环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第8期

Vol.37 No.8

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版

目次

中国地区二次有机气溶胶的时空分布特征和来源分析 陈卓,刘峻峰,陶玮,陶澍 (2815)

中国民用煤燃烧排放细颗粒物中重金属的清单 刘海彪,孔少飞,王伟,严沁 (2823)

基于长时间序列的北京 PM_{2.5}浓度日变化及气象条件影响分析 苗蕾,廖晓农,王迎春 (2836)

2004~2015年北京市清洁点臭氧浓度变化特征 程念亮,李云婷,张大伟,陈添,魏强,孙彤卉,王步英,富佳明,何乐为,程兵芬,皮帅,马立光,崔继宪,孟凡 (2847)

抗战胜利70周年大阅兵期间石家庄大气细颗粒物在线来源解析 周静博,李治国,路娜,徐曼,杨鹏,高康宁,王建国,靳伟 (2855)

成都平原大气颗粒物中无机水溶性离子污染特征 蒋燕,贺光艳,罗彬,陈建文,王斌,杜云松,杜明 (2863)

嘉兴市春季一次持续雾霾过程中气象条件与污染物变化特征分析 沈利娟,王红磊,李莉,吕升,袁婧,张孝寒,章国骏,王翡 (2871)

泉州市大气降尘中金属元素污染特征及来源解析 张棕巍,胡恭任,于瑞莲,刘贤荣,胡起超,王晓明 (2881)

城市室内灰尘重金属水平、影响因素及健康风险:以贵阳市为例 李晓燕,汪浪,张舒婷 (2889)

桂林市酸雨变化特征及来源分析 郭雅思,于爽,黎泳珊,孙平安,何若雪 (2897)

农田土壤施用系列新型氮肥后气态氮(NH₃和N₂O)减排效果比较:以夏玉米季为例 范会,姜姗姗,魏茨,蒋静艳 (2906)

青海南部高原积雪期与生长季高寒草甸土壤CO₂、CH₄和N₂O通量的观测 吴建国,周巧富 (2914)

三峡库区香溪河秋末至中冬CO₂和CH₄分压特征分析 张军伟,雷丹,肖尚斌,张成,穆晓辉,刘佳,李迎晨 (2924)

气候变化对于桥水库总磷与溶解氧的潜在影响分析 张晨,刘汉安,高学平,张文娜 (2932)

三峡库区小流域土地利用结构变化及其氮素输出控制效应:以兰陵溪小流域为例 吴东,黄志霖,肖文发,曾立雄,韩黎阳 (2940)

入湖河流水质对土地利用时空格局的响应研究:以洱海北部流域为例 项颂,庞燕,储昭升,胡小贞,孙莉,薛力强 (2947)

库湾营养盐循环对三峡库区营养盐运输的影响:以草堂河为例 王晓彤,罗光富,操满,王雨春,汪福顺,邓兵 (2957)

农田溪流人工深潭地貌格局暂态存储特征分析 李如忠,黄青飞,钱靖,殷晓曦,韦林 (2964)

农田排水沟渠水体-底泥中溶质氮分布特征试验研究 李强坤,胡亚伟,宋常吉,彭聪 (2973)

三峡库区典型消落带土壤微生物生物量碳、氮的变化特征及其影响因素探讨 柴雪思,雷利国,江长胜,黄哲,范志伟,郝庆菊 (2979)

重金属在河口区潮汐界面与盐度界面响应规律研究 刘静,郑丙辉,刘录三,马迎群,林岗璇,汪星,夏阳 (2989)

深圳地区全氟辛酸磺酸的环境多介质迁移和归趋行为研究 崔晓宇,张鸿,罗骥,张若冰 (3001)

柘林湾表层沉积物中有机氯农药的分布特征及生态风险评价 卫亚宁,潘佳钊,宋玉梅,郭鹏然,王毅 (3007)

北运河水体中荧光溶解性有机物空间分布特征及来源分析 陈永娟,胡玮璇,庞树江,王晓燕 (3017)

昌邑滨海湿地沉积物的放射性核素水平与环境指示意义 王启栋,宋金明,李学刚,袁华茂,李宁,曹磊 (3026)

甬醇对南山老龙洞地下水粪便污染的指示 廖昱,孙玉川,王尊波,梁作兵,张远瞩 (3034)

漳沱河冲洪积扇地下水中酞酸酯的污染现状与分布特征 昌盛,赵兴茹,刘琰,耿梦娇,乔翠琴 (3041)

雨季不同土地利用下表层岩溶泉中脂肪酸来源分析 张媚,孙玉川,谢正兰,余琴,赵瑞一,梁作兵 (3049)

Zn系LDHs覆膜改性人工湿地沸石基质除磷机制 张翔凌,黄华玲,郭露,陈巧珍,阮聪颖,冷玉洁 (3058)

Ce³⁺与Cu²⁺协同强化芬顿体系氧化苯酚的效能与机制研究 张剑桥,迟惠中,宋阳,罗从伟,江进,马军 (3067)

Pt/生物炭电极反应器处理水中腐殖酸的研究 丁文川,向星光,曾晓岚,厉晓宇,梁国强, M. M. Mian (3073)

石墨烯-TiO₂光催化剂复合板制备及其对五氯酚的催化降解 徐琪,周泽宇,王洪涛 (3079)

单偶氮染料AY17的光催化降解动力学及机制 阳海,魏宏庆,胡乐天,胡倩,阳立平,刘华杰,易翔,易兵 (3086)

硫自养反硝化处理高含氟光伏废水可行性 马航,朱强,朱亮,李祥,黄勇,魏凡凯,杨朋兵 (3094)

膜曝气-生物膜反应器生物强化处理阿特拉津废水运行性能 刘春,于长富,张静,陈晓轩,张磊,杨景亮 (3101)

ABR工艺ANAMMOX耦合短程硝化协同脱氮处理城市污水 吴鹏,张诗颖,宋吟玲,徐乐中,沈耀良,张婷 (3108)

活性污泥厌氧Fe(III)还原氨氧化现象初探 李祥,林兴,杨朋兵,黄勇,刘恒蔚 (3114)

低浓度氨氮废水单级自养脱氮EGSB反应器的快速启动 顾书军,方芳,李凯,刘勇,郭劲松,陈猷鹏,蒋甫阳 (3120)

超低溶解氧条件下的EBPR系统除磷性能 马娟,宋璐,俞小军,李璐,孙雷军,孙洪伟,李光银 (3128)

活性污泥表面性质对絮凝沉降性能与出水悬浮物的影响 何志江,赵媛,张源凯,王洪臣,齐鲁,尹训飞,张晓军 (3135)

山东省典型金矿区土壤重金属空间特征分析与环境风险评估 王菲,吴泉源,吕建树,董玉龙,曹文涛,康日斐,曹见飞 (3144)

电子垃圾拆解区土壤重金属空间异质性及分布特征 赵科理,傅伟军,叶正钱,戴巍 (3151)

我国18种不同理化性质的土壤对硒酸盐的吸附解吸作用研究 冯璞阳,李哲,者渝芸,黄杰,梁东丽 (3160)

流动搅动法研究针铁矿对亚砷酸盐的吸附特征 李鑫,杨军,饶伟,王代长,杜光辉,化党领,刘世亮,刘红恩 (3169)

聚羧基铝柱撑硅藻土的制备及其对水溶液中Cu²⁺、Zn²⁺的吸附特性 朱健,雷明婧,王平,张伟丽,陈仰 (3177)

新型污泥基吸附材料制备及其氨氮去除性能评价 王文东,刘荟,张银婷,杨生炯 (3186)

纳米复合水凝胶的制备及其对重金属离子的吸附 朱倩,李正魁,张一品,韩华杨,王浩 (3192)

鼠李糖脂与β-环糊精复合提取预测污染土壤中PAHs的生物有效性 张亚楠,杨兴伦,卞永荣,谷成刚,王芳,王代长,蒋新 (3201)

不同磷水平下丛枝菌根真菌对纳米氧化锌生物效应的影响 景新新,苏志忠,邢红恩,王发园,石兆勇,刘雪琴 (3208)

中美水生生物基准受试物种敏感性差异研究 王晓南,闫振广,余若祯,王婉华,陈丽红,刘征涛 (3216)

贫营养和痕量抗生素对质粒抗生素抗性适应度代价的影响 林文芳,陈胜,万堃,王春明,林惠荣,于鑫 (3224)

不同氨水平下间作对玉米土壤硝化势和氨氧化微生物数量的影响 吕玉,周龙,龙光强,汤利 (3229)

《环境科学》征订启事(3025) 《环境科学》征稿简则(3057) 信息(3072, 3085, 3143)

滹沱河冲洪积扇地下水中酞酸酯的污染现状与分布特征

昌盛^{1,2}, 赵兴茹^{1,2}, 刘琰^{1,2*}, 耿梦娇^{1,2}, 乔肖翠^{1,2}

(1. 中国环境科学研究院国家环境保护饮用水水源地保护重点实验室, 北京 100012; 2. 中国环境科学研究院环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012)

摘要: 2014 年 9 月采集石家庄地区滹沱河冲洪积扇地下水水样, 采用气相色谱-质谱法测定了 US EPA 优先控制的 6 种酞酸酯 (PAEs), 对 PAEs 分布特征与风险进行了分析. 结果表明, 研究区内 51 个点位仅 1 个点位未检出 PAEs, 检出的 $\sum$ PAEs 范围为 $nd \sim 28\,873.1 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 与国内其他研究区相比, 研究区地下水中 PAEs 污染水平较重. PAEs 及各组分的空间分布存在显著差异. 3 个地下水单元 PAEs 的平均污染水平总体表现为山间沟谷河谷裂隙孔隙水单元 (G1) > 滹沱河冲洪积扇顶部孔隙水单元 (G2) > 滹沱河冲洪积扇中部孔隙水单元 (G3). 在 G2、G3 单元共计 39 个点位中, 有 23 个点位地下水中的 PAEs 以邻苯二甲酸甲酯 (DMP) 为主, 而其余点位均因临近周边污染源, 地下水中 PAEs 含量较高, 且以邻苯二甲酸 (2-乙基己基) 酯 (DEHP)、邻苯二甲酸丁酯 (DBP) 为主. 研究区人群饮用受 PAEs 污染地下水的总非致癌风险指数和总致癌风险指数范围分别为 $7.6 \times 10^{-9} \sim 1.1 \times 10^{-2}$ 、 $nd \sim 1.2 \times 10^{-6}$, 均小于 US EPA 推荐的可接受的水平, 风险较小.

关键词: 酞酸酯; 滹沱河; 地下水; 污染特征; 风险评估

中图分类号: X131.2; X523 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)08-3041-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.2016.08.027

Distribution Characteristics and Pollution Status of Phthalate Esters in the Groundwater of Hutuo River Pluvial Fan

CHANG Sheng^{1,2}, ZHAO Xing-ru^{1,2}, LIU Yan^{1,2*}, GENG Meng-jiao^{1,2}, QIAO Xiao-cui^{1,2}

(1. State Environmental Protection Key Laboratory of Drinking Water Source Protection, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China; 2. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: A total of 51 groundwater samples were collected from Hutuo River Pluvial Fan in September, 2014, and 6 phthalate esters (PAEs) were analyzed by gas chromatography-mass spectrometry. The distribution characteristics and health risk assessment were investigated in the present study. The results showed that the PAEs could not be detected in only one sample site. The concentration of the six total PAEs ranged between not detectable and $28\,873.1 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, and the PAEs pollution level of the this research area was higher than other regions reported in China. There was obvious difference in the characteristics of space distribution of PAEs constitutes among the three groundwater units. The concentration of PAEs was sequenced from large to small as follows: Gangnan reservoir valley fracture pore water unit (G1) > the pore water unit of the top of Hutuo River Pluvial fan (G2) > the shallow pore water unit of the middle part of Hutuo River Pluvial fan (G3). The results showed that the DMP was dominant in 23 sample sites among all the 39 samples within the G2 and G3 groundwater units, while the concentration of PAEs was relatively higher in the other sample points and the DEHP, DBP were the predominant components, which should be attributed to the industrial point pollution or the pollution originated from surface runoff around the sample sites. The health risk of drinking groundwater polluted by PAEs in the study area was evaluated by the recommended method by US EPA. The non-cancer risk index and the cancer risk index was lower than 1.1×10^{-2} and 1.2×10^{-6} , respectively, which was both lower than the risk level recommended by US EPA.

Key words: phthalate esters (PAEs); Hutuo River; groundwater; pollution distribution; risk assessment

邻苯二甲酸酯, 也叫酞酸酯 (phthalate esters, PAEs), 是一类广泛使用的人工合成有机化合物, 在工业生产中大约有 85% 左右用作聚氯乙烯 (PVC) 塑料增塑剂, 主要用于增大产品的可塑性和柔润度^[1,2]. 随着工业的发展, PAEs 的用量逐渐增多, 目前, 在大气、水体、土壤、生物乃至人体等样本中均发现其存在^[3-6]. PAEs 在环境中性质稳定, 存留时间长, 有较强的生物蓄积毒性, 一旦其进入自然生态系统, 会对公众健康带来潜在危害^[7]. 已有研究表

明, PAEs 对动物有致畸、致癌、致突作用, 属于环境内分泌干扰化合物的一类. 目前, 关于 PAEs 在大气、地表水体、土壤以及沉积物等环境中的研究都

收稿日期: 2016-01-22; 修订日期: 2016-03-24

基金项目: 环境保护公益性行业科研专项 (201409029); 国家自然科学基金项目 (51508539); 国家水体污染控制与治理科技重大专项 (2014ZX07405-001)

作者简介: 昌盛 (1983 ~), 男, 博士, 助理研究员, 主要研究方向为水污染控制与饮用水安全保障, E-mail: changsheng@ craes.org.cn

* 通讯联系人, E-mail: liuyan@ craes.org.cn

已有相关报道^[8-10],而对于地下水环境中 PAEs 环境行为的研究,还较为少见.

滹沱河平原地处华北平原西部,处于山前补给区的第一个过流区,也是南水北调中线工程地下水调蓄、地下水回灌的重点区域^[11].同时,滹沱河平原地区有近 80% 的公共用水来自地下水,因此,该区域的地下水质量对居民健康十分重要.针对该区域的地下水环境污染问题,已有相关研究报道,但目前的关注点主要集中在无机组分(如氮素、钙、镁、氯离子等)上^[12],关于有机污染物的研究仅有关于三氯乙烯、四氯化碳等挥发性有机污染物的报道^[13],而关于此区域地下水中 PAEs 环境行为的研究还未见报道.为此,本文选取滹沱河冲洪积扇地下水为研究对象,对 US EPA 列为优先控制的邻苯二甲酸二甲酯(DMP)、邻苯二甲酸二乙酯(DEP)、邻苯二甲酸二丁酯(DBP)、邻苯二甲酸丁基苄基酯(BBP)、邻苯二甲酸(2-乙基己基)酯(DEHP)和邻苯二甲酸二辛酯(DOP)等 6 种 PAEs 污染状况进行了调查分析,并对 PAEs 的健康风险进行了评价,以期为地下水的环境保护提供基础资料和理论依据.

1 材料与方法

1.1 主要化学试剂

本文对 EPA 确定的 6 种优先控制 PAEs 进行了检测分析.6 种 PAEs 的混标由美国 AccuStandard

公司生产(M-606).分析测试中所用的正己烷、丙酮和二氯甲烷等溶剂均为农残级,由美国 JTBaker 公司生产.

1.2 样品的采集

滹沱河冲洪积平原地下水资源量丰富,是华北平原区域内主要的地下水饮用水源.根据研究区域内地质条件、地下水埋深及含水介质状况,将研究区划分为:山间沟谷河谷裂隙孔隙水单元(G1)、滹沱河冲洪积扇顶部孔隙水单元(G2)、滹沱河冲洪积扇中部浅层和深层孔隙水单元(G3).同时,根据研究区内地下水单元的划分,在研究区选择已有的灌溉井和工业、居民用水井为采样点位,于 2014 年 9 月在 G1 单元采集水样 12 个(井深 13~15 m),G2 单元采集水样 22 个(井深 25~80 m),G3 单元采集水样 17 个(井深 42~100 m),共 51 个点位,采样点位的分布情况分别如图 1 所示.采样时,取水样 1 000 mL,置于预先用铬酸洗液、蒸馏水和二氯甲烷洗净的棕色玻璃瓶中,棕色试剂瓶置入加有冰块保温箱,运回实验室于冰箱 4℃ 保存,并且在 7 d 内完成样品前处理.

1.3 水样预处理与测试分析

水样经 0.45 μm 玻璃纤维膜(φ 47 mm, Whatman, 英国)过滤后添加回收率指示物 DBP-d₁₀,浓度与实际水样中酞酸酯浓度预估值接近,经 Oasis HLB 固相小柱(500 mg/6 mL, Waters, 美国)富集.水样的富集、分析与仪器控制条件参照 Liu 等^[14]报

图 1 研究区地下水单元划分与采样点位示意

Fig. 1 Locations of sampling points and the three subdivided elements in the study field

道的方法. 水样经富集、浓缩、净化旋蒸后, 添加内标六甲基苯后, 采用专用气相小瓶塑料内插管 (30 × 5 mm, CNW Technologies, Shanghai) 并定容至 20 μL . 富集的水样在气相色谱-质谱联用仪 Aglient7890/5975C-GC/MSD 上分析. 采用 DB-5 石英毛细管色谱柱 (0.25 mm × 60 m × 0.25 μm), 载气为氮气, 流速恒定为 1 mL·min⁻¹, 线速度 26 cm·s⁻¹. 进样口、传输线和离子源温度分别为 250、300、250℃, 电子能量 70 eV, 选择离子模式 (SIM) 扫描, 升温程序为初始温度 60℃ (1min), 以 20℃·min⁻¹ 升到 220℃ 保持 1 min, 再以 5℃·min⁻¹ 速度升到 280℃ 保持 4 min; 溶剂延迟: 4 min, 最后无分流进样 1 μL . 通过色谱峰保留时间进行定性分析, 并采用内标峰面积法、5 点校正曲线定量.

1.4 质量保证与质量控制

为了保证实验分析数据的准确性和可靠性, 每次样品分析的过程中均同步设置方法空白实验和基质加标实验判定整个实验操作过程中是否有基质的干扰. 方法回收率实验是在环境样品加入定量的 PAEs 标准化合物. 按照上述同样的预处理方法进行样品处理. 仪器分析测定每种化合物的方法回收率. 同时, 为了保证定性及定量的准确性, 每分析 10 个样品均添加某一特定浓度的标准样品重新校正化合物的保留时间和峰面积. 本研究中, 方法空白实验中 6 种 PAEs 均未检出, 样品平行样实验重现性较好, 相对偏差 8% ~ 12%; 测定样品回收率为 86.7% ~ 106.3%, 实际水样中掺混 DBP-d₁₀ 回收率达到 73.5% ~ 86.3%. 方法检测限以基质样品中能够产生 3 倍信噪比 (S/N) 的样品量确定.

1.5 数据分析

本文对单个样本采用 Kolomogorov-Simirnov (K-S) 检验来推断样本是否符合正态分布, 结果发现, 6 种 PAEs 的浓度不符合正态分布, 因此, 文中采用非

参数 Mann-Whitney U 检验不同独立样本数据的差异性. 数据分析采用 SPSS 20.0 软件 (SPSS Inc.) 进行, 文中检验数据差异的显著性水准值 (P) 小于 0.05 时, 表示数据差异显著.

2 结果与讨论

2.1 PAEs 总体检出情况

51 个水样中除 G2-6 点位外, 其余点位均有 PAEs 被检出, 其中 DMP、DEP、DBP、DEHP 和 DOP 检出率分别为 94.1%、84.3%、96.1%、78.4%、58.8%, BBP 在全部点位均没有被检出. $\sum$ PAEs 检出浓度范围为 0.2 ~ 28 873.1 ng·L⁻¹, 平均值和中位值分别为 3 127.3 ng·L⁻¹ 和 181.2 ng·L⁻¹ (表 1). 从 PAEs 各组分的平均值来看, 检出的 6 种 PAEs 中以 DMP、DBP、DEHP 为主, 其中 DBP 平均值最大, 为 2 549.9 ng·L⁻¹, 其次为 DEHP、DMP, 平均检出浓度分别为 388.5 ng·L⁻¹、171.6 ng·L⁻¹. 从理论上讲, 6 种 PAEs 中 DMP 溶解度最大, 其被土壤中有有机质吸附较少, 地下水中 DMP 浓度应较高. 而研究区地下水中 PAEs 中 DBP、DEHP 的平均浓度较 DMP 要高, 这说明此地下水受到了人为活动的干扰和影响. 根据已有报道, DBP 和 DEHP 是目前最为常用的增塑剂, 其含量一般占据 PAEs 的 50% ~ 60% [15], 所以, 在存在污染源的环境中, DBP、DEHP 含量较高, 本文的结果也证实了这点. 本研究中 DBP 最大检出浓度为 24 579.0 ng·L⁻¹, 依据《生活饮用水卫生标准 (GB 5749-2006)》限值, 处于较高水平, 同时 DEHP 最大检出浓度也已达到了 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 水平, 这说明该地区的地下水的污染防治应当引起关注.

从研究区 PAEs 各组分检出浓度来看, DOP 浓度水平较低, 浓度介于 nd ~ 89.7 ng·L⁻¹ 间, 平均浓度和中值浓度分别为 6.3 ng·L⁻¹ 和 0.2 ng·L⁻¹, 而 DBP、DEHP、DMP 检出浓度范围大, 分别为 nd ~

表 1 PAE 总体检出情况¹⁾/ng·L⁻¹

Table 1 PAEs concentration in the groundwater of the study field/ng·L⁻¹

PAEs 组分	检出率/%	最小值	最大值	平均值	中值
DMP	94.1	nd	1 692.2	171.6	40.3
DEP	84.3	nd	142.1	10.9	4.1
DBP	96.1	nd	24 579.0	2 549.9	26.6
BBP	0	nd	nd	nd	nd
DEHP	78.4	nd	2 901.2	388.5	28.4
DOP	58.8	nd	89.7	6.3	0.2
$\sum$ PAEs	100.0	0.2	28 873.1	3 127.3	181.2

1) nd 表示未检出, 下同

24 579.0 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 、nd ~ 2 901.2 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 、nd ~ 1 692.2 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。图 2 显示了各点位 6 种酞酸酯的质量分数。从中可见,PAEs 各组分在不同点位所占有的质量分数存在显著差异。在 G1 单元的 12 个点位中,DBP、DEHP 为主要成分,两者的质量分数均较高,如 G1-3、G1-5、G1-7、G1-8、G1-9、G1-11 点位 DBP 质量分数接近 90%,G1-1、G1-4、G1-6、G1-10、G1-12 点位 DEHP 质量分数近 50% ~ 60% (图 2); 而在 G2、G3 单元中有 23 个点位却以 DMP 为主,如 G2-1、G2-3 至 G2-5、G2-16 至 G2-18、G3-1 至 G3-3、G3-10 至 G3-13 点位中 DMP 质量分数在 80% ~ 90% 间(图 2)。因 DBP、DEHP 是工业生产中用量最大的两种酞酸酯,在存在污染源的情况

下,地下水中 PAEs 主要以 DBP、DEHP 为主。6 种 PAEs 中,DMP 因辛醇-水系数最小,最不易被有机质吸附,因而对于未受污染地下水而言,DMP 质量分数通常较高。因此,结合 3 个地下水单元中 DBP、DEHP 所占质量分数情况,可以判定 G1 单元地下水受到 PAEs 污染可能性大,G2、G3 单元中上述的 23 个点位受 PAEs 污染可能性小,而 G2、G3 单元剩余 16 个点位中 PAEs 以 DBP、DEHP 为主(图 2),则很可能是因为周边工业点源或垃圾填埋场等排污所致。为进一步分析地下水中 PAEs 的污染特征,明晰 PAEs 污染来源,以期为地下水 PAEs 的污染防治提供政策依据和技术支持,本研究对 3 个地下水单元中 PAEs 各组分含量的分布特征进行了深入分析。

图 2 各采样点位 PAEs 各组分的质量分数

Fig. 2 Mass fraction of different components of PAEs at each sampling site

2.2 PAEs 分布特征

因 G1 单元地下水埋深浅、土壤渗透系数大,污染物易经地表渗漏进入地下水污染环境,而对于 G2、G3 单元而言,地下水埋深大、渗透系数小,污染物易被土壤等有机质吸附,使得地下水受 PAEs 污染较轻。如 G1 单元中有 6 个点位(G1-1、G1-3、G1-7 至 G1-9、G1-11)的 $\sum$ PAEs 浓度均超过了 20 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$,而 G2、G3 单元中 $\sum$ PAEs 的最大浓度分别为 846.0 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 、555.6 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$,未达到 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 水平(图 3)。比较 3 个地下水单元 $\sum$ PAEs 及各组分的平均浓度和中值浓度水平可发现(表 2),G1 单元地下水中 $\sum$ PAEs 污染水平最高,其平均浓度为 12 512.3 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$,而 G2、G3 单元 $\sum$ PAEs 的平均浓度分别仅为 280.0 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 、187.2 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$,而且在

3 个地下水单元中,G1 单元地下水中 PAEs 各组分的平均浓度也都高于 G2、G3 单元(表 2)。值得注意的是,虽然 3 个地下水单元 $\sum$ PAEs 总体污染强度表现为 G1 > G2 > G3,但各个点位浓度水平差异较大,如 G1-1、G1-4 点位 $\sum$ PAEs 浓度均在 500 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 左右,不仅远小于同属 G1 单元中 G1-5 点位 $\sum$ PAEs 的浓度(27 403.3 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$),还小于 G2 单元中诸如 G2-12 等点位 $\sum$ PAEs 的浓度(900 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)。分析认为,这是因为 G1-5 点位因临近河北敬业集团工业园区,而受到工业排污使得地下水污染;G2-12 点位临近有多家养殖场,而 G1-1、G1-4 点位附近区域均为农田,受到人为干扰活动小,所以其 PAEs 浓度较低。以上结果说明,研究区地下水中 PAEs 的浓度分布不仅受水文地质条件的影响,

表 2 3 个地下水单元中 6 种 PAEs 检出情况¹⁾/ng·L⁻¹Table 2 Space distribution of the 6 PAEs in the three groundwater units/ng·L⁻¹

酞酸酯	山间沟谷之间河谷裂隙 孔隙水单元(G1)			滹沱河冲洪积扇顶部 孔隙水单元(G2)			滹沱河冲洪积扇中部 孔隙水单元(G3)		
	范围	均值	中值	范围	均值	中值	范围	均值	中值
DMP	0.9 ~ 1 692.2	582.3	518.5	nd ~ 293.3	52.6	29.3	nd ~ 131.3	35.6	31.3
DEP	nd ~ 142.1	17.7	4.6	nd ~ 46.3	10.4	4.4	nd ~ 33.9	6.8	3.2
DBP	26.6 ~ 24 579.0	10 623.9	8 952.2	nd ~ 530.0	68.3	9.3	0.3 ~ 263.6	62.2	9.1
BBP	nd	— ¹⁾	—	nd	—	—	nd	—	—
DEHP	28.4 ~ 2 901.2	1 262.6	1267.3	nd ~ 922.3	148.4	1.8	nd ~ 314.2	82.2	6.7
DOP	0.2 ~ 89.7	25.8	4.7	nd ~ 1.2	0.3	0.0	nd ~ 3.1	0.5	0.1
∑ PAEs	57.1 ~ 28 873.1	12 512.3	10 651.6	0.2 ~ 1 094.5	280.0	119.3	6.5 ~ 555.6	187.2	68.0

1) “—”表示无相关数据

还受人类干扰活动(工业源、地表径流、垃圾渗滤液等)的影响,并且人类干扰活动占主因。

图 3 显示了 3 个地下水单元中 PAEs 各组分的浓度水平。从中可见,3 个地下水单元中各点位 PAEs 的浓度水平和主要成分均存在着显著差异。在 G1 单元中,检出的 PAEs 中 DBP、DEHP 含量较高,其次为 DMP,PAEs 各组分的平均浓度按由大到小排列依次为:DBP > DEHP > DMP > DOP > DEP > BBP(表 2)。由图 3(a)可见,G1-3、G1-7 至 G1-9、G1-11 点位 ∑ PAEs 浓度较高,介于 19 998.4 ~ 28 873.1 ng·L⁻¹间,且 DBP 百分比占绝对优势[图 2 和图 3(a)],而 G1-10 点位 ∑ PAEs 浓度最小,仅为 57.1 ng·L⁻¹。分析认为这是由于 G1 单元地下水埋深浅(13 ~ 15 m),渗透系数大,易受地表径流、污水排放、垃圾渗滤液等污染所致。如 G1-9、G1-11 等 2 个点位分别紧邻北沟村、平山县外贸养殖场,G1-5 位于河北敬业集团工业园区(敬业化工、敬业中厚板、敬业冶炼等几家公司)内,而受到工业排污使得地下水污染;G1-3、G1-12 则因分别紧邻岗南水库、南甸河、冶河,受地表水侧向补给作用强,污染物随之进入地下水而使得邻近区域地下水受到污染,导致 PAEs 含量高,特别是工业生产活动排放的 DBP 最为明显。如 G1-3 和 G1-11 点位地下水埋深小(9 m 和 5 m),最易受地表径流和废水污染,因而该点位地下水中 ∑ PAEs 和 DBP 浓度较高[图 3(a)]。

在 G2 单元的 22 个采样点位中,DEHP 的平均浓度最高,为 148.4 ng·L⁻¹,其次为 DBP,为 68.3 ng·L⁻¹(表 2)。与 G1 单元相比,G2 单元 PAEs 总体污染水平较低($P=0$),仅有 8 个点位 ∑ PAEs 浓度超过了 200 ng·L⁻¹[图 3(b)],且除 G3-9 点位

图 3 3 个地下水单元各采样点位 PAEs 各组分的含量

Fig. 3 Concentration of the six components of PAEs at each sampling site in the three groundwater units

以 DMP 为主外,其余 7 个点位均以 DEHP 为主,其

中 G2-12 点位 DEHP 浓度最高(922.3 ng·L⁻¹), G2-8 点位 DBP 浓度最高(530.0 ng·L⁻¹). 根据污染源调查结果,发现 G2-12、G2-8 点位附近均有多家养殖场(鹿泉市新鹿养殖场、鹿泉市三升牧业发展有限公司、正定县三角奶牛场、正定县振亚养殖场)以及多家工业企业(石家庄市通天管业有限公司、河北三洋化工有限公司、正定县嘉谊泡沫厂、正定县森凯装饰板厂), G2-19、G2-22 分别临近华新制药厂、河北威远生物化工股份有限公司. 毋庸置疑,上述企业在生产活动中均会排放 PAEs,是上述点位地下水中 PAEs 的重要污染源. 值得注意的是,在 G2 单元中,G2-3、G2-16 至 G2-18 号点位远离污染源,加之地下水埋深较大,PAEs 等疏水性有机物易被有机质吸附,地下水中 PAEs 含量较低,均未超过 100 ng·L⁻¹[图 3(b)].

在 3 个地下水单元中,G3 单元因地下水埋深最大,沙粒细,土壤渗透系数最小,地下水不易被污染,因而 G3 单元地下水 $\sum$ PAEs 浓度均较低($P = 0.001$). G3 单元的 17 个点位中,仅有 5 个点位 PAEs 浓度超过 200 ng·L⁻¹,而大多数点位 PAEs 浓度仅为几个或几十个 ng·L⁻¹[图 3(c)]. 由表 2 可见,G3 单元 $\sum$ PAEs 平均浓度仅为 187.2 ng·L⁻¹,其中 DEHP、DBP 平均浓度分别为 82.2 ng·L⁻¹、62.2 ng·L⁻¹(表 2). 根据污染源的分布特征,这也与工业污染源有关. 如 G3-7 点位临近藁城市中润纸业公司、石家庄西部上庄污水处理厂; G3-16 紧邻董家庄村养殖场. 综合上述 3 个单元 PAEs 的浓度水平,可发现 G1 单元因地下水埋深最小、渗透系数最大,其受地表径流和工业点源污染影响最大,其地下水中 PAE 浓度及各组分的平均含量最高,其次为 G2 单元; G3 单元因地下水埋深大,渗透

系数小,其 PAEs 随地表径流渗入地下的可能性相对较小,所以 G3 单元地下水中 PAEs 污染水平最弱. 但 G2、G3 单元地下水 PAEs 污染水平受到人类活动影响较大,根据研究区污染源的分布情况,G2 和 G3 单元分别有 7 个和 5 个点位因受到周边点源或地表径流影响,地下水受到了 PAEs 污染,且均以 DEHP、DEP 为主.

2.3 与其他研究区污染水平的比较

通过查阅文献,发现关于我国地下水中 PAEs 的研究报道较少,除了 2009 ~ 2012 年间,Liu 等^[14] 对全国 18 个地下水饮用水源地中 PAEs 进行了集中调查外,其他均为小流域或城市部分区域的调查研究,如珠江三角洲(东莞、佛山)、淮河流域(江苏)、长江(武汉)、京津地区等(表 3). 结果显示,地下水中 PAEs 的主要成分均为 DBP、DEHP,国内地下水 PAEs 污染较重的区域主要集中在珠三角、淮河流域(表 3). 与其他研究区相比,本研究区 PAEs 的污染水平处于较为严重的水平, $\sum$ PAEs 平均浓度仅小于东莞地区(11 080 ng·L⁻¹)^[15] 和淮河流域江苏某县地下水 PAEs 浓度(12 245 ng·L⁻¹)^[16],且本研究区检出的最大 $\sum$ PAEs 浓度(28 774 ng·L⁻¹)与江苏某县癌症高发区地下水的污染水平(23 272 ng·L⁻¹)相当^[16],这说明研究区地下水中 PAEs 的污染问题应当引起足够的重视. 由于 Liu 等^[14] 的研究均是针对地下水饮用水源地开展的调查,因水源地被划分了水源保护区和隔离防护,其遭受污染小,因此 Liu 等报道的长江、黄河、海河、辽河、海河流域地下水中 PAEs 浓度尚不足以准确反映以上流域地下水 PAEs 污染水平. 为探究我国地下水中 PAEs 污染总体水平,国家应当加大投入,以便积累基础数据,为管理支撑提供必要支持.

表 3 国内地下水中 PAEs 污染水平的比较/ng·L⁻¹

Table 3 Comparison of the PAEs pollution levels of groundwater in China in literature/ng·L⁻¹

研究区	$\sum$ PAEs 浓度	平均值	主要成份	文献
海河流域	— ¹⁾	2 260 ²⁾	DEHP、DBP	[14]
辽河流域	—	763	DBP、DEHP	[14]
黄河流域	—	1 030	DBP、DEHP	[14]
长江	—	1 000	DEHP、DBP	[14]
珠江三角洲(东莞)	nd ~ 33 800	11 080	DBP、DEHP	[15]
淮河流域(江苏某县)	3 122 ~ 23 272	12 245	DEHP、DBP	[16]
汉江、长江(武汉)	72.9 ~ 1 485	719.9	DBP、DEHP	[17]
珠江三角洲佛山东部地下水	nd ~ 7 600	1 750	DEHP、DBP	[18]
京津	90 ~ 10 000	—	DEHP、DBP	[19]
宁夏银川 5 个饮用水源	1 087 ~ 7 506	—	DEHP、DBP、DEP、DMP	[20]
长江(江汉平原)	80 ~ 1 882	—	DBP、DEHP	[21]
滹沱河流域(石家庄)	nd ~ 28 774	3 127	DEHP、DBP	本研究

1) “—”表示数据无法获得; 2) 数据根据文献中图 5 的数据预估得来

2.4 健康风险评价

本研究采用 US EPA 推荐的健康风险评价模型^[22], 依据下述公式计算饮用受污染的地下水水体的终身致癌风险 (incremental lifetime cancer risk, ILCR) 和非致癌风险 (not cancer risk, NCR).

$$ILCR = \sum \frac{\rho_i \times U \times EF \times ED \times SF_i}{BW \times AT} \quad (1)$$

式中, ρ_i 为有毒物质 i 的污染浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; U 为日饮用量, 取 $1.85 \text{ L}^{[23]}$; EF 为暴露频率, 取 $365 \text{ d} \cdot \text{a}^{-1}$; ED 为暴露延时, 取 70 a ; AT 为平均暴露时间, 取 70 a ; SF_i 为有毒物质 i 通过饮水途径的致癌系数, $\text{kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$; AT 为人的预期寿命, 取 $25\,550 \text{ d}$; BW 为平均体重, 取 $64.3 \text{ kg}^{[18]}$.

$$NCR = \sum \frac{\rho_i \times U \times EF \times ED}{BW \times AT \times PFD_i} \quad (2)$$

式中, ρ_i 为有毒物质 i 的污染浓度, $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$; U 为日饮用量, 取 1.85 L ; EF 为暴露频率, 取 $365 \text{ d} \cdot \text{a}^{-1}$; ED 为暴露延时, 取 70 a ; AT 为平均暴露时间, 取 70 a ; BW 为平均体重, 取 64.3 kg ; PFD_i 为有毒物质 i

的参考剂量, $\text{kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$.

在计算过程中, 因缺少 DMP 的相关评价数据, 该文未评价, BBP 在研究区未检出, 亦不评价. 其他 4 种 PAEs 组分的风险评价参数参考 US EPA 选取^[24]. DEP、DBP、DEHP、DOP 的参考剂量分别为 0.8 、 0.1 、 0.02 、 $0.02 \text{ kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$, DEHP、DOP 的致癌斜率因子均为 $0.014 \text{ kg} \cdot \text{d} \cdot \text{mg}^{-1}$.

健康风险评估结果显示 (表 4), 研究区人群饮用受 PAEs 污染地下水的总非致癌风险指数范围为 $7.6 \times 10^{-9} \sim 1.1 \times 10^{-2}$, 均远小于 1, 可以忽略. 研究区饮用受 PAEs 污染地下水的总致癌风险指数范围为 $\text{nd} \sim 1.2 \times 10^{-6}$, 其中 G1 单元地下水总致癌风险指数最大, 其总致癌风险指数的平均值为 5.2×10^{-7} , 小于 US EPA 推荐的可接受的水平 ($10^{-6} \sim 10^{-4}$)^[25] 和国际辐射防护委员会 (ICRP) 推荐的最大可接受风险水平 (5.0×10^{-5})^[11], 但 G1-2 点位的总致癌风险指数为 1.2×10^{-6} , 具有潜在致癌风险, 应当引起重视. G2、G3 单元的总致癌风险指数较低, 均小于 US EPA 推荐的可接受水平.

表 4 水样 PAEs 总致癌风险和总非致癌风险指数

Table 4 Cancer risk index and noncancerous risk index of PAEs in the three groundwater units

地下水区域	总致癌风险			总非致癌风险		
	范围	平均水平	最高值点位	范围	平均水平	最高值点位
G1 单元	$5.0 \times 10^{-5} \sim 1.1 \times 10^{-2}$	4.9×10^{-3}	G1-3	$1.2 \times 10^{-8} \sim 1.2 \times 10^{-6}$	5.2×10^{-7}	G1-3
G2 单元	$7.6 \times 10^{-9} \sim 1.4 \times 10^{-3}$	2.3×10^{-4}	G2-12	$\text{nd} \sim 3.7 \times 10^{-7}$	6.0×10^{-8}	G2-12
G3 单元	$1.5 \times 10^{-7} \sim 5.1 \times 10^{-4}$	1.4×10^{-4}	G3-16	$\text{nd} \sim 1.3 \times 10^{-7}$	3.3×10^{-8}	G3-16
研究区	$7.6 \times 10^{-9} \sim 1.1 \times 10^{-2}$	1.3×10^{-3}	G1-3	$\text{nd} \sim 1.2 \times 10^{-6}$	1.6×10^{-7}	G1-3

3 结论

(1) 研究区内 51 个点位仅 1 个点位未检出 PAEs, DEHP、DBP 检出率和百分比比较高. 研究区地下水中 $\sum$ PAEs 范围为 $\text{nd} \sim 28\,874.2 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 与国内其他研究区相比, 研究区地下水中 PAEs 污染水平较重.

(2) G1 单元因地下水埋深浅, 渗透系数大, 易受地表径流等污染. 3 个地下水单元 PAEs 的平均污染水平总体表现为山间沟谷河谷裂隙孔隙水单元 (G1) > 溱沔河冲洪积扇顶部孔隙水单元 (G2) > 溱沔河冲洪积扇中部孔隙水单元 (G3).

(3) 3 个地下水单元中, PAEs 及各组分的空间分布存在显著差异. 在 G2、G3 单元共计 39 个点位中, 有 23 个点位地下水中的 PAEs 以 DMP 为主, 而其余点位均因临近周边污染源, 地下水中 PAEs 含量较高, 且以 DEHP、DBP 为主.

(4) 研究区人群饮用受 PAEs 污染地下水的总非致癌风险指数范围为 $7.6 \times 10^{-9} \sim 1.1 \times 10^{-2}$, 均远小于 1, 可以忽略, 总致癌风险指数范围为 $\text{nd} \sim 1.2 \times 10^{-6}$, 其中 G1 单元地下水总致癌风险指数最大, 但小于 US EPA 推荐的可接受的水平 ($10^{-6} \sim 10^{-4}$) 和国际辐射防护委员会 (ICRP) 推荐的最大可接受风险水平 (5.0×10^{-5}), 风险较小.

参考文献:

- [1] Adams W J, Biddinger G R, Robillard K A, *et al.* A summary of the acute toxicity of 14 phthalate esters to representative aquatic organisms[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 1995, **14**(9): 1569-1574.
- [2] Chen H L, Zhuang R S, Yao J, *et al.* A comparative study on the impact of phthalate esters on soil microbial activity [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2013, **91**(2): 217-223.
- [3] Liu H, Cui K Y, Zeng F, *et al.* Occurrence and distribution of phthalate esters in riverine sediments from the Pearl River Delta region, South China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, **83** (1): 358-365.

- [4] Guo X F, Wang L, Wang X D, *et al.* Occurrence and environmental risk assessment of PAEs in Weihe River near Xi'an City, China[J]. *Water Science and Technology*, 2013, **67**(5): 948-958.
- [5] Gao D W, Li Z, Wen Z D, *et al.* Occurrence and fate of phthalate esters in full-scale domestic wastewater treatment plants and their impact on receiving waters along the Songhua River in China[J]. *Chemosphere*, 2014, **95**: 24-32.
- [6] Sun J Q, Huang J, Zhang A P, *et al.* Occurrence of phthalate esters in sediments in Qiantang River, China and inference with urbanization and river flow regime [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2013, **248-249**: 142-149.
- [7] Lin S, Ku H Y, Su P H, *et al.* Phthalate exposure in pregnant women and their children in central Taiwan[J]. *Chemosphere*, 2011, **82**(7): 947-955.
- [8] Dargnat C, Blanchard M, Chevreuil M, *et al.* Occurrence of phthalate esters in the Seine River estuary (France) [J]. *Hydrological Processes*, 2009, **23**(8): 1192-1201.
- [9] Zeng F, Cui K Y, Xie Z Y, *et al.* Occurrence of phthalate esters in water and sediment of urban lakes in a subtropical city, Guangzhou, South China[J]. *Environment International*, 2008, **34**(3): 372-380.
- [10] Zeng F, Wen J X, Cui K Y, *et al.* Seasonal distribution of phthalate esters in surface water of the urban lakes in the subtropical city, Guangzhou, China[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **169**(1-3): 719-725.
- [11] 李亚松, 张兆吉, 费宇红, 等. 河北省滹沱河冲积平原地下水质量及污染特征研究[J]. *地球学报*, 2014, **35**(2): 169-176.
- [12] 费宇红, 张兆吉, 杨梅, 等. 滹沱河平原地下水有机污染健康风险评价[J]. *上海地质*, 2010, (2): 13-19.
- [13] 李亚松, 张兆吉, 费宇红, 等. 滹沱河冲积平原浅层地下水有机污染研究[J]. *干旱区资源与环境*, 2012, **26**(8): 52-56.
- [14] Liu X W, Shi J H, Bo T, *et al.* Occurrence of phthalic acid esters in source waters: a nationwide survey in China during the period of 2009-2012[J]. *Environmental Pollution*, 2013, **184**: 262-270.
- [15] 张英, 孙继朝, 陈玺, 等. 东莞地下水邻苯二甲酸酯分布特征及来源探讨[J]. *环境污染与防治*, 2011, **33**(8): 57-61.
- [16] 蒋丽佳, 许秋瑾, 梁存珍, 等. 江苏某县地下水邻苯二甲酸酯类的检测与风险评价[J]. *中国环境监测*, 2013, **29**(4): 5-10.
- [17] 王程, 刘慧, 蔡鹤生, 等. 武汉市地下水中酞酸酯污染物检测及来源分析[J]. *环境科学与技术*, 2009, **32**(10): 118-123.
- [18] 黄冠星, 孙继朝, 陈玺, 等. 佛山东部地下水酞酸酯分布特征及其成因探讨[J]. *中山大学学报(自然科学版)*, 2008, **47**(6): 70-75.
- [19] 魏爱雪, 赵国栋, 刘晓榜, 等. 京津地区地下水中有机的研究[J]. *环境科学学报*, 1986, **6**(3): 293-305.
- [20] 李玲, 田晓梅, 张霞, 等. 宁夏地区饮用水中4种邻苯二甲酸酯类污染现状研究[J]. *环境与健康杂志*, 2010, **27**(11): 984-986.
- [21] Zhang D, Liu H, Liang Y, *et al.* Distribution of phthalate esters in the groundwater of Jiangnan plain, Hubei, China [J]. *Frontiers of Earth Science in China*, 2009, **3**(1): 73-79.
- [22] U. S. Environmental Protection Agency. Guidelines for carcinogen risk assessment [R]. Washington DC: Risk Assessment Forum, 2005.
- [23] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册(成人卷)[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2013.
- [24] U. S. Environmental Protection Agency. Guidelines for exposure assessment [R]. Washington DC: Risk Assessment Forum, 1992. 4-5.
- [25] U. S. Environmental Protection Agency. 2004 Edition of the drinking water standards and health advisories[R]. Washington DC: Office of Water U. S. Environmental Protection Agency, 2004. 1-2.

CONTENTS

Spatiotemporal Distribution and Source Attribution of SOA in China	CHEN Zhuo, LIU Jun-feng, TAO Wei, <i>et al.</i> (2815)
Emission Inventory of Heavy Metals in Fine Particles Emitted from Residential Coal Burning in China	LIU Hai-biao, KONG Shao-fei, WANG Wei, <i>et al.</i> (2823)
Diurnal Variation of PM _{2.5} Mass Concentration in Beijing and Influence of Meteorological Factors Based on Long Term Date	MIAO Lei, LIAO Xiao-nong, WANG Ying-chun (2836)
Characteristics of Ozone Background Concentration in Beijing from 2004 to 2015	CHENG Nian-liang, LI Yun-ting, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i> (2847)
Online Sources about Atmospheric Fine Particles During the 70th Anniversary of Victory Parade in Shijiazhuang	ZHOU Jing-bo, LI Zhi-guo, LU Na, <i>et al.</i> (2855)
Pollution Characteristics of Inorganic Water-soluble Ions in Atmospheric Particulate Matter in Chengdu Plain	JIANG Yan, HE Guang-yan, LUO Bin, <i>et al.</i> (2863)
Observation Analysis on the Characteristics of Meteorological Elements and Pollutants During a Continuous Fog and Haze Episode in Spring in Jiaying City	 SHEN Li-juan, WANG Hong-lei, LI Li, <i>et al.</i> (2871)
Characteristics and Source Apportionment of Metals in the Dustfall of Quanzhou City	ZHANG Zong-wei, HU Gong-ren, YU Rui-lian, <i>et al.</i> (2881)
Level and the Courses of Heavy Metals and Its Risk Assessment in Indoor Dust of City: Take Guiyang as a Case	LI Xiao-yan, WANG Lang, ZHANG Shu-ting (2889)
Chemical Characteristics and Source of Acid Precipitation in Guilin	GUO Ya-si, YU Shi, LI Yong-shan, <i>et al.</i> (2897)
Assessment of Gaseous Nitrogen (NH ₃ and N ₂ O) Mitigation After the Application of a Range of New Nitrogen Fertilizers in Summer Maize Cultivation	 FAN Hui, JIANG Shan-shan, WEI Ying, <i>et al.</i> (2906)
Soil CO ₂ , CH ₄ and N ₂ O Fluxes from Alpine Meadows on the Plateau of Southern Qinghai Province During Snow Cover Period and Growing Seasons	WU Jian-guo, ZHOU Qiao-fu (2914)
Partial Pressure of Carbon Dioxide and Methane from Autumn to Winter in Xiangxi Bay of the Three Gorges Reservoir	ZHANG Jun-wei, LEI Dan, XIAO Shang-bin, <i>et al.</i> (2924)
Potential Impacts of Climate Change on Phosphorus and DO in Yuqiao Reservoir	ZHANG Chen, LIU Han-an, GAO Xue-ping, <i>et al.</i> (2932)
Land Use Structure Change and Its Control Effect of Nitrogen Output in a Small Watershed of Three Gorges Reservoir Area: A Case Study of Lanlingxi Watershed	 WU Dong, HUANG Zhi-lin, XIAO Wen-fa, <i>et al.</i> (2940)
Response of Inflow Water Quality to Land Use Pattern in Northern Watershed of Lake Erhai	XIANG Song, PANG Yan, CHU Zhao-sheng, <i>et al.</i> (2947)
Effect of Nutrient Cycles in Tributaries on the Transport of Nutrient in the Three Gorge Reservoirs: A Case Study of Caotang River	WANG Xiao-tong, LUO Guang-fu, CAO Man, <i>et al.</i> (2957)
Transient Storage Characteristics of Artificial Pool Geomorphic Structure in an Agricultural Headwater Stream	LI Ru-zhong, HUANG Qing-fei, QIAN Jing, <i>et al.</i> (2964)
Distribution Characteristics of Solute Nitrogen in the Water-Sediment of Farmland Drainage Ditch	LI Qiang-kun, HU Ya-wei, SONG Chang-ji, <i>et al.</i> (2973)
Characteristics and Influencing Factors of Soil Microbial Biomass Carbon and Nitrogen in Drawdown Area in the Three Gorges Reservoir	 CHAI Xue-si, LEI Li-guo, JIANG Chang-sheng, <i>et al.</i> (2979)
Response Behaviors of Heavy Metals at Tidal Currents Interface and Salinity Interface in the Estuary Area	LIU Jing, ZHENG Bing-hui, LIU Lu-san, <i>et al.</i> (2989)
Simulation of Multimedia Transfer and Fate of Perfluorooctane Sulfonate (PFOS) in Shenzhen Region	CUI Xiao-yu, ZHANG Hong, LUO Ji, <i>et al.</i> (3001)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Organochlorine Pesticides in Surface Sediments of Zhelin Bay in Guangdong Province, China	 WEI Ya-ning, PAN Jia-chuan, SONG Yu-mei, <i>et al.</i> (3007)
Spatial Distribution Characteristics and Source Analysis of Dissolved Organic Matter in Beiyun River	CHEN Yong-juan, HU Wei-xuan, PANG Shu-jiang, <i>et al.</i> (3017)
Distribution and Environmental Significances of Radionuclides in the Sediment of the Changyi Coastal Wetland	WANG Qi-dong, SONG Jin-ming, LI Xue-gang, <i>et al.</i> (3026)
Fecal Contamination in Laolongdong Underground River as Measured by the Sterol Biomarkers	LIAO Yu, SUN Yu-chuan, WANG Zun-bo, <i>et al.</i> (3034)
Distribution Characteristics and Pollution Status of Phthalate Esters in the Groundwater of Hutuo River Pluvial Fan	CHANG Sheng, ZHAO Xing-ru, LIU Yan, <i>et al.</i> (3041)
Impacts of Land Use on the Source of Dissolved Fatty Acids in Epikarst Spring During Rainy Season	ZHANG Mei, SUN Yu-chuan, XIE Zheng-lan, <i>et al.</i> (3049)
Mechanisms of Phosphorus Removal by Modified Zeolites Substrates Coated with Zn-LDHs in Laboratory-scale Vertical-flow Constructed Wetlands	 ZHANG Xiang-ling, HUANG Hua-ling, GUO Lu, <i>et al.</i> (3058)
Synergistic Enhancement on Oxidation of Phenol by Fenton Processes by Adding Ce ³⁺ and Cu ²⁺ Ions	ZHANG Jian-qiao, CHI Hui-zhong, SONG Yang, <i>et al.</i> (3067)
Removal of Humic Acid from Water Using Pt/biochar Electrode Reactor	DING Wen-chuan, XIANG Xing-guang, ZENG Xiao-lan, <i>et al.</i> (3073)
Generation of Graphene-titanium Dioxide Nanotubes Catalytic Board and Its Photocatalysis Capability to Degrade Pentachlorophenol	XU Qi, ZHOU Ze-yu, WANG Hong-tao (3079)
Photocatalytic Degradation Kinetics and Mechanism of Monoazo Dye Acid Yellow 17 by UV/TiO ₂ in Aqueous Solution	YANG Hai, WEI Hong-qin, HU Le-tian, <i>et al.</i> (3086)
Feasibility of Sulfur-based Autotrophic Denitrification of Photovoltaic Wastewater Containing High Fluorine	MA Hang, ZHU Qiang, ZHU Liang, <i>et al.</i> (3094)
Operation Performance of a Bioaugmented Membrane-aerated Biofilm Reactor Treating Atrazine Wastewater	LIU Chun, YU Chang-fu, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (3101)
Nitrogen Removal of Municipal Wastewater by ANAMMOX Coupled Shortcut Nitrification in Anaerobic Baffled Reactor	WU Peng, ZHANG Shi-ying, SONG Yin-ling, <i>et al.</i> (3108)
Simultaneous Ferric Reduction with Ammonia Oxidation Phenomena in Activated Sludge in Anaerobic Environment	LI Xiang, LIN Xing, YANG Peng-bing, <i>et al.</i> (3114)
Rapid Start-up of One-stage Autotrophic Nitrogen Removal Process in EGSB Reactor for Wastewater with Low Concentration of Ammonia	GU Shu-jun, FANG Fang, LI Kai, <i>et al.</i> (3120)
Phosphorus Removal Performance in EBPR System under Extra-low Dissolved Oxygen Condition	MA Juan, SONG Lu, YU Xiao-jun, <i>et al.</i> (3128)
Influence of Activated Sludge Surface Properties on Flocculating Settling and Effluent Suspend Solid	HE Zhi-jiang, ZHAO Yuan, ZHANG Yuan-kai, <i>et al.</i> (3135)
Spatial Characteristics and Environmental Risk of Heavy Metals in Typical Gold Mining Area of Shandong Province	WANG Fei, WU Quan-yuan, LÜ Jian-shu, <i>et al.</i> (3144)
Spatial Variation of Soil Heavy Metals in an E-waste Dismantling Area and Their Distribution Characteristics	ZHAO Ke-li, FU Wei-jun, YE Zheng-qian, <i>et al.</i> (3151)
Selenate Adsorption and Desorption in 18 Kinds of Chinese Soil with Their Physicochemical Properties	FENG Pu-yang, LI Zhe, ZHE Yu-yun, <i>et al.</i> (3160)
Adsorption Characteristics of Arsenite on Goethite by Flow Stirring Method	LI Xin, YANG Jun, RAO Wei, <i>et al.</i> (3169)
Preparation of Poly-hydroxy-aluminum Pillared Diatomite and Characteristics of Cu ²⁺ , Zn ²⁺ Adsorption on the Pillar in Aqueous Solutions	 ZHU Jian, LEI Ming-jing, WANG Ping, <i>et al.</i> (3177)
Preparation and NH ₄ ⁺ -N Removal Performance of a Novel Filter Substrate Made from Sludges	WANG Wen-dong, LIU Hui, ZHANG Yin-ting, <i>et al.</i> (3186)
Preparation of Nanocomposite Hydrogel and Its Adsorption of Heavy Metal Ions	ZHU Qian, LI Zheng-kui, ZHANG Yi-pin, <i>et al.</i> (3192)
Prediction of PAHs Bioavailability in Spiked Soil by Composite Extraction with Hydroxypropyl-β-cyclodextrin and Rhamnolipid	ZHANG Ya-nan, YANG Xing-lun, BIAN Yong-rong, <i>et al.</i> (3201)
Biological Effects of ZnO Nanoparticles as Influenced by Arbuscular Mycorrhizal Inoculation and Phosphorus Fertilization	JING Xin-xin, SU Zhi-zhong, XING Hong-en, <i>et al.</i> (3208)
Difference of Species Sensitivities for Aquatic Life Criteria in China and the USA	WANG Xiao-nan, YAN Zhen-guang, YU Ruo-zhen, <i>et al.</i> (3216)
Effects of Low-level Nutrition and Trace Antibiotics on the Fitness Cost of Plasmids Bearing Antibiotic Resistance	LIN Wen-fang, CHEN Sheng, WAN Kun, <i>et al.</i> (3224)
Effect of Different Nitrogen Rates on the Nitrification Potential and Abundance of Ammonia-oxidizer in Intercropping Maize Soils	LÜ Yu, ZHOU Long, LONG Guang-qiang, <i>et al.</i> (3229)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

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 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 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)

2016年8月15日 第37卷 第8期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 8 Aug. 15, 2016

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	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
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	中国国际图书贸易集团有限公司 (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: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行