合物含量以 PFNA 和 PFHpA 居高,这一特征在相关研究报告中有一定程度的体现. Herzke 等<sup>[29]</sup>在野生欧绒鸭蛋内发现了一定含量的 PFNA,含量仅次于 PFOS 和 PFOA; Sedlak 等<sup>[1]</sup>在野生鸟蛋中也检出相对高含量的 PFNA,不同的是在鸟蛋中均未检出 PFHpA; Ericson 等<sup>[30]</sup>在日常食用的 36 种食物中发现了较高浓度的 PFHpA. 本研究鸡蛋和鸭蛋中检测的 3 种全氟磺酸类中除 PFOS 还有 PFHxS 检出. Zhang 等<sup>[3]</sup>采集了中国 50 个人体全血样(5 个年龄段,男女掺半)以及 11 省 13 个城市市售的 6 种淡水鱼和 7 种海鲜,分析测试了 PFBS、PFOS 和 PFHxS 3 种全氟磺酸类,除检出较高含量的 PFOS,相应的也均检出一定含量的 PFHxS. Sedlak 等<sup>[1]</sup>对旧金山海湾的银汉鱼进行了 13 全氟化合物的检测分析,磺酸类中只检出了 PFOS. 有研究表明 PFHxS 是水成膜泡沫灭火剂<sup>[31]</sup>和地毯处理剂中的组成成分<sup>[32]</sup>,该类产品在全球用量大,存在较广泛的污染. Wang 等<sup>[23]</sup>研究了某工厂内灰尘和工厂周边土壤、水体和鸡蛋,共检测到 PFOS、PFOA 和 PFHxS 3 种全氟化合物,发现工厂的产品和原料储备间以及磺化车间存在高含量的 PFOS、PFOA 和 PFHxS,以干重计,最高含量分别达 4962、160 和  $26 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ; 并且发现工厂周边土壤、水体和鸡蛋中全氟化合物含量随着与工厂距离的增加而降低. 因此推测人为污染是造成 PFHxS 广泛存在的原因.

### 2.3 人体健康风险评价

根据国际欧洲监察组织 (Euromonitor International) 在 2008 年所做的一次统计显示,按人均计算,中国每年人均消耗 21.6 kg 鸡蛋,亚洲人的平均体重是 60 kg,US EPA 规定 PFOS 和 PFOA 的参考剂量值 (RfD) 分别为  $0.025 \mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$  和  $0.333 \mu\text{g}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$ . 本研究鸡蛋中 PFOS 和 PFOA 的含量分别为  $0.009 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$  和  $0.069 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ,计算得出 PFOS 和 PFOA 的危害指数分别为  $3.551 \times$

$10^{-4}$  和  $2.044 \times 10^{-4}$ . 鸭蛋中 PFOS 和 PFOA 的含量分别为  $0.378 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$  和  $0.296 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ , PFOS 和 PFOA 的危害指数则分别为 0.015 和  $8.767 \times 10^{-4}$ . 以上所得的危害指数 (HR) 均远小于 1,说明普通北京市居民通过市售鸡蛋和鸭蛋而摄入的 PFOS 和 PFOA 不会对人体造成即时危害.

### 3 结论

北京市场鸡蛋中共检出 9 种全氟化合物,其中 FOSA 和 PFNA 的检出率较高,平均含量以 PFNA 和 PFHpA 居高; 鸭蛋中共检出了 10 种全氟化合物,其中 PFNA 和 PFUnDA 的检出率较高,平均含量以 PFOS 和 PFOA 居高. 鸭蛋中总 PFCs 约是鸡蛋的 3.4 倍. 北京市场鸡蛋和鸭蛋中全氟化合物的污染水平和世界各国的相关研究结果有所不同,体现了全氟化合物污染的区域差异性. 北京市市售鸡蛋和鸭蛋中 PFOS 和 PFOA 的污染水平不会对人体造成即时危害.

#### 参考文献:

- [1] Sedlak M D, Greig D J. Perfluoroalkyl compounds (PFCs) in wildlife from an urban estuary [J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2012, **14**(1): 146-154.
- [2] Wang J M, Shi Y L, Pan Y Y, *et al.* Perfluorooctane sulfonate (PFOS) and other fluorochemicals in viscera and muscle of farmed pigs and chickens in Beijing, China [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2010, **55**(31): 3550-3555.
- [3] Zhang T, Sun H W, Lin Y, *et al.* Perfluorinated compounds in human blood, water, edible freshwater fish, and seafood in China: daily intake and regional differences in human exposures [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2011, **59**(20): 11168-11176.
- [4] Washington J W, Ellington J J, Jenkins T M, *et al.* Analysis of perfluorinated carboxylic acids in soils: detection and quantitation issues at low concentrations [J]. *Journal of Chromatography A*, 2007, **1154**(1-2): 111-120.
- [5] Dreyer A, Weinberg I, Temme C, *et al.* Polyfluorinated compounds in the atmosphere of the atlantic and southern oceans: evidence for a global distribution [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(17): 6507-6514.
- [6] Zhang T, Sun H W, Wu Q, *et al.* Perfluorochemicals in meat, eggs and indoor dust in China: assessment of sources and pathways of human exposure to perfluorochemicals [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(9): 3572-3579.
- [7] Loi E I H, Yeung L W Y, Taniyasu S, *et al.* Trophic magnification of poly- and perfluorinated compounds in a subtropical food web [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(13): 5506-5513.
- [8] Dai J Y, Li M, Jin Y H, *et al.* Perfluorooctanesulfonate and

- perfluorooctanoate in red panda and giant panda from China[J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(18): 5647-5652.
- [9] Kannan K, Corsolini S, Falandysz J, *et al.* Perfluorooctanesulfonate and related fluorochemicals in human blood from several countries [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(17): 4489-4495.
- [10] Butt C M, Berger U, Bossi R, *et al.* Levels and trends of poly- and perfluorinated compounds in the arctic environment [J]. *Science of the Total Environment*, 2010, **408**(15): 2936-2965.
- [11] 曹金玲, 席北斗, 许其功, 等. 水环境中 PFOA 和 PFOS 的质量浓度分布及其生态毒性[J]. *环境科学*, 2011, **32**(10): 2817-2826.
- [12] Zushi Y, Takeda T, Masunaga S. Existence of nonpoint source of perfluorinated compounds and their loads in the Tsurumi River basin, Japan[J]. *Chemosphere*, 2008, **71**(8): 1566-1573.
- [13] Zhao X L, Li J D, Shi Y L, *et al.* Determination of perfluorinated compounds in wastewater and river water samples by mixed hemimicelle-based solid-phase extraction before liquid chromatography-electrospray tandem mass spectrometry detection [J]. *Journal of Chromatography A*, 2007, **1154**(1-2): 52-59.
- [14] Zhu L Y, Ma B L, Hites R A. Brominated flame retardants in serum from the general population in northern China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(18): 6963-6968.
- [15] Wang I J, Hsieh W S, Chen C Y, *et al.* The effect of prenatal perfluorinated chemicals exposures on pediatric atopy [J]. *Environmental Research*, 2011, **111**(6): 785-791.
- [16] Domingo J L. Health risks of dietary exposure to perfluorinated compounds [J]. *Environment International*, 2012, **40**: 187-195.
- [17] Tittlemier S A, Pepper K, Edwards L. Concentrations of perfluorooctanesulfonamides in Canadian total diet study composite food samples collected between 1992 and 2004 [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2006, **54**(21): 8385-8389.
- [18] Wang J M, Shi Y L, Pan Y Y, *et al.* Perfluorinated compounds in milk, milk powder and yoghurt purchased from markets in China[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2010, **55**(11): 1020-1025.
- [19] Tseng C L, Liu L L, Chen C M, *et al.* Analysis of perfluorooctanesulfonate and related fluorochemicals in water and biological tissue samples by liquid chromatography-ion trap mass spectrometry[J]. *Journal of Chromatography A*, 2006, **1105**(1-2): 119-126.
- [20] Wang Y, Yeung L W Y, Yamashita N, *et al.* Perfluorooctane sulfonate (PFOS) and related fluorochemicals in chicken egg in China[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2008, **53**(4): 501-507.
- [21] Li X M, Yeung L W Y, Xu M Q, *et al.* Perfluorooctane sulfonate (PFOS) and other fluorochemicals in fish blood collected near the outfall of wastewater treatment plant (WWTP) in Beijing[J]. *Environmental Pollution*, 2008, **156**(3): 1298-1303.
- [22] Newsted J L, Beach S A, Gallagher S P, *et al.* Pharmacokinetics and acute lethality of perfluorooctanesulfonate (PFOS) to juvenile mallard and northern bobwhite [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2006, **50**(3): 411-420.
- [23] Wang Y W, Fu J J, Wang T, *et al.* Distribution of perfluorooctane sulfonate and other perfluorochemicals in the ambient environment around a manufacturing facility in China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, **44**(21): 8062-8068.
- [24] 潘媛媛, 史亚利, 蔡亚岐. 鱼、贝类等水产品中全氟化合物分析方法的研究 [J]. *分析化学*, 2008, **36**(12): 1619-1623.
- [25] Begley T H, White K, Honigfort P, *et al.* Perfluorochemicals: potential sources of and migration from food packaging[J]. *Food Additives and Contaminants*, 2005, **22**(10): 1023-1031.
- [26] Quinones O, Snyder S A. Occurrence of perfluoroalkyl carboxylates and sulfonates in drinking water utilities and related waters from the United States [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(24): 9089-9095.
- [27] Yoo H, Gurugeb K S, Yamanaka N, *et al.* Depuration kinetics and tissue disposition of PFOA and PFOS in white leghorn chickens (*Gallus gallus*) administered by subcutaneous implantation [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2009, **72**(1): 26-36.
- [28] 王杰明, 王丽, 冯玉静, 等. 液相色谱-质谱联用分析动物内脏和肌肉组织中的全氟化合物[J]. *食品科学*, 2010, **31**(4): 127-131.
- [29] Herzke D, Nygard T, Berger U, *et al.* Perfluorinated and other persistent halogenated organic compounds in European shag (*Phalacrocorax aristotelis*) and common eider (*Somateria mollissima*) from Norway: a suburban to remote pollutant gradient [J]. *Science of the Total Environment*, 2009, **408**(2): 340-348.
- [30] Ericson I, Martí-Cid R, Nadal M, *et al.* Human exposure to perfluorinated chemicals through the diet: intake of perfluorinated compounds in foods from the Catalan (Spain) market [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2008, **56**(5): 1787-1794.
- [31] Moody C A, Martin J W, Kwan W C, *et al.* Monitoring perfluorinated surfactants in biota and surface water samples following an accidental release of fire-fighting foam into etobicoke creek [J]. *Environmental Science & Technology*, 2002, **36**(4): 545-551.
- [32] Olsen G W, Huang H Y, Helzlsouer K J, *et al.* Historical comparison of perfluorooctanesulfonate, perfluorooctanoate, and other fluorochemicals in human blood [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2005, **113**(5): 539-545.

## CONTENTS

Characteristics of Total Gaseous Mercury Concentrations at a Rural Site of Yangtze Delta, China	DOU Hong-ying, WANG Shu-xiao, WANG Long, <i>et al.</i> ( 1 )
Compositions of Organic Acids in PM <sub>10</sub> Emission Sources in Xiamen Urban Atmosphere	YANG Bing-yu, HUANG Xing-xing, ZHENG An, <i>et al.</i> ( 8 )
Analysis on Water-soluble Inorganic Ions in the Atmospheric Aerosol of Xinglong	LI Xing-ru, SONG Ai-li, WANG Ying-feng, <i>et al.</i> ( 15 )
Effects of Gaseous Compositions the on Simultaneous Removal of NO <sub>x</sub> and SO <sub>2</sub> from Simulated Flue Gas by Ammonia Absorption	WANG Hong, ZHU Tian-le, WANG Mei-yan ( 21 )
Comparing the Ammonia Volatilization Characteristic of Two Typical Paddy Soil with Total Wheat Straw Returning in Taihu Lake Region	WANG Jun, WANG De-jian, ZHANG Gang, <i>et al.</i> ( 27 )
Real-Time Analysis of Polyvinyl Chloride Thermal Decomposition/Combustion Products with Single Photon Ionization/Photoelectron Ionization Online Mass Spectrometer	CHEN Wen-dong, HOU Ke-yong, CHEN Ping, <i>et al.</i> ( 34 )
Surface Characteristics of Alkali Modified Activated Carbon and the Adsorption Capacity of Methane	ZHANG Meng-zhu, LI Lin, LIU Jun-xin, <i>et al.</i> ( 39 )
Distribution of Dimethylsulfoxide(DMSO) in the Surface Water of the Yellow Sea and the Bohai Sea	WANG Min, ZHANG Hong-hai, YANG Gui-peng ( 45 )
Resolving Characteristic of CDOM by Excitation-Emission Matrix Spectroscopy Combined with Parallel Factor Analysis in the Seawater of Outer Yangtze Estuary in Autumn in 2010	YAN Li-hong, CHEN Xue-jun, SU Rong-guo, <i>et al.</i> ( 51 )
Estimation and Forecast of Chlorophyll a Concentration in Taihu Lake Based on Ensemble Square Root Filters	LI Yuan, LI Yun-mei, WANG Qiao, <i>et al.</i> ( 61 )
Research of Hyperspectral Reconstruction Based on HJ1A-CCD Data	GUO Yu-long, LI Yun-mei, ZHU Li, <i>et al.</i> ( 69 )
Research on the Sensitivity of Geochemical of Underground River in Chongqing Xueyu Cave	XU Shang-quan, YANG Ping-heng, YIN Jian-jun, <i>et al.</i> ( 77 )
Bivariate Statistical Model for Calculating Phosphorus Input Loads to the River from Point and Nonpoint Sources	CHEN Ding-jiang, SUN Si-yang, JIA Ying-na, <i>et al.</i> ( 84 )
Temporal and Spatial Variations of Total Nitrogen and Total Phosphorus in the Typical Reaches of Qinhuai River	LI Yue-fei, XIA Yong-qiu, LI Xiao-bo, <i>et al.</i> ( 91 )
Derivation and Application of Sediment Quality Criteria of Cd and Hg for the Xiangjiang River	JIANG Bo-feng, SANG Lei-xin, SUN Wei-ling, <i>et al.</i> ( 98 )
Distribution and Pollution Assessment of Heavy Metals in Soil of Relocation Areas from the Danjiangkou Reservoir	ZHANG Lei, QIN Yan-wen, ZHENG Bing-hui, <i>et al.</i> ( 108 )
Concentrations of Soil Heavy Metals and Their Spatial Distribution in the Surrounding Area of Fenhe Reservoir	LI Jin-chang, ZHANG Hong, SHI Wei ( 116 )
Distribution and Health Risk Assessment of Heavy Metals of Groundwaters in the Irrigation District of the Lower Reaches of Yellow River	ZHANG Yan, LI Fa-dong, OUYANG Zhu, <i>et al.</i> ( 121 )
Concentrations and Distribution of Organochlorine Pesticides in the Surface Sediments of Jiaozhou Bay, Taozi Bay and Sishili Bay	LIU Yi-kai, ZHONG Guang-cai, TANG Jian-hui, <i>et al.</i> ( 129 )
Choice of Macroinvertebrate Metrics for Constructing a Benthic-Index of Biotic Integrity Based on the Disturbance Gradients in the Qinjiang River Basin	LU Dong-qi, ZHANG Yong, CAI De-suo, <i>et al.</i> ( 137 )
Isolation and Identification of <i>Marinobacter adhaerens</i> HY-3 and Its Allelopathy on <i>Skeletonema costatum</i>	WANG Hong-bin, CHEN Wen-hui, LI Xin-shu, <i>et al.</i> ( 145 )
Effects of the Rice Straw on <i>Microcystis aeruginosa</i> Analyzed by Different Physiological Parameters	SU Wen, KONG Fan-xiang, YU Yang, <i>et al.</i> ( 150 )
Effects of Allochemicals Ethyl Cinnamate on the Growth and Physiological Characteristics of <i>Chlorella pyrenoidosa</i>	GAO Li-li, GUO Pei-yong, SU Guang-ming, <i>et al.</i> ( 156 )
Hydraulic Simulation and Safety Assessment of Secondary Water Supply System with Anti-Negative Pressure Facility	WANG Huan-huan, LIU Shu-ming, JIANG Shuai, <i>et al.</i> ( 163 )
Effect of Relative Molecular Mass Distribution and Hydrophilicity/Hydrophobicity of NOM on Membrane Fouling in MF-combined Process	HU Meng-liu, LIN Jie, XU Guang-hong, <i>et al.</i> ( 169 )
Effect of Permeabilization on Sulfate Reduction Activity of <i>Desulfovibrio vulgaris</i> Hildenborough Cells in the Presence of Different Electron Donors	XU Hui-wei, ZHANG Xu, LI Li-ming, <i>et al.</i> ( 177 )
Dechlorination of HCB by Bimetals Based on Zero Valent Iron	ZENG Xian-wei, LIU Jian-guo, NIE Xiao-qin ( 182 )
Study on Kinetics of Photoelectrocatalytic Degradation of Supported TiO <sub>2</sub> on Malachite Green	ZHANG Xiao-na, ZHOU Shao-qi, ZHOU Xiao ( 188 )
Measurement and Analysis of Micropore Aeration System's Oxygenating Ability Under Operation Condition in Waste Water Treatment Plant	WU Yuan-yuan, ZHOU Xiao-hong, SHI Han-chang, <i>et al.</i> ( 194 )
Influence of Microbubble and Its Generation Process on Mixed Liquor Properties of Activated Sludge	LIU Chun, MA Jin, ZHANG Lei, <i>et al.</i> ( 198 )
Impact of Different Nitrogen Concentrations on the N <sub>2</sub> O Production in the Denitrification Process of Granular Sludge	HAN Xue, GAO Da-wen ( 204 )
Effect of Simulated Heavy Metal Leaching Solution of Electroplating Sludge on the Bioactivity of <i>Acidithiobacillus ferrooxidans</i>	XIE Xin-yuan, SUN Pei-de, LOU Ju-qing, <i>et al.</i> ( 209 )
Characteristic and Ion Exchanges During Cu <sup>2+</sup> and Cd <sup>2+</sup> Biosorption by <i>Stenotrophomonas maltophilia</i>	BAI Jie-qiong, YIN Hua, YE Jin-shao, <i>et al.</i> ( 217 )
Sorption of Nitrobenzene to Anionic Surfactant Modified Layered Double Hydroxides	XIA Yan, ZHU Run-liang, TAO Qi, <i>et al.</i> ( 226 )
Study on Phosphate Removal and Recovery by Activated Alumina	MENG Wen-na, XIE Jie, WU De-yi, <i>et al.</i> ( 231 )
Spatial Distribution of Inhalable Particulate and Association with Respiratory Disease in Beijing City	YANG Wei, ZHAO Wen-ji, GONG Zhao-ning, <i>et al.</i> ( 237 )
Pollution Levels of Perfluorochemicals in Chicken Eggs and Duck Eggs from the Markets in Beijing	QI Yan-jie, ZHOU Zhen, SHI Ya-li, <i>et al.</i> ( 244 )
Residual Levels of Pesticides in Freshwater Fish from Beijing Aquatic Product Markets and Health Risk Assessment	YU Zhi-yong, JIN Fen, SUN Jing-fang, <i>et al.</i> ( 251 )
Characterizing the Toxicity Interaction of the Binary Mixture Between DMSO and Pesticide by the Multi-Effect Residual Analysis ( MERA )	HUO Xiang-chen, LIU Shu-shen, ZHANG Jing, <i>et al.</i> ( 257 )
Isolation of Quinolofop- <i>p</i> -ethyl-degrading Bacteria from Soil by DGGE-Colony <i>in situ</i> Hybridization	LÜ Xin, PENG Xia-wei, HU Qing, <i>et al.</i> ( 263 )
White-Rot Fungi Combinations Impact on Enzyme Productions	MENG Yao, LIANG Hong, GAO Da-wen ( 271 )
Effects of Different Fertilizer Application on Soil Active Organic Carbon	ZHANG Rui, ZHANG Gui-long, JI Yan-yan, <i>et al.</i> ( 277 )
Effect of Reclamation on the Vertical Distribution of SOC and Retention of DOC	HUO Li-li, ZOU Yuan-chun, GUO Jia-wei, <i>et al.</i> ( 283 )
Distribution Characteristics of Soil Organic Carbon and Its Composition in <i>Suaeda salsa</i> Wetland in the Yellow River Delta	DONG Hong-fang, YU Jun-bao, GUAN Bo ( 288 )
Study the Restoration Technology of Concentrated Application-Natural Diffusion about Amendments of Acidified Soil of Hilly Woodland	FANG Xiong, LIU Ju-xiu, YIN Guang-cai, <i>et al.</i> ( 293 )
Optimizing Remediation Conditions of Non-thermal Plasma for DDTs Heavily Contaminated Soil	CHEN Hai-hong, LUO Yong-ming, TENG Ying, <i>et al.</i> ( 302 )
Chemical Extraction of Arsenic Co-precipitated with Amorphous Fe(OH) <sub>3</sub> and Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	CHEN Yi-ping, WANG Shao-feng, JIA Yong-feng ( 308 )
Influence of Aluminum and Manganese on the Growth, Nutrient Uptake and the Efflux by Ectomycorrhizal Fungi	LI Hua, HUANG Jian-guo, YUAN Ling ( 315 )
High-solids Anaerobic Co-digestion of Sludge and Kitchen Garbage Under Mesophilic Conditions	DUAN Ni-na, DONG Bin, LI Jiang-hua, <i>et al.</i> ( 321 )
Preparation, Characterization and Adsorption Performance of High Surface Area Biomass-based Activated Carbons	LI Kun-quan, LI Ye, ZHENG Zheng, <i>et al.</i> ( 328 )
Study on Strategies of Pollution Prevention in Coastal City of Zhejiang Province Based on Scenario Analysis	TIAN Jin-ping, CHEN Lü-jun, DU Peng-fei, <i>et al.</i> ( 336 )
Advance in the Bioavailability Monitoring of Heavy Metal Based on Microbial Whole-cell Sensor	HOU Qi-hui, MA An-zhou, ZHUANG Xiu-liang, <i>et al.</i> ( 347 )
Characteristics of Heavy Metal Contamination in Street Dusts Along the Urban-Rural Gradient Around Beijing	HE Xiao-yan, GU Pei, LI Xu-yong, <i>et al.</i> ( 357 )
Content Trends of Pollutants in Street Dust of Beijing Along the Urban-Rural Gradient and Road Density Gradient	TANG Rong-li, MA Ke-ming, ZHANG Yu-xin, <i>et al.</i> ( 364 )
Analysis of First Flush Effect of Typical Underlying Surface Runoff in Beijing Urban City	REN Yu-fen, WANG Xiao-ke, OUYANG Zhi-yun, <i>et al.</i> ( 373 )
Temporal Variation of Water Quality and Driving Factors in Yanghe Watershed of Zhangjiakou	PANG Bo, WANG Tie-yu, LÜ Yong-long, <i>et al.</i> ( 379 )
Research on Carbon Reduction Potential of Electric Vehicles for Low-Carbon Transportation and Its Influencing Factors	SHI Xiao-qing, LI Xiao-nuo, YANG Jian-xin ( 385 )
Investigation of Waste Classification and Collection Actual Effect and the Study of Long Acting Management in the Community of Beijing	DENG Jun, XU Wan-ying, ZHOU Chuan-bin ( 395 )
Problems and Countermeasures in the Application of Constructed Wetlands	HUANG Jin-lou, CHEN Qin, XU Lian-huang ( 401 )

# 《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

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

## 环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2013年1月15日 34卷 第1期

## ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 34 No. 1 Jan. 15, 2013

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

中国标准刊号: ISSN 0250-3301  
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行人