

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第3期

Vol.39 No.3

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

长三角典型站点冬季大气 PM_{2.5} 中 OC、EC 污染特征 康晖, 朱彬, 王红磊, 施双双 (961)

南京北郊能见度变化中二次无机盐消光的重要作用 于超, 于兴娜, 赵天良, 张蕾, 马国煦, 王咏薇 (972)

常州夏冬季 PM_{2.5} 中无机组分昼夜变化特征与来源解析 刘佳澍, 顾远, 马帅帅, 苏亚兰, 叶招莲 (980)

天津市春季道路降尘 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中的元素特征 王士宝, 姬亚芹, 李树立, 张伟, 张蕾 (990)

北京、新乡夏季大气颗粒物中重金属的粒径分布及人体健康风险评价 张鑫, 赵小曼, 孟雪洁, 王小颖, 杨帅, 许骁鹏, 王书亭, 谷超, 王梦蕾, 任浩, 张子洋, 闫广轩, 曹治国, 王跃思 (997)

山西省武乡县城大气 PM_{2.5} 痕量重金属的生态和健康风险分析 郭墨霞, 耿红, 张晋宏, 周欢, 彭妍, 翟帅莹, 李金磊, 陈雨杉 (1004)

隧道中机动车排放颗粒物及无机元素特征 李凤华, 张衍杰, 张静, 袁远, 吴琳, 毛洪钧 (1014)

河南省 2013 年大气氨排放清单建立及分布特征 王琛, 尹沙沙, 于世杰, 卫军华, 谷幸珂, 官密秘, 张瑞芹 (1023)

城市道路行道树池裸地扬尘排放特征 李贝贝, 秦建平, 祁丽荣, 杨涛, 曲松, 石爱军, 黄玉虎 (1031)

DOC 和 CDPF 对柴油公交车颗粒物组分影响 楼狄明, 耿小雨, 宋博, 谭丕强, 胡志远, 刘继跃 (1040)

南水北调中线工程总干渠河南段原水中消毒副产物前体物变化规律 黄飘逸, 徐斌, 郭东良 (1046)

广州市流溪河水体中 6 种内分泌干扰素时空分布特征与环境风险 樊静静, 王赛, 唐金鹏, 戴玉女, 王林, 龙胜兴, 何文祥, 刘帅磊, 王佳希, 杨扬 (1053)

西藏拉萨河流域河水主要离子化学特征及来源 张清华, 孙平安, 何师意, 文化, 刘明隆, 于爽 (1065)

太子河下游河流硝酸盐来源及其迁移转化过程 李艳利, 杨梓睿, 尹希杰, 孙伟 (1076)

海南岛北部海湾沉积物重金属来源、分布主控因素及生态风险评价 曾维特, 杨永鹏, 张东强, 刘兵, 张航飞, 吴多誉, 王晓林 (1085)

天津农田重金属污染特征分析及降雨沥浸影响 许萌萌, 刘爱凤, 师荣光, 蓝靖, 田永, 赵宗山 (1095)

太湖出入湖河道与湖体水质季节差异分析 查慧铭, 朱梦圆, 朱广伟, 杨周生, 许海, 沈睿杰, 钟春妮 (1102)

春季敏感时期三峡水库典型支流沉积物-水界面氮释放特性 李欣, 宋林旭, 纪道斌, 刘德富, 苏青青, 吕林鹏, 王雄, 黄亚男, 吴庆 (1113)

不同湖泊入湖河流沉积物可转化态氮的空间分布及其影响因素 周睿, 袁旭音, Marip Ja Bawk, 于辉辉, 章琪, 唐豆豆 (1122)

水文气象因素对东南山区水库硅藻异常增殖的影响 孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽 (1129)

深水型水库热分层诱导水质及真菌种群结构垂向演替 商潘路, 陈胜男, 黄廷林, 张海涵, 康鹏亮, 王跃, 钊珍芳, 刘彤彤 (1141)

太湖竺山湾春季浮游细菌群落结构及影响因素 薛银刚, 刘菲, 孙萌, 江晓栋, 耿金菊, 滕加泉, 谢文理, 张皓, 陈心一 (1151)

分层型水源水库沉积物需氧量特性 苏露, 黄廷林, 李楠, 张海涵, 文刚, 李扬, 陈家炜, 王晓江 (1159)

污水氮浓度和 NH₄⁺/NO₃⁻ 比对粉绿狐尾藻去氮能力和植物体氮组分的影响 马永飞, 杨小珍, 赵小虎, 胡承孝, 谭启玲, 孙学成, 吴金水 (1167)

水体氮营养负荷对苦草净化能力和光合荧光特性的影响 周裔文, 许晓光, 韩睿明, 周晓红, 冯德友, 李致春, 王国祥 (1180)

化学预氧化耦合生物锰氧化对水中有机物的去除 菅之舆, 常洋洋, 王立新, 梁金松, 柏耀辉 (1188)

铜铁氧体法处理模拟染料废水 韩志勇, 韩昆, 郝昊天, 于建伟, 石宝友, 庄媛, 孔岩 (1195)

草酸根对 α-FeOOH 多相 UV-Fenton 催化能力的增效实验 苗笑增, 戴慧旺, 陈建新, 蒋柏泉, 龚烟 (1202)

生物基纳米 HZO 杂化材料的研制及其除磷特性 邱慧, 秦智峰, 刘凤玲, 梁晨, 宋明霞, 许正文, 管益东 (1212)

铁锰氧化物/生物炭复合材料对水中硝酸根的吸附特性 郑晓青, 韦安磊, 张一璇, 史良干, 张潇 (1220)

PAAm/HACC 半互穿网络水凝胶的制备及其对水中腐殖酸的吸附性能 刘泽瑛, 周少奇, 马福臻 (1233)

二氧化钛对地下水中砷硅的吸附及再生回用 马文静, 阎莉, 张建锋 (1241)

一体式絮体-超滤工艺去除腐殖酸效能与机制 李文江, 于莉芳, 苗瑞, 马百文 (1248)

中国城镇污水处理厂温室气体排放时空分布特征 闫旭, 邱德志, 郭东丽, 齐星昊, 郑仕侃, 程轲, 孙剑辉, 刘建伟 (1256)

硝化耦合 CANON 的铁锰生物净化工艺启动与运行 李冬, 曹瑞华, 杨航, 王艳菊, 吕赛赛, 张杰 (1264)

纤维载体的生物膜 CANON 反应器的启动特性 顾澄伟, 陈方敏, 李祥, 黄勇, 尤星怡, 金润, 张文静, 董石语 (1272)

DO/NH₄⁺-N 实现短程硝化过程中生物膜特性 赵青, 卞伟, 李军, 王文啸, 孙艺齐, 梁东博, 张舒燕 (1278)

AUSB 中置曝气对 CANON 颗粒污泥工艺的影响 成朔, 李冬, 张杰, 李帅, 曹瑞华, 吕赛赛 (1286)

有机碳源对启动及运行 CANON 颗粒污泥工艺的影响 李冬, 王艳菊, 吕育锋, 曹瑞华, 李帅, 张杰 (1294)

中试一体式部分亚硝化-厌氧氨氧化反应器的启动与区域特性 周正, 王凡, 林兴, 董石语, 朱强, 李祥, 黄勇 (1301)

硝化液回流比对 ABR-MBR 工艺反硝化除磷效能的影响 吕亮, 尤雯, 张敏, 吴鹏, 沈耀良 (1309)

磁性纳米铁对厌氧颗粒污泥特性及其微生物群落的影响 宿程远, 郑鹏, 卢宇翔, 袁秋红, 赵力剑, 廖黎明, 黄智 (1316)

好氧颗粒污泥系统中溶解性微生物代谢产物的特征及主要组分 杨丹, 刘东方, 杜丽琼, 黄文力 (1325)

环丙沙星对膜生物反应器中微生物群落及抗性基因的影响 戴琦, 刘锐, 梁玉婷, 舒小铭, 徐灿灿, 陈昌军 (1333)

CEM-UF 组合膜-硝化/反硝化系统处理低 C/N 废水及种群结构分析 邢金良, 张岩, 陈昌明, 张博康, 郭威, 马翔山 (1342)

磷对混养反硝化污泥活性和微生物群落结构的影响 王佩琦, 周伟丽, 何圣兵, 黄荣振 (1350)

甲烷厌氧氧化协同硝酸盐还原菌群驯化及其群落特征 薛松, 张梦竹, 李琳, 刘俊新 (1357)

城市尾水排海过程中微生物及主要致病菌扩散规律 徐爱玲, 牛成洁, 宋志文, 郎秀璐, 郭明月 (1365)

氧四环素的微生物燃料电池处理及微生物群落 严伟富, 肖勇, 王淑华, 丁蕊, 赵峰 (1379)

近 30 年余干县耕地土壤碳氮比时空变异特征及其影响因素 江叶枫, 钟珊, 李婕, 王澜珂, 郭熙 (1386)

中宁枸杞土壤碳组分分布特征及其空间异质性 王幼奇, 赵云鹏, 白一茹, 张兴 (1396)

滨海滩涂围垦区不同围垦年限土壤酶活性变化及其与理化性质关系 解雪峰, 濮励珊, 王琪琪, 朱明, 王小涵 (1404)

青藏高原中东部表层土壤中多环芳烃的分布特征、来源及生态风险评价 周雯雯, 李军, 胡健, 朱兆洲 (1413)

基于 UNMIX 模型的矿区周边农田土壤重金属源解析 卢鑫, 胡文友, 黄标, 李元, 祖艳群, 湛方栋, 邝荣禧 (1421)

铁锰双金属材料在不同 pH 条件下对土壤 As 和重金属的稳定化作用 费琦, 阎秀兰, 李永华 (1430)

我国 3 个城市人体血清中新型溴代阻燃剂水平趋势及分布特征 王庆华, 袁浩东, 金军, 李鹏, 马玉龙, 王英 (1438)

《环境科学》征订启事(979) 《环境科学》征稿简则(996) 信息(1022, 1064, 1293)

我国 3 个城市人体血清中新型溴代阻燃剂水平趋势及分布特征

王庆华^{1,2}, 袁浩东¹, 金军^{1,3*}, 李鹏¹, 马玉龙¹, 王英¹

(1. 中央民族大学生命与环境科学学院, 北京 100081; 2. 国家信息中心, 北京 100045; 3. 北京市食品环境与公共健康工程研究中心, 北京 100081)

摘要: 本研究检测分析了我国吉林省伊通满族自治县(YT)、湖南省怀化市(HH)、四川省甘孜藏族自治州(GZ)3个城市5个年龄段(≥ 60 、50~59、40~49、30~39、20~29岁)人体混合血清中六溴苯(hexabromobenzene, HBB)、五溴甲苯(pentabromotoluen, PBT)、五溴苯(pentabromophenyl, PBBz)、四溴对二甲苯(tetrabromo-*p*-xylene, PTBX)等4种新型溴代阻燃剂(NBFRs)的含量水平。PBBz、PBT和HBB在人体血清中的检出率为100%。在3个城市中,NBFRs总含量、HBB含量、PBT含量、PBBz含量(除GZ外)均在年轻人群中有所升高的趋势。在5个年龄段中,YT和HH均有明显的主要污染物,但GZ首要污染物不明显且4种NBFRs含量占比在5个年龄段中基本稳定。3个城市人体血清中NBFRs在5个年龄段中的组成分布呈现出不同的趋势,表明不同地区的污染来源不同。其中,工业较为发达地区(YT和HH)人体血清中NBFRs总含量高于欠发达地区(GZ)的水平。

关键词: 新型溴代阻燃剂; 人体血清; 年龄段; 含量; 暴露

中图分类号: X171.5; R994.6 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)03-1438-07 DOI: 10.13227/j.hjkk.201709038

Concentration and Distribution of Novel Brominated Flame Retardants in Human Serum from Three Chinese Cities

WANG Qing-hua^{1,2}, YUAN Hao-dong¹, JIN Jun^{1,3*}, LI Peng¹, MA Yu-long¹, WANG Ying¹

(1. College of Life and Environmental Sciences, Minzu University of China, Beijing 100081, China; 2. State Information Center, Beijing 100045, China; 3. Beijing Engineering Research Center of Food, Environment and Public Health, Beijing 100081, China)

Abstract: Four novel brominated flame retardants (NBFRs), hexabromobenzene (HBB), pentabromotoluen (PBT), pentabromophenyl (PBBz), and tetrabromo-*p*-xylene (PTBX), were found in human serum samples pooled by donor age (≥ 60 , 50-59, 40-49, 30-39, and 20-29 years old) and supplied by Yitong (YT, Jilin Province), Ganzi (GZ, Sichuan Province), and Huaihua (HH, Hunan Province). PBBz, PBT, and HBB were found in each of the pooled samples. The total NBFRs concentration in YT and HH were higher than the concentration found in GZ. The concentrations of total NBFRs, HBB, PBT, and PBBz (except GZ) were elevated in young people. In both YT and HH, the main pollutants were found in the five age groups; however, the main pollutants in GZ were not obvious, and the concentration ratios of four of the NBFRs were basically stable in the five age groups. The distribution of NBFRs in human serum in the three cities showed different trends in the five age groups, which indicated different sources of pollution in different areas. The total concentrations of NBFRs in the industrially developed areas (YT and HH) were higher than that in the less developed areas (GZ).

Key words: novel brominated flame retardants (NBFRs); human serum; age group; level; exposure

六溴联苯醚和七溴联苯醚(商用八溴联苯醚)、四溴联苯醚和五溴联苯醚(商用五溴联苯醚)、十溴联苯醚(商业混合物,C-十溴联苯醚)于2009年被列入《斯德哥尔摩公约》16种新增的POPs^[1]。我国于2014年将上述化学品(除十溴联苯醚外)列入需要控制的POPs。新型溴代阻燃剂(novel brominated flame retardants, NBFRs)包括六溴苯(hexabromobenzene, HBB)、五溴甲苯(pentabromotoluen, PBT)、五溴苯(pentabromophenyl, PBBz)、四溴对二甲苯(2,3,5,6-tetrabromo-*p*-xylene, PTBX)作为多溴联苯醚

(polybrominated diphenyl ethers, PBDEs)的替代品在纸张制品、木制品、编织物、橡胶、电子和塑料制品中广泛使用^[2]。据文献报道,目前HBB在中国和日本均有生产,在欧洲国家和美国没有生产记录^[2,3]。2001年,日本在商业品中使用约350 t HBB^[4]。PBT在中国、美国和以色列均有生产,全

收稿日期: 2017-09-05; 修订日期: 2017-10-30

基金项目: 中央民族大学少数民族事业发展协同创新中心项目

作者简介: 王庆华(1984~),男,博士研究生,助理研究员,主要研究方向为持久性有机污染物, E-mail: jordan198409290034@163.com

* 通信作者, E-mail: junjin3799@126.com

球年产量大约为 1 000 ~ 5 000 t^[5,6]. PBT(商品标签 FR-105)在美国使用较为广泛^[7]. 有研究显示,长期的 PBT 暴露可对肝脏、肾脏和甲状腺产生一定的影响^[8]. 已有研究中对于 PBBz 和 PTBX 的生产和使用的报道较少.

NBFRs 已在不同的环境介质和生物介质中持续检出,逐步受到各国研究人员的关注. 吴辉等^[9]的研究发现,山东潍坊和广西南宁大气中 \sum_3 NBFRs (PBT、PEBE 和 HBB) 含量的算术平均值为 $4.2 \times 10^3 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $11.9 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$. Möller 等^[10]对东南亚海洋上空大气中 NBFRs 进行观测发现,东印度群岛大气中 HBB 为 $26 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$. Gorga 等^[11]对西班牙污水污泥的检测发现 HBB 和 PEBE 含量(以干重计)分别为 $0.44 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $0.25 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. 对我国云南树皮中 NBFRs 的研究发现^[12] PBBz、PBT 和 HBB 在树皮中的平均含量(以脂重计)分别为 0.89 、 0.24 和 $0.43 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. Sühning 等^[13]发现 NBFRs 存在于欧洲鳗鲡肌肉组织中. Saini 等^[14]在清洗衣物的水中也检测到了 PBBz、PBT 和 HBB. 但是对于人体血清中 NBFRs 含量水平的报道和对我国不同年龄段人体血清中 NBFRs 含量趋势的分析较为少见. 为了解 NBFRs 在人体血清中的水平趋势以及在不同地区不同年龄段人群中的分布特征,本研究选取位于东北地区的吉林省伊通满族自治县(YT)、中部地区的湖南省怀化市(HH)、西部地区四川省甘孜藏族自治州(GZ)为采样点. 通过对这 3 个城市人体血清中 4 种 NBFRs (PTBX、PBBz、PBT 和 HBB) 在 5 个年龄段(20 ~ 29、30 ~ 39、40 ~ 49、50 ~ 59、 ≥ 60 岁)中含量的分析,探寻 NBFRs 在不同年龄段人体血清中的含量趋势及分布特征.

1 材料与方法

1.1 采样信息

2014 年 4 ~ 10 月,在 3 个选定城市的医院共收集了 877 份血清样本(女性 434 份,男性 443 份,见表 1). 在捐赠者和医院的同意下,从定期体检人群的剩余血清中提取实验所需要的样本. 以样本的年龄(≥ 60 、50 ~ 59、40 ~ 49、30 ~ 39、20 ~ 29 岁)和性别为依据,将每个城市的样本分为 10 组. 从每一个单体样本中取 0.5 mL 血清进行混合,再从混合均匀的样本中取 3 mL 血清作为该年龄段该性别的混合样本. 3 个城市共计 30 份混合样本,见表 1.

1.2 仪器与试剂

6890N-5975 气相色谱-质谱联用仪(Agilent, USA)、R-25 型旋转蒸发仪(Buchi, Swiss)、Aanti. J-25 高速离心机(Beckman, USA)、BF2000 氮气吹干仪(北京八方世纪科技有限公司)、AB204-L 型电子分析天平(Mettler Toledo, Swiss)、Milli-Q 超纯水系统(Millipore, USA).

正己烷(农残级)、二氯甲烷(色谱级)、甲基叔丁基醚(色谱级)、异丙醇(色谱级)、丙酮(色谱级)、甲苯(色谱级, J. T. Baker, USA). 正壬烷($\geq 99\%$, Alfa Aesar, USA). 中性氧化铝($100 \mu\text{m}$, Sigma-Aldrich, USA),使用前于 450°C 马弗炉中烘烤 4 h,冷却后加入 5% (质量分数)去离子水活化. 中性硅胶($75 \sim 150 \mu\text{m}$, Mreck, Germany),使用前用 2 倍体积的二氯甲烷洗涤后,在 130°C 烘箱中烘烤 12 h,冷却后加入 5% (质量分数)去离子水、无水硫酸钠(分析纯,国药集团化学试剂有限公司),使用前于 450°C 马弗炉中烘烤 4 h. 高纯氮气、氦气(北京诚为信公司)、甲烷(北京氮普公司)、超纯水(自制,美国 Millipore 公司超纯水处理系统). 标准样品: $^{13}\text{C}_{12}$ -BDE-139、 $^{13}\text{C}_{12}$ -HBB (Accustandard, USA).

1.3 样品处理与分析

将混合血清样品从 -20°C 冰箱中取出待温度恢复至常温,混合均匀后精确取出 3 mL 样品于 15 mL 刻度试管中,加入 $^{13}\text{C}_{12}$ -HBB 和 $^{13}\text{C}_{12}$ -BDE-139,并依次加入 1 mL 盐酸($6 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$)、6 mL 异丙醇、4 mL 正己烷-甲基叔丁基醚混合溶液(1:1,体积比),混合均匀后静置过夜. 将样品于 $3000 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 转速下离心 3 min,将上层有机溶液转移至 15 mL 刻度试管中,下层水相用 4 mL 正己烷-甲基叔丁基醚混合溶液(1:1,体积比)萃取两次,离心后将上层有机相并入刻度试管中,并将合并后的有机相氮吹浓缩至 5 mL,加入 4 mL KCl 水溶液(1%,质量分数),混匀后静置过夜. 将样品于 $3000 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 转速下离心 3 min,将上层有机溶液转移至 10 mL 离心管中(事先称重),下层水相用 4 mL 正己烷-甲基叔丁基醚混合溶液(1:1,体积比)萃取两次,离心后将上层有机相并入离心管中,并将合并后的有机相氮吹浓缩,重力法测定样品脂肪含量. 向样品中加入 4 mL 正己烷、2 mL KOH 溶液 [$0.5 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$,采用己醇-水混合溶液(1:1,体积比)作为溶剂],混合均匀后静置过夜. 将样品于 $3000 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 转速下离心 3 min,将上层有机溶液转移至 10 mL 离心管中,下

表 1 我国 3 个城市人体血清采样信息

Table 1 Sampling information for the three Chinese cities

年龄/岁	项目	怀化	伊通	甘孜	3 个城市合计
≥60	采样数(男性/女性)	40/40	40/40	10/10	90/90
	中间值	68	67	65	
	算术平均值	69	69	66	
	标准偏差	7	8	6	
	最小值	60	60	60	
	最大值	85	88	77	
50 ~ 59	采样数(男性/女性)	61/59	36/49	10/10	107/118
	中间值	54	54	56	
	算术平均值	54	54	55	
	标准偏差	3	3	3	
	最小值	50	50	50	
	最大值	59	59	59	
40 ~ 49	采样数(男性/女性)	78/71	37/30	10/10	115/111
	中间值	45	46	44.5	
	算术平均值	44	45	45	
	标准偏差	3	3	3	
	最小值	40	40	40	
	最大值	49	49	49	
30 ~ 39	采样数(男性/女性)	48/33	19/22	10/10	77/65
	中间值	35	36	35	
	算术平均值	34	35	35	
	标准偏差	3	3	2	
	最小值	30	30	30	
	最大值	39	39	39	
20 ~ 29	采样数(男性/女性)	37/34	7/6	10/10	54/50
	中间值	26	26	24	
	算术平均值	26	25	24	
	标准偏差	3	2	3	
	最小值	20	22	20	
	最大值	29	28	29	

层水相用 3 mL 正己烷萃取两次,离心后将上层有机相并入离心管中,并将合并后的有机相氮吹浓缩至 1 mL。将浓缩液用凝胶渗透色谱柱(gel permeation chromatography, GPC)净化,采用 200 mL 正己烷-二氯甲烷混合溶液(1:1, 体积比)洗脱,洗脱液依次进行旋转蒸发和氮吹浓缩至 1 mL 后,采用酸性硅胶柱进行净化除杂(填充物从下到上依次为玻璃棉、0.1 g 中性硅胶、0.5 g 酸性硅胶、1.5 g 无水硫酸钠),采用 12 mL 正己烷-二氯甲烷混合溶液(1:1, 体积比)洗脱,将洗脱液浓缩后用正壬烷定容至 100 μ L,准备 GC-MS 分析。

采用 6890N-5975 气相色谱-质谱联用仪(Agilent, USA)进行物质检测。选用 DB-5MS 色谱柱(30 m \times 0.25 mm i. d., 膜厚 0.1 μ m, J&W Scientific)。升温程序:初始温度为 100 $^{\circ}$ C,保持 2 min;4 $^{\circ}$ C \cdot min $^{-1}$ 升至 300 $^{\circ}$ C 后保持 12 min。载气为高纯氮气,柱流速 1 mL \cdot min $^{-1}$ 。进样口温度为 290 $^{\circ}$ C,进样量为 1 μ L,采用不分流进样。质谱条件:离子

源(CI)和四极杆温度均为 150 $^{\circ}$ C;质谱运行模式为 SIM。

1.4 质量控制与保证

本实验所使用的所有玻璃器皿均在使用前用超纯水清洗 30 遍以上,烘干后使用正己烷润洗 5 遍,保证样品不受污染。玻璃采血管、刻度试管、离心管、胶头滴管等均为一次性使用且使用前清洗;其它玻璃器皿清洗、烘干后需在马弗炉内 450 $^{\circ}$ C 高温灼烧 4 h 以上,再用有机溶剂润洗。在样品处理和分析中,每个城市各随机设置一个平行样本和一个空白样本。

本实验利用同位素稀释法定量测定 13 C 标记目标化合物,并用同位素内标法定量测定其他目标化合物。所有分析物校正曲线的相关系数均 >0.9999 。定量限含量为 10 倍信噪比。在人体血清中 NBFs 定量限为 0.1 ~ 0.4 pg。空白对照样品中未检出目标化合物。标记的 13 C $_{12}$ -HBB 和 13 C $_{12}$ -BDE-139 回收率分别为 67% ~ 92% 和 88% ~ 98%。

1.5 统计分析

采用 SPSS 19.0 (USA, IBM) 进行数据统计与分析. 采用置信区间 (Confidence interval, CI) 分析确定样本含量的置信度和置信范围. 通过独立样本 *T* 检验分析样本含量性别间的差异性.

2 结果与讨论

2.1 人体血清中 NBFRs 水平

对 3 个城市 (YT、HH、GZ) 5 个年龄段 (20 ~ 29、30 ~ 39、40 ~ 49、50 ~ 59、≥60 岁) 不同性别人群混合血清中 PTBX、PBBz、PBT 和 HBB 进行检测分析, 除 PTBX 检出率为 80%, 其余 3 种 NBFR 同族体的检出率均为 100%, 本文对于未检出的样本含量在进行统计分析时采用定量限的一半代替. 3 个城市人体血清中 4 种 NBFRs 总含量的算术平均值 (以脂重计, 下同) 为 $12 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (95% CI: 6.9 ~ 17), 含量从高到低依次为伊通 ($16 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 95% CI: 8.4 ~ 24)、怀化 ($15 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 95% CI: 2.7 ~ 28)、甘孜 ($3.9 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 95% CI: 3.1 ~ 4.7), 见图 1. 从性别来看, 3 个城市男性和女性人体血清中 NBFRs 含量均无明显差异, 反映出这 3 个城市不同性别人群对于 NBFRs 暴露程度相仿. 经独立样本 *T* 检验发现伊通 ($P = 0.901$)、怀化 ($P = 0.379$)、甘孜 ($P = 0.067$) 这 3 个城市人体血清中 4 种 NBFRs 总含量的算术平均值在性别上无显著性差异. 从 NBFRs 同族体来看, 伊通、甘孜和怀化人体血清中 HBB 平均含量均高于 2006 年天津的水平 ($0.46 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)^[15], 伊通、甘孜和怀化人体血清中 PBBz 平均含量低于 2011 年潍坊的水平 ($1.4 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)^[16], 见表 2. 通过对这 3 个城市人体血清中 15 种 PCBs (PCBs 77、81、101、105、114、118、123、126、156、157、167、169、170、180 和 189) 的检测发现, 伊通和怀化人体血清中 NBFRs 总含量高于这两个城市人体血清中 PCBs 含量 (伊通: $15 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$; 怀化: $10 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$). 我国部分城市 HBB 平均含量不仅高于之前其他研究人员的报道水平^[15], 而且 NBFRs 总含量还高于已被列入 POPs 公约的 PCBs 含量, 说明我国人体中 NBFRs 的污染呈现出上升的趋势, 需要进一步持续地关注.

2.2 人体血清中 NBFRs 年龄趋势

我国 3 个城市 5 个年龄段 NBFRs 平均含量如图 2 所示. 尽管 3 个城市 NBFRs 平均含量最高值出现在不同年龄段, 但是均出现 20 ~ 29 岁年龄段平均水平高于 30 ~ 39 岁年龄段. 伊通、甘孜和怀化

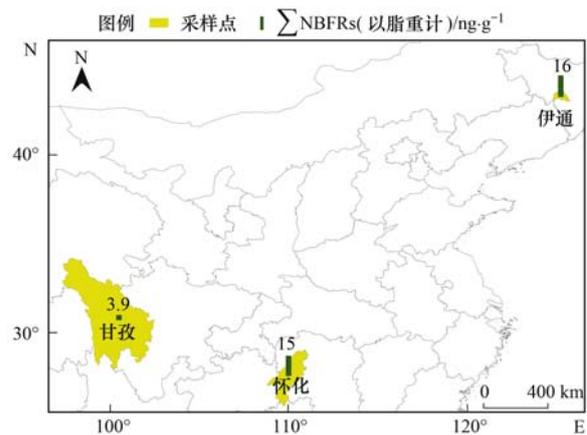


图 1 我国 3 个城市人体血清中 4 种 NBFRs 总含量

Fig. 1 Arithmetic mean concentrations of total NBFRs in human serum samples from three Chinese cities

表 2 我国 3 个城市人体血清中 NBFRs 含量¹⁾ (以脂重计)/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

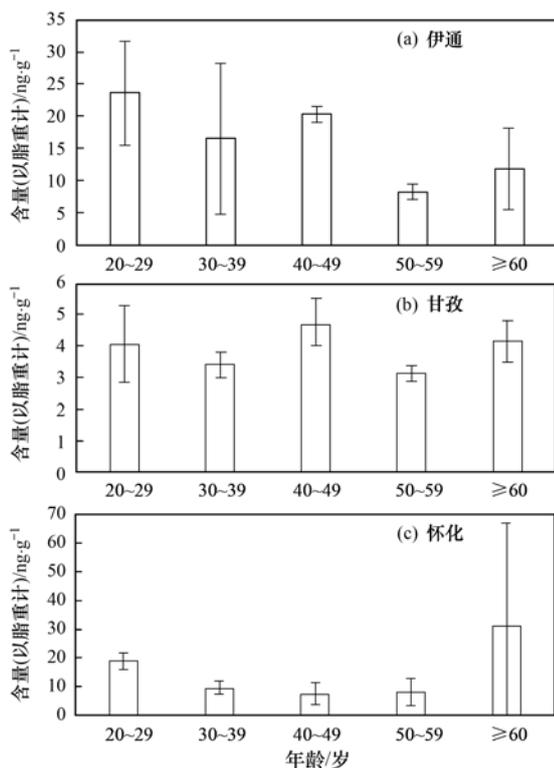
Table 2 NBFRs concentrations in pooled human serum samples from three Chinese cities (lipid)/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

城市	项目	PTBX	PBBz	PBT	HBB
伊通	中间值	0.61	0.35	2.02	10.96
	算术平均值	0.23	0.35	2.79	12.80
	标准偏差	0.18	0.15	2.79	8.19
	最小值	ND	0.16	0.47	3.80
	最大值	0.77	0.61	9.23	28.41
甘孜	中间值	1.71	0.23	0.80	0.90
	算术平均值	1.60	0.23	1.00	1.08
	标准偏差	0.58	0.03	0.48	0.56
	最小值	0.44	0.19	0.49	0.56
	最大值	2.34	0.30	1.92	2.36
怀化	中间值	5.20	0.26	0.19	3.54
	算术平均值	5.62	0.31	0.31	8.91
	标准偏差	1.67	0.14	0.29	14.11
	最小值	3.86	0.19	0.12	0.39
	最大值	8.14	0.67	1.02	47.21

1) ND 表示未检出

20 ~ 29 岁年龄段 NBFRs 含量分别为 24、4.0 和 $19 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 均高于这 3 个城市 30 ~ 39 岁年龄段 NBFRs 含量 (伊通: $17 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$; 甘孜: $3.4 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$; 怀化: $10 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$). 3 个城市平均 NBFRs 含量由最低值 $9.9 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (30 ~ 39 岁年龄段) 上升至 $16 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (20 ~ 29 岁年龄段).

从 3 个城市分别来看, HBB、PBT 和 PBBz (除甘孜外) 均呈现出在年轻人群中升高的趋势, 见图 3. 甘孜人体血清中 HBB 最低值出现在 50 ~ 59 岁年龄段 ($0.70 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$), 最高含量出现在 20 ~ 29 岁年龄段 ($1.5 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$). 在伊通, HBB 最高值为 $21 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (20 ~ 29 岁年龄段) 为最低值 $6.0 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (≥60 岁年龄段) 的 3 倍. 怀化 20 ~ 29 岁年龄段 HBB



柱状图为算数平均值, 误差线为标准偏差, 下同。

图2 我国3个城市5个年龄段人体血清中NBFrs平均含量

Fig. 2 Arithmetic mean concentrations of total NBFrs in human serum samples from three Chinese cities pooled by donor age

含量为 $12 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 是 50~59 岁年龄段 ($2.0 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$) 的 6 倍. 伊通 PBT 含量从 50~59 岁年龄段的 $0.60 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 上升至 30~39 岁年龄段的 $3.7 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. 甘孜人体血清中 PBT 最低含量出现在 50~59 岁年龄段 ($0.63 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$), 最高含量为 $1.3 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ (20~29 岁年龄段). 在怀化, 人体血清中 PBT 含量从 $0.15 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ (50~59 岁年龄段) 上升至 $0.44 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ (20~29 岁年龄段). 在伊通, PBBz 从最低值 $0.21 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ (≥ 60 岁年龄段) 上升至 $0.46 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ (20~29 岁年龄段). 怀化 PBBz 从最低值 $0.22 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ (50~59 岁年龄段) 上升至最高值 $0.47 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ (20~29 岁年龄段). 近年来, 由于 POPs 公约对 PBDEs 等阻燃剂的限制, 可能导致我国 NBFrs 使用量的上升, 而年轻人更多地暴露于含有 NBFrs 的物品可能是 HBB、PBT 和 PBBz 含量在年轻人中升高的原因.

虽然 NBFrs 还未被列入 POPs 公约, 但相关研究显示 NBFrs 具有类似 POPs 的性质. 有研究指出, 与 PBDEs 和 HBCDs (六溴环十二烷) 相比 NBFrs 具有更高的蒸气压更易于蒸发至大气中^[3,17], NBFrs 如 PBT 已具有类似 PBDEs 一样在

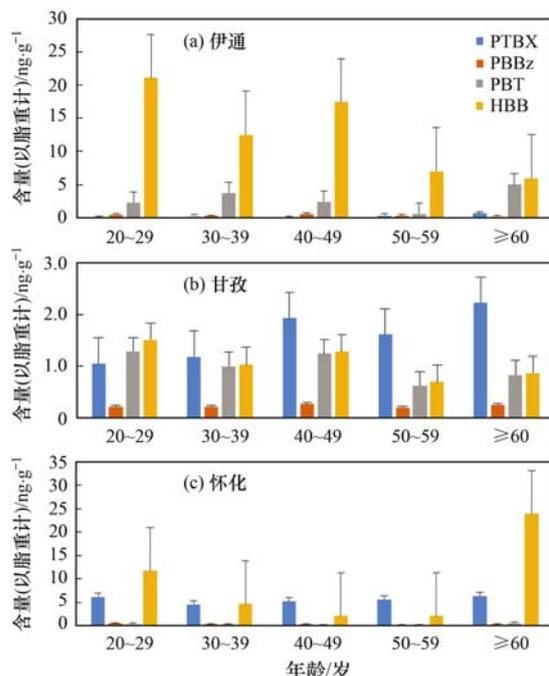


图3 我国3个城市5个年龄段人体血清中4种NBFrs平均含量

Fig. 3 Arithmetic mean concentrations of PTBX, PBBz, PBT, and HBB in human serum from three Chinese cities pooled by donor age

大气中远距离迁移的能力^[18]. Wu等^[19]通过水生生物实验研究证实 HBB 具有很强的生物富集特性. HBB 在含氧的土壤半衰期少于 40 d, 而在无氧环境下半衰期超过 100 d^[20]. Harju等^[8]的研究显示, 虽然没有观测到 PBT 的直接毒理证据, 但是观察到了肝脏、肾脏和甲状腺的组织学变化. 何畅^[21]通过对黄河上游沉积物中 NBFrs 的含量分析, 将 PBBz 和 PBT 列为潜在的 POPs. 由此可见具有潜在 POPs 性质的 NBFrs 在我国年轻人群血清中呈现出含量升高的趋势, 可能会造成对人体环境健康风险增加的趋势, 因此值得进一步地关注和深入研究.

2.3 人体血清中 NBFrs 组成分布

从3个城市分别来看, 伊通和怀化在5个年龄段均有占主要成分的 NBFrs, 但甘孜首要污染物不明显且4种 NBFrs 占比在5个年龄段中基本稳定, 见图3. 甘孜人体血清中 NBFrs 水平相对于伊通和怀化来说要低一个数量级, 从5个年龄段结构组成来看甘孜4种 NBFrs 占比保持稳定, 同时也发现甘孜 HBB、PBT 含量在5个年龄段上与伊通和怀化都具有在年轻人群中升高的趋势. 据此本研究认为, 尽管甘孜较少受到工业的直接污染, 但 NBFrs 在不同年龄段的含量特征也反映了当前的污染趋势, 其 NBFrs 的污染源可能主要来自于外部地区大气的远距离输送. 在伊通, 5个年龄段中 HBB 含量占

比均位于首位,均超过 50%。HBB 在怀化 3 个年龄段(20~29、30~39、≥60 岁)成为首要污染物,PTBX 成为其余两个年龄段占比最大的 NBFRs(40~49、50~59 岁)。

NBFRs 的污染主要来自于该种物质的生产和消费^[3,22]。据报道,我国浙江杭州和辽宁沈阳部分工厂有 HBB 的生产^[3],山东寿光市龙发化工有限公司每年各生产 HBB 和 PBT 600 t^[2]。有研究表明,工业热加工过程比如钢铁生产、固体废物焚烧是多溴苯污染的来源^[23~25]。采样点伊通位于我国东北的老工业基地,怀化是我国中部省份湖南省面积最大的地级市,甘孜在我国西部地区青藏高原东南缘。长期以来,我国的东北和中部地区经济发展程度要高于西部地区。2010 年,我国东、中、西部地区人均 GDP 达到工业化中期阶段标准的地级行政单元分别占全国的 38.21%、31.71%、30.08%;东、中、西部地区人均 GDP 达到工业化后期阶段标准地级行政单元分别占全国的 65%、20% 和 15%^[26]。2014 年,伊通、怀化、甘孜 3 个城市 GDP 分别为 1 289 亿元^[27]、1 181 亿元^[28]、207 亿元^[29]。工业化的快速发展可能是导致伊通、怀化人体血清中 NBFRs 含量较高,而甘孜水平较低的原因。伊通人体血清中高含量水平的 HBB 还可能来自与其相毗邻的辽宁沈阳 HBB 工厂。

3 结论

本研究表明,3 个城市人体血清中 NBFRs 总含量在性别上无显著性差异。NBFRs 总含量从高到低依次为伊通、怀化、甘孜,并且伊通和怀化人体血清中 NBFRs 总含量高于这两个城市 PCBs 的含量。3 个城市 NBFRs 含量均呈现出在年轻人群中上升的趋势。伊通和怀化在 5 个年龄段均有占主要成分的 NBFRs,但甘孜首要污染物不明显且 4 种 NBFRs 占比在 5 个年龄段中基本稳定。位于我国西部地区的甘孜人体血清中 NBFRs 含量低于处于东北地区的伊通和中部地区的怀化,这可能是由于我国东北和中部地区经济发展水平和工业化进程高于西部地区所致。

参考文献:

- [1] UNEP. The new POPs under the Stockholm Convention [OB/EL]. <http://www.pops.int/TheConvention/ThePOPs/TheNewPOPs/tabid/2511/Default.aspx>, 2017-08-16.
- [2] Covaci A, Harrad S, Abdallah M A E, et al. Novel brominated flame retardants: a review of their analysis, environmental fate and behaviour [J]. *Environment International*, 2011, **37**(2): 532-556.
- [3] Venier M, Ma Y N, Hites R A. Bromobenzene flame retardants in the Great Lakes atmosphere [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(16): 8653-8660.
- [4] Watanabe I, Sakai S I. Environmental release and behavior of brominated flame retardants [J]. *Environment International*, 2003, **29**(6): 665-682.
- [5] Gauthier L T, Hebert C E, Weseloh D V C, et al. Current-use flame retardants in the eggs of herring gulls (*Larus argentatus*) from the Laurentian Great Lakes [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(13): 4561-4567.
- [6] World Health Organization. Flame retardants: a general introduction [M]. Geneva: Environmental Health Criteria, 1997.
- [7] Li P, Jin J, Wang Y, et al. Concentrations of organophosphorus, polybromobenzene, and polybrominated diphenyl ether flame retardants in human serum, and relationships between concentrations and donor ages [J]. *Chemosphere*, 2017, **171**: 654-660.
- [8] Harju M, Heimstad E S, Herzke D, et al. Current state of knowledge and monitoring requirements, emerging "new" brominated flame retardants in flame retarded products and the environment [R]. Oslo: SFT: Statens forurensningsutvalg, Norwegian Pollution Control Authority, 2009.
- [9] 吴辉, 金军, 王英, 等. 典型地区大气中多溴联苯醚和新型溴代阻燃剂的水平及组成分布 [J]. *环境科学*, 2014, **35**(4): 1230-1237.
Wu H, Jin J, Wang Y, et al. Comparative study of the level and distribution of Polybrominated Diphenyl ethers and new brominated flame retardants in the atmosphere of typical urban [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(4): 1230-1237.
- [10] Möller A, Xie Z Y, Cai M H, et al. Brominated flame retardants and dechlorane plus in the marine atmosphere from Southeast Asia toward Antarctica [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(6): 3141-3148.
- [11] Gorga M, Martínez E, Ginebreda A, et al. Determination of PBDEs, HBB, PBEB, DBDPE, HBCD, TBBPA and related compounds in sewage sludge from Catalonia (Spain) [J]. *Science of the Total Environment*, 2013, **444**: 51-59.
- [12] Yuan H D, Jin J, Bai Y, et al. Concentrations and distributions of polybrominated diphenyl ethers and novel brominated flame retardants in tree bark and human hair from Yunnan Province, China [J]. *Chemosphere*, 2016, **154**: 319-325.
- [13] Sühling R, Freese M, Schneider M, et al. Maternal transfer of emerging brominated and chlorinated flame retardants in European eels [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **530-531**: 209-218.
- [14] Saini A, Thaysen C, Jantunen L, et al. From clothing to laundry water: investigating the fate of phthalates, brominated flame retardants, and organophosphate esters [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50**(17): 9289-9297.
- [15] 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.
- [16] Wang Y, Xu M, Jin J, et al. 2014. Concentrations and relationships between classes of persistent halogenated organic

- compounds in pooled human serum samples and air from Laizhou Bay, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **482-483**: 276-282.
- [17] Möller A, Xie Z Y, Caba A, *et al.* Occurrence and air-seawater exchange of brominated flame retardants and Dechlorane Plus in the North Sea[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **46**: 346-353.
- [18] Ezechiú Š M, Covino S, Cajthaml T. Ecotoxicity and biodegradability of new brominated flame retardants: a review [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2014, **110**: 153-167.
- [19] Wu J P, Guan Y T, Zhang Y, *et al.* Several current-use, non-PBDE brominated flame retardants are highly bioaccumulative: evidence from field determined bioaccumulation factors [J]. *Environment International*, 2011, **37**(1): 210-215.
- [20] Nyholm J R, Lundberg C, Andersson P L. Biodegradation kinetics of selected brominated flame retardants in aerobic and anaerobic soil [J]. *Environmental Pollution*, 2010, **158**(6): 2235-2240.
- [21] 何畅. 黄河上游环境介质中有机卤素化合物水平及分布规律的研究[D]. 北京: 中央民族大学, 2014.
- [22] Salamova A, Hites R A. Brominated and chlorinated flame retardants in tree bark from around the globe[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47**(1): 349-354.
- [23] Öberg T. Halogenated aromatics from steel production: results of a pilot-scale investigation [J]. *Chemosphere*, 2004, **56**(5): 441-448.
- [24] Rupp S, Metzger J W. Brominated-chlorinated diphenyl ethers formed by thermolysis of polybrominated diphenyl ethers at low temperatures [J]. *Chemosphere*, 2005, **60**(11): 1644-1651.
- [25] Gouteux B, Alaee M, Mabury S A, *et al.* Polymeric brominated flame retardants: are they a relevant source of emerging brominated aromatic compounds in the environment? [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42**(24): 9039-9044.
- [26] 齐元静, 杨宇, 金凤君. 中国经济发展阶段及其时空格局演变特征[J]. *地理学报*, 2013, **68**(4): 517-531.
- Qi Y J, Yang Y, Jin F J. China's economic development stage and its patio-temporal evolution: A prefectural-level analysis[J]. *Acta Geographica Sinica*, 2013, **68**(4): 517-531.
- [27] 四平市统计局. 2014 年四平市国民经济和社会发展的统计公报 [OB/EL]. http://www.siping.gov.cn/sq1/fzsp/tjgb/201609/t20160926_4632.html, 2017-08-16.
- [28] 怀化市统计局. 怀化市 2014 年国民经济与社会发展统计公报 [OB/EL]. <http://www.hhtj.gov.cn/Main-ShowArticle-9054.html>, 2017-08-16.
- [29] 甘孜州统计局. 甘孜藏族自治州 2014 年国民经济和社会发展统计公报 [OB/EL]. <http://www.gzztjj.gov.cn/12399/12400/12474/2015/08/12/10485260.shtml>, 2017-08-16.



CONTENTS

Characterization and Variation of Organic Carbon (OC) and Elemental Carbon (EC) in PM _{2.5} During the Winter in the Yangtze River Delta Region, China	KANG Hui, ZHU Bin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i>	(961)
Important Effect of Secondary Inorganic Salt Extinction on Visibility Impairment in the Northern Suburb of Nanjing	YU Chao, YU Xing-na, ZHAO Tian-liang, <i>et al.</i>	(972)
Day-Night Differences and Source Apportionment of Inorganic Components of PM _{2.5} During Summer-Winter in Changzhou City	LIU Jia-shu, GU Yuan, MA Shuai-shuai, <i>et al.</i>	(980)
Characteristics of Elements in PM _{2.5} and PM ₁₀ in Road Dust Fall During Spring in Tianjin	WANG Shi-bao, JI Ya-qin, LI Shu-li, <i>et al.</i>	(990)
Particle Size Distribution and Human Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particles from Beijing and Xixiang During Summer	ZHANG Xin, ZHAO Xiao-man, MENG Xue-jie, <i>et al.</i>	(997)
Ecological and Health Risks of Trace Heavy Metals in Atmospheric PM _{2.5} Collected in Wuxiang Town, Shanxi Province	GUO Zhao-xia, GENG Hong, ZHANG Jin-hong, <i>et al.</i>	(1004)
Characteristics of Particulate and Inorganic Elements of Motor Vehicles Based on a Tunnel Environment	LI Feng-hua, ZHANG Yan-jie, ZHANG Jing, <i>et al.</i>	(1014)
A 2013-based Atmospheric Ammonia Emission Inventory and Its Characteristic of Spatial Distribution in Henan Province	WANG Chen, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i>	(1023)
Emission Characteristics of Wind Erosion Dust from Topsoil of Urban Roadside-Tree Pool	LI Bei-bei, QIN Jian-ping, QI Li-rong, <i>et al.</i>	(1031)
Particulate Component Emission Characteristic from a Diesel Bus with DOC and CDPF	LOU Di-ming, GENG Xiao-yu, SONG Bo, <i>et al.</i>	(1040)
Water Quality in the Henan Intake Area of the South-to-North Water Diversion Project	HUANG Piao-yi, XU Bin, GUO Dong-liang	(1046)
Spatio-Temporal Patterns and Environmental Risk of Endocrine Disrupting Chemicals in the Liuxi River	FAN Jing-jing, WANG Sai, TANG Jin-peng, <i>et al.</i>	(1053)
Fate and Origin of Major Ions in River Water in the Lhasa River Basin, Tibet	ZHANG Qing-hua, SUN Ping-an, HE Shi-yi, <i>et al.</i>	(1065)
Identification of Nitrate Sources and the Fate of Nitrate in Downstream Areas: A Case Study in the Taizi River Basin	LI Yan-li, YANG Zi-rui, YIN Xi-jie, <i>et al.</i>	(1076)
Sources, Distribution of Main Controlling Factors, and Potential Ecological Risk Assessment for Heavy Metals in the Surface Sediment of Hainan Island North Bay, South China	ZENG Wei-te, YANG Yong-peng, ZHANG Dong-qiang, <i>et al.</i>	(1085)
Characteristics of Heavy Metals Pollution of Farmland and the Leaching Effect of Rainfall in Tianjin	XU Meng-meng, LIU Ai-feng, SHI Rong-guang, <i>et al.</i>	(1095)
Seasonal Difference in Water Quality Between Lake and Inflow/Outflow Rivers of Lake Taihu, China	ZHA Hui-ming, ZHU Meng-yuan, ZHU Guang-wei, <i>et al.</i>	(1102)
Characteristics of Nitrogen Release at the Sediment-Water Interface in the Typical Tributaries of the Three Gorges Reservoir During the Sensitive Period in Spring	LI Xin, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, <i>et al.</i>	(1113)
Spatial Distributions of Transferable Nitrogen Forms and Influencing Factors in Sediments from Inflow Rivers in Different Lake Basins	ZHOU Rui, YUAN Xu-yin, Marip Ja Bawk, <i>et al.</i>	(1122)
Effects of Hydrological and Meteorological Conditions on Diatom Proliferation in Reservoirs	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i>	(1129)
Vertical Distribution of Fungal Community Composition and Water Quality During the Deep Reservoir Thermal Stratification	SHANG Pan-lu, CHEN Sheng-nan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i>	(1141)
Community Structure and Influencing Factors of Bacterioplankton in Spring in Zhushan Bay, Lake Taihu	XUE Yin-gang, LIU Fei, SUN Meng, <i>et al.</i>	(1151)
Characteristics of Sediment Oxygen Demand in a Drinking Water Reservoir	SU Lu, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i>	(1159)
Effects of Wastewater Nitrogen Concentrations and NH ₄ ⁺ /NO ₃ ⁻ on Nitrogen Removal Ability and the Nitrogen Component of <i>Myriophyllum aquaticum</i> (Vell.) Verde	MA Yong-fei, YANG Xiao-zhen, ZHAO Xiao-hu, <i>et al.</i>	(1167)
Effect of Nutrient Loadings on the Regulation of Water Nitrogen and Phosphorus by <i>Vallisneria spiralis</i> and Its Photosynthetic Fluorescence Characteristics	ZHOU Yi-wen, XU Xiao-guang, HAN Rui-ming, <i>et al.</i>	(1180)
Removal of Organic Matter from Water by Chemical Preoxidation Coupled with Biogenic Manganese Oxidation	JIAN Zhi-yu, CHANG Yang-yang, WANG Li-xin, <i>et al.</i>	(1188)
Treating Simulated Dye Wastewater by an <i>In Situ</i> Copper Ferrite Process	HAN Zhi-yong, HAN Kun, HAO Hao-tian, <i>et al.</i>	(1195)
Experiment to Enhance Catalytic Activity of α -FeOOH in Heterogeneous UV-Fenton System by Addition of Oxalate	MIAO Xiao-zeng, DAI Hui-wang, CHEN Jian-xin, <i>et al.</i>	(1202)
Fabrication of a Biomass-Based Hydrous Zirconium Oxide Nanocomposite for Advanced Phosphate Removal	QIU Hui, QIN Zhi-feng, LIU Feng-ling, <i>et al.</i>	(1212)
Characteristic of Nitrate Adsorption in Aqueous Solution by Iron and Manganese Oxide/Biochar Composites	ZHENG Xiao-qing, WEI An-lei, ZHANG Yi-xuan, <i>et al.</i>	(1220)
Preparation of PAAm/HACC Semi-Interpenetrate Network Hydrogel and Its Adsorption Properties for Humic Acid from Aqueous Solution	LIU Ze-jun, ZHOU Shao-qi, MA Fu-zhen	(1233)
Groundwater Arsenic and Silicate Adsorption on TiO ₂ and the Regeneration of TiO ₂	MA Wen-jing, YAN Li, ZHANG Jian-feng	(1241)
Removal Efficiency and Mechanism of Removal by Humic Acid of the Integrated Flocc-ultrafiltration Process	LI Wen-jiang, YU Li-fang, MIAO Rui, <i>et al.</i>	(1248)
Emission Inventory of Greenhouse Gas from Urban Wastewater Treatment Plants and Its Temporal and Spatial Distribution in China	YAN Xu, QIU De-zhi, GUO Dong-li, <i>et al.</i>	(1256)
Start-up and Operation of Biofilter Coupled Nitrification and CANON for the Removal of Iron, Manganese and Ammonia Nitrogen	LI Dong, CAO Rui-hua, YANG Hang, <i>et al.</i>	(1264)
Analysis of CANON Process Start-up with Fiber Carrier	GU Cheng-wei, CHEN Fang-min, LI Xiang, <i>et al.</i>	(1272)
Characteristics of Biofilm During the Transition Process of Complete Nitrification and Partial Nitrification	ZHAO Qing, BIAN Wei, LI Jun, <i>et al.</i>	(1278)
Effect of Intermediate-Setting Aeration on the CANON Granular Sludge Process in the AUSB Reactor	CHENG Shuo, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i>	(1286)
Effect of Organic Carbon Source on Start-up and Operation of the CANON Granular Sludge Process	LI Dong, WANG Yan-ju, LU Yu-feng, <i>et al.</i>	(1294)
Start-Up and Regional Characteristics of a Pilot-scale Integrated PN-ANAMMOX Reactor	ZHOU Zheng, WANG Fan, LIN Xing, <i>et al.</i>	(1301)
Effect of NO _x ⁻ -N Recycling Ratio on Denitrifying Phosphorus Removal Efficiency in the ABR-MBR Combined Process	LÜ Liang, YOU Wen, ZHANG Min, <i>et al.</i>	(1309)
Effects of Magnetic Fe ₃ O ₄ Nanoparticles on the Characteristics of Anaerobic Granular Sludge and Its Interior Microbial Community	SU Cheng-yuan, ZHENG Peng, LU Yu-xiang, <i>et al.</i>	(1316)
Characterization Composition of Soluble Microbial Products in an Aerobic Granular Sludge System	YANG Dan, LIU Dong-fang, DU Li-qiong, <i>et al.</i>	(1325)
Influence of Ciprofloxacin on the Microbial Community and Antibiotics Resistance Genes in a Membrane Bioreactor	DAI Qi, LIU Rui, LIANG Yu-ting, <i>et al.</i>	(1333)
Analysis of Low C/N Wastewater Treatment and Structure by the CEM-UF Combined Membrane-Nitrification/Denitrification System	XING Jin-liang, ZHANG Yan, CHEN Chang-ming, <i>et al.</i>	(1342)
Effects of Phosphorus on the Activity and Bacterial Community in Mixotrophic Denitrification Sludge	WANG Pei-qi, ZHOU Wei-li, HE Sheng-bing, <i>et al.</i>	(1350)
Acclimatization and Community Structure Analysis of the Microbial Consortium in Nitrate-Dependent Anaerobic Methane Oxidation	XUE Song, ZHANG Meng-zhu, LI Lin, <i>et al.</i>	(1357)
Diffusion of Microorganism and Main Pathogenic Bacteria During Municipal Treated Wastewater Discharged into Sea	XU Ai-ling, NIU Cheng-jie, SONG Zhi-wen, <i>et al.</i>	(1365)
Oxytetracycline Wastewater Treatment in Microbial Fuel Cells and the Analysis of Microbial Communities	YAN Wei-fu, XIAO Yong, WANG Shu-hua, <i>et al.</i>	(1379)
Spatial and Temporal Variability of Soil C-to-N Ratio of Yugan County and Its Influencing Factors in the Past 30 Years	JIANG Ye-feng, ZHONG Shan, LI Jie, <i>et al.</i>	(1386)
Spatial Heterogeneity of Soil Carbon and its Fractions in the Wolfberry Field of Zhongning County	WANG You-qi, ZHAO Yun-peng, BAI Yi-ru, <i>et al.</i>	(1396)
Response of Soil Enzyme Activities and Their Relationships with Physicochemical Properties to Different Aged Coastal Reclamation Areas, Eastern China	XIE Xue-feng, PU Li-jie, WANG Qi-qi, <i>et al.</i>	(1404)
Distribution, Sources, and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Soils of the Central and Eastern Areas of the Qinghai-Tibetan Plateau	ZHOU Wen-wen, LI Jun, HU Jian, <i>et al.</i>	(1413)
Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around Mining Area Based on UNMIX Model	LU Xin, HU Wen-you, HUANG Biao, <i>et al.</i>	(1421)
Stabilization Effects of Fe-Mn Binary Oxide on Arsenic and Heavy Metal Co-contaminated Soils Under Different pH Conditions	FEI Yang, YAN Xiu-lan, LI Yong-hua	(1430)
Concentration and Distribution of Novel Brominated Flame Retardants in Human Serum from Three Chinese Cities	WANG Qing-hua, YUAN Hao-dong, JIN Jun, <i>et al.</i>	(1438)