

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社



2020

Vol.41 No.6
第41卷 第6期

目次

基于SPAMS的天津市夏季环境受体中颗粒物的混合状态及来源	林秋菊, 徐娇, 李梅, 王伟, 史国良, 冯银厂 (2505)
南京北郊降水无机离子和有机酸的化学特征及来源分析	杨笑影, 曹芳, 林煜棋, 章炎麟 (2519)
西安市PM _{2.5} 中水溶性离子的季节变化特征	黄含含, 王羽琴, 李升苹, 陈庆彩 (2528)
新疆石化工业区颗粒物含水量和酸度对二次无机组分形成的影响	刘会斌, 迪丽努尔·塔力甫, 王新明, 张潇潇, 王威, 阿布力克木·阿不力孜, 买里克扎提·买合木提, 刘伟 (2536)
长秋季生物物质燃烧对PM _{2.5} 中WSOC吸光性的影响	孟德友, 曹芳, 翟晓瑶, 张世春, 章炎麟 (2547)
2019年5月上海复合污染过程中挥发性有机物的污染特征及来源	王倩 (2555)
南京工业区秋季大气挥发性有机物污染特征及来源解析	曹梦瑶, 林煜棋, 章炎麟 (2565)
郑州市春季大气污染过程VOCs特征、臭氧生成潜势及源解析	任义君, 马双良, 王思维, 于世杰, 李一丹, 张瑞芹, 尹沙沙 (2577)
上甸子区域背景站VOCs污染特征及其对臭氧生成贡献	韩婷婷, 李颖若, 邱雨露, 何迪, 王焱, 马志强 (2586)
北京市餐饮业大气污染物排放特征	孙成一, 白画画, 陈雪, 翟翼飞, 高启天, 何万清, 聂磊, 石爱军, 李国傲 (2596)
北京市农业机械排放因子与排放清单	王凯, 樊守彬, 亓浩云 (2602)
北京市土壤风蚀扬尘排放因子本地化	李贝贝, 黄玉虎, 毕晓辉, 刘李阳, 秦建平 (2609)
基于MODIS_C061的长三角地区AOD与Angström指数时空变化分析	张颖蕾, 崔希民 (2617)
环渤海地区2,4,4'-三氯联苯的多介质归趋模拟	张毅, 马艳飞, 宋帅, 吕永龙, 张盛, 吴强 (2625)
岗南水库沉积物间隙水有色溶解有机物的时空分布特征及差异分析	周石磊, 孙悦, 苑世超, 彭瑞哲, 刘世崇, 岳奇丞, 张航, 王周强, 李再兴, 罗晓 (2635)
“河-湖”沉积物重金属环境特征及来源解析	李悦昭, 陈海洋, 孙文超 (2646)
伊通河(城区段)沉积物重金属形态分布特征及风险评价	姜时欣, 翟付杰, 张超, 王蒙蒙, 单保庆 (2653)
典型岩溶地下河流域水体中硝酸盐源解析	赵然, 韩志伟, 申春华, 张水, 涂汉, 郭永丽 (2664)
沉积物参与氮磷脉冲式输入对太湖水体营养盐浓度和藻类生长的影响	陈洁, 许海, 詹旭, 许笛, 朱广伟, 朱梦圆, 李鹏飞, 康丽娟 (2671)
丰水期东洞庭湖超微型浮游藻类时空分布特征及其影响因素	李胜男, 陈豪宇, 彭华, 李芸君, 朱坚, 简燕, 纪雄辉 (2679)
胶网藻对水体中恩诺沙星的毒性响应及去除作用	王振方, 韩子玉, 王梦雪, 马逸驰, 王婷, 王丽卿, 张玮 (2688)
不同光照和磷水平下两种沉水植物磷富集和钙磷含量的比较	桑雨璇, 杨珈乐, 熊怡, 尹文博, 汪华, 王和云 (2698)
过氧化钙复合片剂对水体修复和底泥磷控制的作用	张帅, 李大鹏, 丁玉琴, 徐楚天, 许鑫澎, 孙培荣, 赵哲豪, 黄勇 (2706)
基于区域DNDC的稻田轮作氮素空间分异与驱动分析:以晋江流域为例	王亚楠, 祝伟, 祁新华, 范水生 (2714)
不同铁锰浓度的低温铁锰氨地下水净化中氨氮去除途径	张杰, 梅宁, 刘孟浩, 叶雪松, 李冬 (2727)
高晶度Mn-Fe LDH催化剂活化过一硫酸盐降解偶氮染料RBK5	李立, 吴丽颖, 董正玉, 王霖, 张倩, 洪俊明 (2736)
Fe-cyclam/H ₂ O ₂ 体系催化降解罗丹明B机制	余雨清, 陈翔宇, 蔡荣华, 黄歆珏, 陈曼 (2746)
微生物光电化学池去除硝酸盐氮:以PANl/TiO ₂ -NTs为光阳极	卢忆, 周海珊, 彭瑞建, 叶杰旭, 陈建孟, 宋爽, 张士汉 (2754)
缺氧MBR-MMR处理海水养殖废水性能及膜污染特性	陈凡雨, 徐仲, 尤宏, 柳锋, 李之鹏, 陈其伟, 韩红卫 (2762)
HRT对改良式A ² /O-BAF反硝化除磷脱氮的影响	赵凯亮, 刘安迪, 南彦斌, 梁利民, 王云霞, 陈永志 (2771)
重金属Ni(II)对厌氧氨氧化脱氮性能的影响及其动力学特征变化	孙琪, 赵白航, 范飒, 周邦磊, 李玉璋 (2779)
异养硝化-好氧反硝化混合菌对尿素的去除及重金属和盐度的影响	王萌萌, 曹刚, 张迪, 冯乃亮, 潘涌璋 (2787)
火山岩填料曝气生物滤池的SNAD工艺启动特性及功能菌丰度演替	薛嘉俊, 张绍青, 张立秋, 李淑更, 姚海楠, 耿忠轩, 李鸿, 刘晓玲 (2796)
游离羟胺对两种典型亚硝态氮氧化菌活性的影响	沈琛, 张树军, 彭永臻 (2805)
死菌DNA对厌氧消化污泥中抗生素抗性基因及微生物群落分析的干扰	苏宇傲, 刘宏波, 毛秋燕, 张慧旻, 张衍, 刘和 (2812)
中国农田土壤重金属空间分布特征及污染评价	陈文轩, 李茜, 王珍, 孙兆军 (2822)
土壤环境质量预警体系构建与应用	李笑诺, 丁寿康, 陈卫平, 王夏晖, 吕斯丹, 刘睿 (2834)
不同母质发育土壤团聚体分布对外源输入秸秆的响应及其与有机碳矿化的关系	毛霞丽, 邱志腾, 张爽, 沈倩, 章明奎 (2842)
长期施肥稻田土壤胞外酶活性对底物可利用性的响应特征	宁玉菲, 魏亮, 魏晓梦, 祝贞科, 袁红朝, 葛体达, 吴金水 (2852)
生物质炭对磷富集土壤中两种元素生物有效性及作物镉积累的影响	黄洋, 郭晓, 胡学玉 (2861)
基于田块尺度的农田土壤和小麦籽粒镉铅污染特征及健康风险评价	肖冰, 薛培英, 韦亮, 刘成程, 高培培, 樊利敏, 杜佳燕, 刘文菊 (2869)
重构土壤垂直剖面重金属Cd赋存形态及影响因素	胡青青, 沈强, 陈飞, 尹炳, 邹宏光, 庄红娟, 张世文 (2878)
新乡市镉污染土壤细菌群落组成及其对镉固定效果	陈兆进, 李英军, 邵洋, 林立安, 徐鸽, 陈彦, 田伟, 姚伦广, 韩辉 (2889)
三峡消落带适生植物根系活动调控土壤养分与细菌群落多样性特征	李丽娟, 李昌晓, 陈春桦, 杨治华, 陈雪梅 (2898)
滇池水中细菌和古菌氮代谢功能基因的空间分布	张宇, 左剑恶, 王丝可, Alisa Salimova, 李爱军, 李玲玲 (2908)
模拟升温对冰川前缘地微生物种群的影响	王愉琬, 马安周, 种国双, 谢飞, 周汉昌, 刘国华, 庄国强 (2918)
水肥气耦合对温室番茄土壤N ₂ O排放及番茄产量的影响	商子惠, 蔡焕杰, 陈慧, 孙亚楠, 李亮, 朱艳, 王晓云 (2924)
矸石山及其周边村庄土壤浸出液对大麦的毒性作用	尚誉, 杨丰隆, 宁夏, 董铁茹, 桑楠 (2936)
海南省昌化江河口海域生物体中多环芳烃污染特征、来源解析及健康风险评价	汪慧娟, 旷泽行, 周贤, 覃晓青, 黄洪辉 (2942)
春季北京市河流大型底栖动物群落结构特征及影响因素分析	贺玉晓, 李珂, 任玉芬, 王思琪, 方文颖 (2951)
热解温度和时间对香蒲生物炭性质的影响及生态风险评估	蔡朝卉, 楚沉静, 郑浩, 罗先香, 李锋民 (2963)
长江经济带交通碳排放测度及其效率格局(1985~2016年)	蒋自然, 金环环, 王成金, 叶士琳, 黄艳豪 (2972)
《环境科学》征订启事(2595) 《环境科学》征稿简则(2687) 信息(2697, 2713, 2811)	

环渤海地区 2,4,4'-三氯联苯的多介质归趋模拟

张毅^{1,2}, 马艳飞^{3*}, 宋帅^{2,4*}, 吕永龙^{2,4,5}, 张盛⁵, 吴强²

(1. 山东理工大学农业工程与食品科学学院, 淄博 255049; 2. 中国科学院生态环境研究中心城市与区域生态国家重点实验室, 北京 100085; 3. 山东理工大学资源与环境工程学院, 淄博 255049; 4. 中国科学院大学, 北京 100049; 5. 中国人民大学环境学院, 北京 100872)

摘要: 为探究多氯联苯(PCBs)在环渤海地区的环境多介质迁移和归趋行为,本研究以 2,4,4'-三氯联苯(PCB28)为目标污染物,基于区域尺度多介质城乡逸度模型,模拟了稳态条件下 PCB28 在各环境相中的浓度分布、总量分配以及相间迁移过程,并对模型的输入参数和输出结果分别进行了敏感性和不确定性分析. 结果表明,PCB28 在淡水、农村土壤、城市土壤和沉积物中的模拟浓度与实测浓度吻合较好,验证了模型的可靠性. PCB28 在城市土壤中的浓度最大,浓度均值为 $5.26 \times 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$,在农村大气中的浓度最小,浓度均值为 $5.79 \times 10^{-14} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$. 当环境系统达到平衡时,土壤是 PCB28 最主要的“汇”,占其在环境中总储量的 96.45%. 大气相与其他环境相间的相互迁移过程是 PCB28 在环渤海地区进行空间迁移的主导过程. 大气传输是 PCB28 最主要的入海途径,从农村大气到海水的迁移通量占总入海通量的 97.22%. 参数敏感性分析结果表明 PCB28 排放速率、栅格规模及与迁移速率相关的参数是影响大气相中 PCB28 浓度的关键参数. 不确定性分析结果表明 PCB28 在农村大气和城市大气中的浓度分布都符合对数正态分布,其变异系数分别为 0.44 和 0.41.

关键词: 2,4,4'-三氯联苯(PCB28); 多介质归趋; 逸度模型; 敏感性分析; 不确定性分析; 环渤海地区

中图分类号: X131 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2020)06-2625-10 **DOI:** 10.13227/j.hjxx.201911140

Fate Simulation of 2,4,4'-Trichlorobiphenyl in the Bohai Rim Using the Multimedia Model

ZHANG Yi^{1,2}, MA Yan-fei^{3*}, SONG Shuai^{2,4*}, LÜ Yong-long^{2,4,5}, ZHANG Sheng⁵, WU Qiang²

(1. School of Agricultural Engineering and Food Science, Shandong University of Technology, Zibo 255049, China; 2. State Key Laboratory of Urban and Regional Ecology, Research Centre for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China; 3. School of Resources and Environmental Engineering, Shandong University of Technology, Zibo 255049, China; 4. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 5. School of Environmental & Natural Resources, Renmin University of China, Beijing 100872, China)

Abstract: To study the multimedia transfer and fate of polychlorinated biphenyls (PCBs) in the Bohai Rim, we used the BETR-Urban-Rural model to simulate and calculate the concentration distribution, fate distribution, and transfer processes of 2,4,4'-trichlorobiphenyl (PCB28) in nine environmental compartments under a steady-state assumption. The input parameters and output results of the model underwent sensitivity analysis and uncertainty analysis, respectively. The results showed that the simulated concentrations of PCB28 in fresh water, rural soil, urban soil, and sediment could fit the measured concentrations well, thus verifying the reliability of the model. The concentration of PCB28 in urban soil was the highest, and the average concentration was $5.26 \times 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$. In contrast, the concentration of PCB28 in rural air was the lowest, and the average concentration was $5.79 \times 10^{-14} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$. When the environmental system reached equilibrium, the largest sink of PCB28 in the Bohai Rim was soil, accounting for approximately 96.45% of the total amount remaining in the system. The mutual transfer processes between air and other environmental compartments were the dominant pathways for PCB28 inter-media transport in the Bohai Rim. Most PCB28 entering the Bohai Sea was transferred by airflow, and the fluxes from rural air to coastal water accounted for approximately 97.22% of the total fluxes of PCB28 entering the sea. According to the result of sensitivity analysis, the emission rates, grid dimensions, and transport velocity were the key parameters affecting the model output. Uncertainty analysis showed that the distributions of PCB28 concentrations in rural air and urban air fitted well with lognormal distributions, and the coefficients of variances (CVs) were 0.44 and 0.41, respectively.

Key words: 2,4,4'-trichlorobiphenyl (PCB28); multimedia fate; fugacity model; sensitivity analysis; uncertainty analysis; Bohai Rim

多氯联苯(polychlorinated biphenyls, PCBs)是一类人工合成的氯代芳香烃类持久性有机污染物(POPs)^[1],由于氯原子取代数目及位置不同,共有 209 种同系物^[2]. PCBs 具有良好的导热性、绝缘性和化学惰性等特点,20 世纪 70 年代前曾被广泛应用于化工、电力工业和塑料工业等领域^[3,4]. 目前,世界各国已经禁止生产和使用 PCBs,但因其具有难

收稿日期: 2019-11-15; 修订日期: 2020-01-07

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0505706, 2019YFC1407803); 国家自然科学基金项目(41501539, 41761144053); 中国科学院重点部署项目(KFZD-SW-322); 城市与区域生态国家重点实验室开放基金项目(SKLURE2016-2-6)

作者简介: 张毅(1993~),男,硕士研究生,主要研究方向为多氯联苯的环境行为, E-mail: 18766953468@163.com

* 通信作者, E-mail: fair966@126.com; shuaisong@rcees.ac.cn

降解性、生物累积性、长距离迁移性和生物毒性等特点^[5],使 PCBs 仍广泛存在于大气、土壤和水体等环境介质中^[6],给人类健康和生态系统带来巨大威胁.

2,4,4'-三氯联苯(PCB28)作为重要的 PCBs 同系物,是 7 种人体负荷较高的指示性 PCBs 之一^[7],在我国环境介质中被广泛检出,具有一定的代表性^[8~10].并且据多个城市大气测定结果显示,PCB28 在测定的指示性 PCBs 中为浓度最高的单体^[11~13].因此,PCB28 环境行为的研究具有重要的现实意义.目前,有关 PCB28 的研究大多集中于其在某单一介质中的浓度水平,而 PCB28 在环境中具有很强的迁移性,故宏观把握 PCB28 在各环境介质间的迁移转化行为是十分必要的.专家学者们针对有机污染物在多介质中的迁移转化相继提出了有毒物质迁移模型^[14]、暴露分析模型系统^[15]、多介质非稳态平衡模型^[16]和逸度模型^[17,18]等.其中,逸度模型因涉及参数较少,计算方法简单,模型结果表现直观而成为研究有机污染物环境归趋行为最常用的模型.例如,MacLeod 等^[19]利用逸度模型模拟了北美地区毒杀芬的环境迁移,并计算了其在各环境介质中的残留情况;崔晓宇等^[20]基于Ⅲ级逸度模型模拟分析了全氟辛烷磺酸在深圳地区各环境相中的浓度分布和迁移转化规律.

环渤海地区地处东北亚经济圈的中心地带,是我国最具综合优势和发展潜力的经济增长极之一^[21],随着该地区工业化和城市化的快速发展,水泥制造、钢铁冶炼和垃圾焚烧等工业活动引起的 PCBs 污染问题日益突显^[22].且有报道显示,环渤海地区部分水体中的 PCB28 浓度已普遍高于美国环保局规定标准^[23].基于此,本研究以环渤海地区为研究区域,利用区域尺度多介质城乡逸度模型^[24]对广泛存在于环境中的 PCB28 进行多介质迁移和归趋行为模拟,通过阐明 PCB28 在环境中的分布和相间迁移过程,以期对环渤海地区 PCBs 的污染治

理提供理论依据.

1 材料与方法

1.1 研究区域概况及区域划分

研究区域位于北纬 $36^{\circ} \sim 43^{\circ}$,东经 $115^{\circ} \sim 123^{\circ}$,包括渤海以及周边 16 个沿海城市,区域总面积约 32 万 km^2 (图 1).其中渤海三面环陆,北、西、南三面分别与辽宁省、河北省(天津市)和山东省毗邻,海域面积 7.7 万 km^2 ,平均水深 18 m,属于典型陆架浅海,地处北温带,多年平均温度 10.7°C ,年降水 500 ~ 600 mm.

为细化研究区域内因地域差异造成的参数差别,并考虑模型表达和空间传输过程的需要,本研究以 $20\text{ km} \times 20\text{ km}$ 的划分方法将研究区域划分为如图 1 所示的 793 个栅格,其中模型多介质传输过程包含栅格单元间和栅格单元内的多介质传输过程.

1.2 研究方法

1.2.1 模型框架

区域尺度多介质城乡逸度模型描述的是稳态、非平衡和有流动的环境系统,并考虑了污染物的稳态输入/出、各环境相内发生的反应以及各环境相间的各种迁移转化过程,其基本框架如图 2 所示.模型考虑了城市与农村之间的差异性,将每一个栅格单元分为 9 个环境相,包括高层大气、低层城市大气、低层农村大气、植被、淡水、淡水沉积物、城市土壤、农村土壤和海水,其中每个环境相又由若干子环境相组成,如植被相包括植物水分和有机质;淡水相包括水分、悬浮颗粒物和生物相等.

模型中,逸度值 f 表示污染物从某一环境相中逃离的趋势,并用来作为判断系统是否平衡的准则^[25],当系统平衡时,可根据各环境相的逸度值来计算出污染物在各环境相中的总量分配、浓度水平和迁移速率等.根据稳态假设和质量平衡原理,9 个环境相的逸度值可根据高斯消元法的矩阵代数形式进行求解,如表 1 所示.

表 1 模型的质量平衡矩阵代数形式¹⁾

Table 1 Mass balance matrix algebra format for the BETR-Urban-Rural model

$f(1)$	$f(2)$	$f(3)$	$f(4)$	$f(5)$	$f(6)$	$f(7)$	$f(8)$	$f(9)$	排放量
DT(1)	$-D(2, 1)$	$-D(3, 1)$	$-D(4, 1)$	$-D(5, 1)$	$-D(6, 1)$	$-D(7, 1)$	$-D(8, 1)$	$-D(9, 1)$	$E(1)$
$-D(1, 2)$	DT(2)	$-D(3, 2)$	$-D(4, 2)$	$-D(5, 2)$	$-D(6, 1)$	$-D(7, 2)$	$-D(8, 2)$	$-D(9, 2)$	$E(2)$
$-D(1, 3)$	$-D(2, 3)$	DT(3)	$-D(4, 3)$	$-D(5, 3)$	$-D(6, 1)$	$-D(7, 3)$	$-D(8, 3)$	$-D(9, 3)$	$E(3)$
$-D(1, 4)$	$-D(2, 4)$	$-D(3, 4)$	DT(4)	$-D(5, 4)$	$-D(6, 1)$	$-D(7, 4)$	$-D(8, 4)$	$-D(9, 4)$	$E(4)$
$-D(1, 5)$	$-D(2, 5)$	$-D(3, 5)$	$-D(4, 5)$	DT(5)	$-D(6, 1)$	$-D(7, 5)$	$-D(8, 5)$	$-D(9, 5)$	$E(5)$
$-D(1, 6)$	$-D(2, 6)$	$-D(3, 6)$	$-D(4, 6)$	$-D(5, 6)$	DT(6)	$-D(7, 6)$	$-D(8, 6)$	$-D(9, 6)$	$E(6)$
$-D(1, 7)$	$-D(2, 7)$	$-D(3, 7)$	$-D(4, 7)$	$-D(5, 7)$	$-D(6, 1)$	DT(7)	$-D(8, 7)$	$-D(9, 7)$	$E(7)$
$-D(1, 8)$	$-D(2, 8)$	$-D(3, 8)$	$-D(4, 8)$	$-D(5, 8)$	$-D(6, 1)$	$-D(7, 8)$	DT(8)	$-D(9, 8)$	$E(8)$
$-D(1, 9)$	$-D(2, 9)$	$-D(3, 9)$	$-D(4, 9)$	$-D(5, 9)$	$-D(6, 1)$	$-D(7, 9)$	$-D(8, 9)$	DT(9)	$E(9)$

1) $f(x)$ 表示污染物在环境相 x 中的逸度, Pa; $E(x)$ 表示污染物在环境相 x 中的排放量, $\text{mol} \cdot \text{h}^{-1}$; $\text{DT}(x)$, 污染物从相 x 中迁出的总迁移速率, $\text{mol} \cdot (\text{Pa} \cdot \text{h})^{-1}$; $D(x, y)$, 表示从相 x 至 y 的迁移 D 值, $\text{mol} \cdot (\text{Pa} \cdot \text{h})^{-1}$

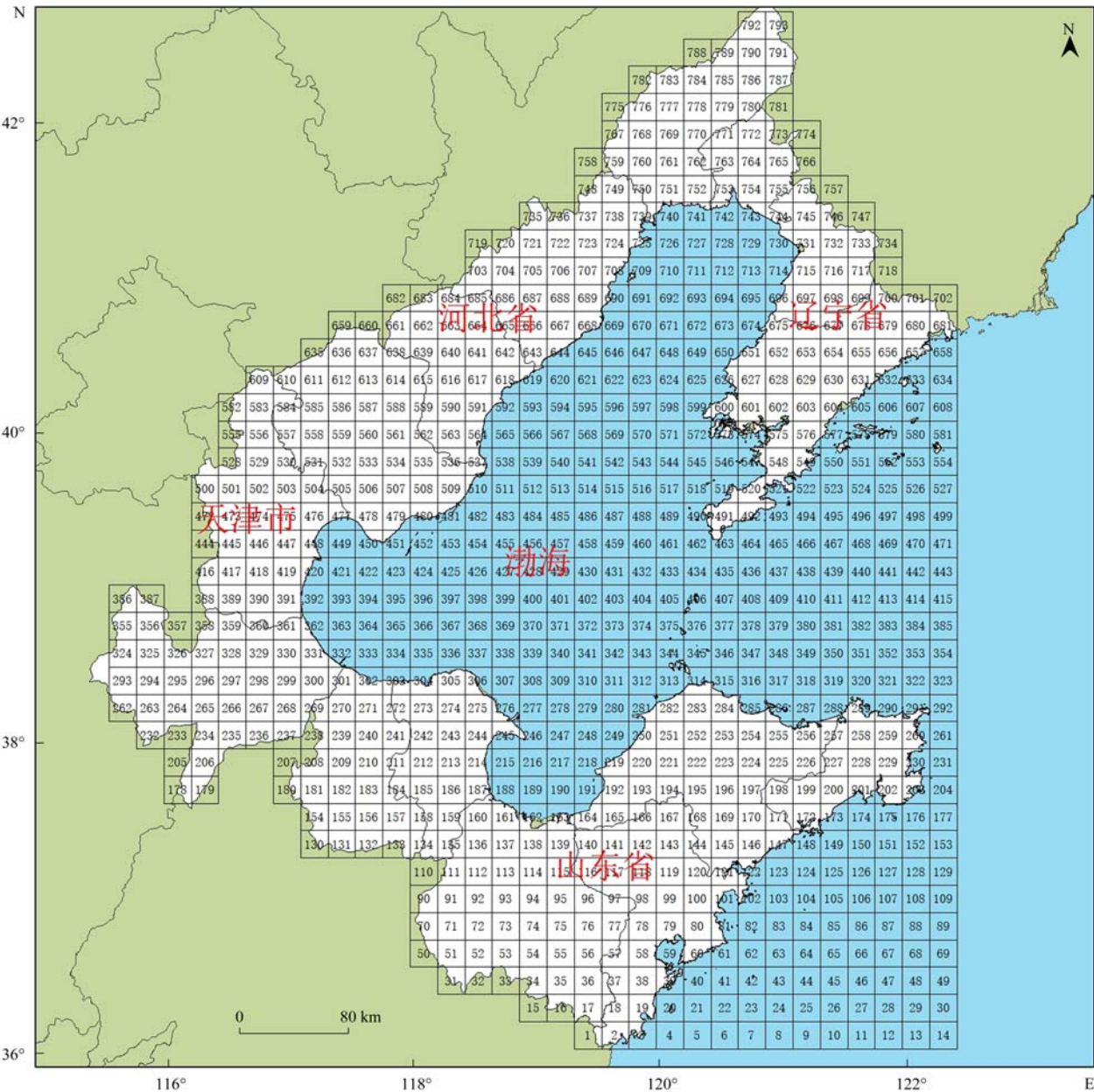


图 1 研究区域地理位置及区域划分示意

Fig. 1 Location and segmentation of the research area

1.2.2 过程与参数识别

PCB28 在栅格单元内的迁移过程主要有两种形式,包括非扩散过程和扩散过程^[25]. 非扩散过程指污染物被介质载带着从一相向另一相迁移,并且该介质本身的移动与污染物的存在无关,如大气、水体或颗粒物相中的平流流入与流出. 扩散过程由污染物自身分子运动引起,如污染物从水向空气的蒸发及反向的吸收过程. 除以上两种主要迁移过程外,相内的降解反应也是需要考虑的重要因素,只有通过各种降解反应,污染物才能真正去除.

模型输入主要包括污染物的排放数据和模型参数. 其中 PCB28 的排放量根据相关排放活动数据以及其他人口、经济等数据进行估算^[26-28],据估算结

果,环渤海地区 2013 年 PCB28 排放到大气中的总量为 383.79 kg,其中排入农村大气和城市大气的量分别为 250.73 kg 和 133.06 kg. 模型参数分为三类,即污染物的物理化学性质参数(表 2)、栅格单元的环境特性参数(表 3)和空气、淡水及海水的流动矩阵数据. PCB28 的物理化学性质决定了其在各环境相间的分配情况,主要包括 4 类:热力学参数、分配参数、动力学参数和相变焓. 环境特性参数与污染物多介质迁移有关,主要分为 8 类:规模参数、子相体积分数、温度、有机碳分数、停留时间、环境相密度、迁移速率和清除比例. 本研究中,PCB28 的物理化学性质参数和栅格单元的环境特性参数主要来自于经验手册和其他相关研究^[25, 28-41]. 空气、淡水及

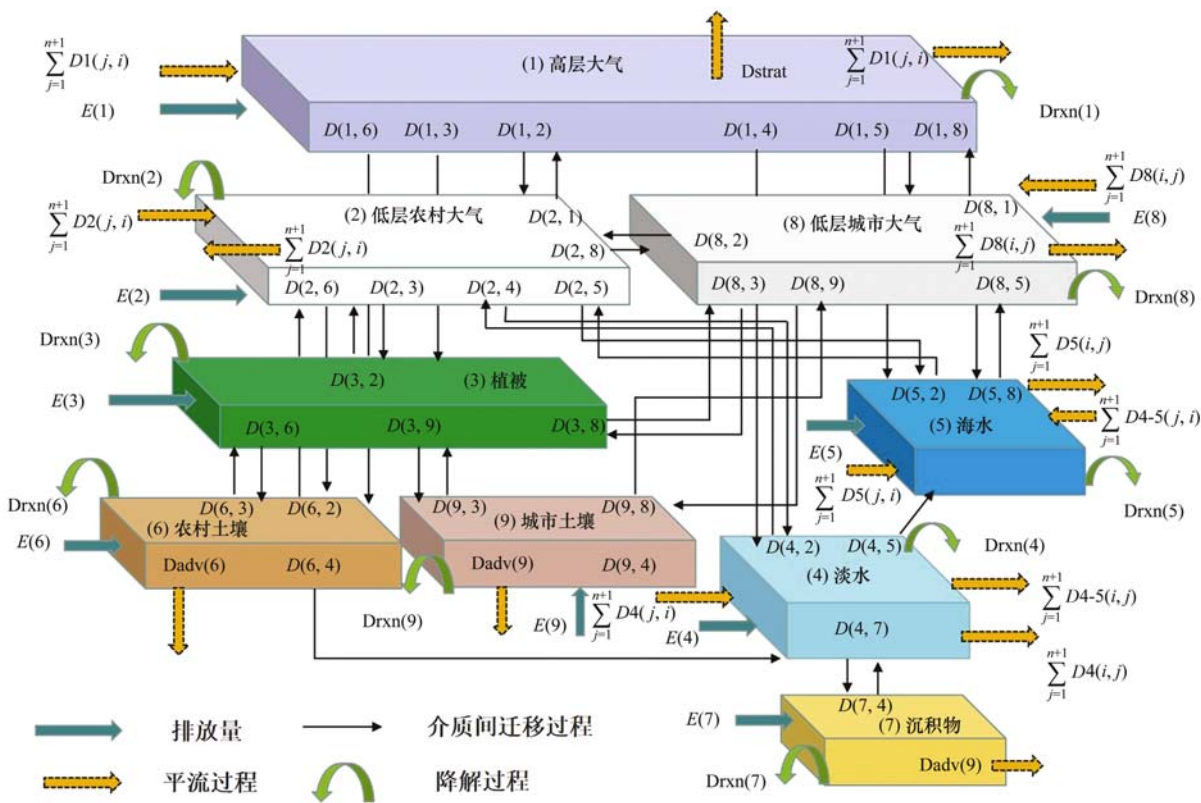


图2 模型框架结构
Fig. 2 Diagram of model framework structure

表2 PCB28 的物理化学性质¹⁾ (25℃)

Table 2 Physicochemical properties of PCB28 (25℃)

参数	数值	文献	参数	数值	文献
摩尔质量/g·mol ⁻¹	257.50	[28]	植物中半衰期/h	300	[29]
熔点/℃	57	[28]	淡水中半衰期/h	17 000	[29]
溶解度/g·m ⁻³	0.229 4	[28]	海水中半衰期/h	17 000	[29]
蒸气压/Pa	0.025 8	[28]	土壤中半衰期/h	55 000	[29]
lg K _{AW}	-1.93	[28]	沉积物中半衰期/h	55 000	[29]
lg K _{OW}	5.66	[28]	蒸发焓/J·mol ⁻¹	51 800	[29]
lg K _{OA}	7.86	[28]	溶解焓/J·mol ⁻¹	-26 600	[29]
空气中半衰期/h	550	[29]			

1) K_{AW}是空气-水分配系数;K_{OW}是辛醇-水分配系数;K_{OA}是辛醇-气分配系数

海水流动矩阵的建立分别参考 HYSPLIT 轨迹模型^[42~44]、水文站流量数据^[45]和表层海水流速数据^[46]。

2 结果与讨论

2.1 模型验证

由于环境系统的复杂性和可变性,多介质逸度模型只能近似模拟污染物的归趋行为,因此,模型的可靠性和准确性需要进行验证。与实测值进行对比是验证模型适用性最直观的方法,一般认为实测值与模拟值的残差在 1 个对数单位内则可认为模型的模拟结果可靠^[47]。但由于研究区域较大,无法实现对每一个栅格单元和每种环境介质的模拟值都进行

验证,故本研究选取部分栅格,对 PCB28 在淡水、农村土壤、城市土壤和沉积物中的模拟值与实测值进行了对比验证,其中土壤中 PCB28 的实测浓度来自课题组测定值^[48],淡水和沉积物中的实测浓度源于文献^[10, 49~51]。为方便比较,本研究将 PCB28 在各环境介质中的浓度单位统一换算成 mol·m⁻³,其对数浓度对比结果见图 3。从中可以看出,模型模拟值与实测值具有较好的一致性,吻合度较高,淡水、农村土壤、城市土壤和沉积物中的对数单位平均残差分别为 0.23、0.30、0.25 和 0.20。同时,不难发现,大多数栅格中 PCB28 的实测浓度略大于模拟浓度,这是因为模拟浓度代表的是一个栅格单元的平均浓度,而实测浓度通常只体现了特定点位的污

表 3 栅格单元的环境特性参数
Table 3 Environmental parameters of each sub-region

参数	数值或范围	文献	参数	数值或范围	文献
总表面积/km ²	400	[30]	土壤中固体有机碳含量/g·g ⁻¹	0 ~ 0. 20	[39]
城市土壤覆盖面积百分比/%	0 ~ 99. 35	[30]	沉积物中固体有机碳含量/g·g ⁻¹	0. 02	[25]
淡水覆盖面积百分比/%	0 ~ 33. 21	[31]	大气颗粒物密度/kg·m ⁻³	2 400	[25]
植被覆盖占土壤面积百分比/%	0 ~ 84. 70	[32]	水密度/kg·m ⁻³	1 000	[40]
植被覆盖占城市土壤面积百分比/%	20	[32]	水中颗粒物密度/kg·m ⁻³	2 400	[40]
叶面积指数/m ² ·m ⁻²	0 ~ 4. 18	[33]	淡水中生物相密度/kg·m ⁻³	1 000	[40]
每平米植被质量/kg·m ⁻²	1	[25]	土壤中固体密度/kg·m ⁻³	2 400	[40]
平均大气高度/km	1	[25]	沉积物中固体密度/kg·m ⁻³	2 400	[40]
平均淡水深度/m	5	[31]	海水中生物相密度/kg·m ⁻³	1 000	[25]
平均海水深度/m	0 ~ 65	[34]	植物组织密度/kg·m ⁻³	600	[25]
平均土壤深度/cm	10	[35]	气侧气-淡水传质系数/m·h ⁻¹	3	[37]
平均沉积物深度/cm	10	[25]	水侧气-淡水传质系数/m·h ⁻¹	0. 03	[37]
大气中颗粒物体积分数	4 × 10 ⁻¹⁰	[25]	降水速率/m·h ⁻¹	5. 24 × 10 ⁻⁵ ~ 1. 8 × 10 ⁻⁴	[38]
城市大气中颗粒物体积分数	1. 2 × 10 ⁻⁹	[25]	气溶胶沉降速率/m·h ⁻¹	10. 8	[41]
淡水中颗粒物体积分数	5 × 10 ⁻⁵	[25]	土壤中气相扩散速率/m·h ⁻¹	0. 02	[37]
淡水中鱼类体积分数	4 × 10 ⁻⁵	[25]	土壤中水相扩散速率/m·h ⁻¹	1 × 10 ⁻⁵	[37]
海水中颗粒物体积分数	5 × 10 ⁻⁶	[25]	土壤-大气边界层传质系数/m·h ⁻¹	5	[41]
海水中鱼类体积分数	4 × 10 ⁻⁵	[25]	城市土壤-大气边界层传质系数/m·h ⁻¹	5	[41]
土壤中空气体积分数	0. 2	[36]	沉积物中水相扩散速率/m·h ⁻¹	1 × 10 ⁻⁴	[25]
城市土壤中空气体积分数	0. 2	[36]	沉积物沉积速率/m·h ⁻¹	5 × 10 ⁻⁷	[41]
土壤中水分体积分数	0. 3	[36]	沉积物再悬浮速率/m·h ⁻¹	2 × 10 ⁻⁷	[41]
城市土壤中水分体积分数	0. 3	[36]	土壤水流失速率/m·h ⁻¹	1 × 10 ⁻⁷	[37]
土壤中固体体积分数	0. 5	[36]	土壤固体流失速率/m·h ⁻¹	2. 3 × 10 ⁻⁸	[37]
沉积物孔隙水体积分数	0. 7	[37]	沉积物掩埋/m·h ⁻¹	3 × 10 ⁻⁷	[41]
沉积物中固体体积分数	0. 3	[37]	向高层大气扩散速率/m·h ⁻¹	0. 01	[40]
植物中水分体积分数	0. 75	[25]	土壤淋溶速率/m·h ⁻¹	1. 1 × 10 ⁻⁵	[25]
伪植物中辛醇体积分数	0. 01	[25]	气侧气-植物传质系数/m·h ⁻¹	10	[25]
年平均温度/℃	6. 93 ~ 16. 35	[38]	植被吸水速率/m·h ⁻¹	1 × 10 ⁻⁴	[25]
冬季平均温度/℃	- 18. 02 ~ 0. 51	[38]	气侧气-海水传质系数/m·h ⁻¹	30	[25]
夏季平均温度/℃	27. 43 ~ 35. 35	[38]	水侧气-海水传质系数/m·h ⁻¹	0. 03	[25]
城市年平均温度/℃	10. 93 ~ 20. 35	[38]	城市-农村大气混合速率/m·h ⁻¹	10	[25]
城市冬季平均温度/℃	- 14. 02 ~ 4. 51	[38]	清洗速率	2 × 10 ⁵	[37]
城市夏季平均温度/℃	31. 43 ~ 39. 35	[38]	降雨清除比例	4 × 10 ⁵	[25]
淡水中颗粒物/g·g ⁻¹	0. 01	[25]	降雪清除比例	1 × 10 ⁶	[25]
海水中颗粒物/g·g ⁻¹	0. 01	[25]	降雨被叶片截留比例	0. 05	[25]

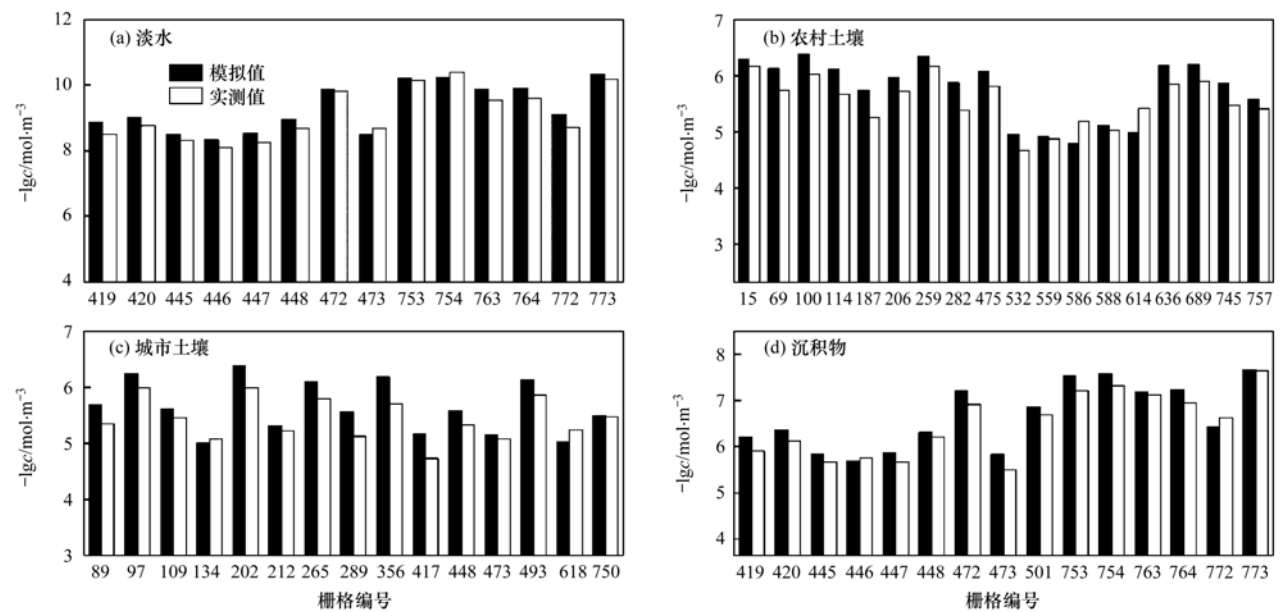


图 3 淡水、农村土壤、城市土壤和沉积物中 PCB28 浓度模拟值和实测值对比
Fig. 3 Comparison between the measured and modeled concentrations in fresh water, rural soil, urban soil, and sediment

染程度^[52]. 除此之外, 研究区域之外的西部区域(河北、山西)聚集着大量钢铁和焦化产业, 这些地区产生的 PCB28 通过长距离大气迁移导致研究区域内 PCB28 的环境背景浓度增大, 但本研究并未考虑此类排放, 因此实测值与模拟值之间存在这样的偏差是合理的.

2.2 浓度分布与总量分配

PCB28 在农村大气、城市大气、植被、淡水、海水、沉积物、农村土壤和城市土壤中的浓度分布情况如图 4 所示. 在这 8 种介质中 PCB28 浓度的均值分别为 5.79×10^{-14} 、 3.87×10^{-13} 、 3.44×10^{-8} 、 1.23×10^{-9} 、 1.11×10^{-11} 、 5.75×10^{-7} 、 6.14×10^{-7} 和 $5.26 \times 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$. 从各介质中 PCB28 的浓度分布来看, 城市土壤、农村土壤和沉积物中污染物浓度较高, 大气、水体中浓度较低. 从空间分布来看, 农村大气、植被和农村土壤中 PCB28 浓度的空间分布特征基本相同, 最高浓度都主要集中在唐山(栅格 532、559、560、586、587、588 和 614), 原因是唐山作为我国最大的钢铁生产城市, 每年有大量非故意产生的 PCBs 排放. 淡水中 PCB28 的最高浓度为

$1.16 \times 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$ (栅格 559), 位于蓟运河流域, 其次是栅格 286 和 355, 浓度分别为 $7.32 \times 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $5.58 \times 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$. PCB28 在海水中的高浓度主要分布在河流入海口附近, 说明淡水的径流是 PCB28 空间迁移的主要驱动力. 另外, 海水的稀释作用使得 PCB28 在海水中的浓度远远小于其在淡水中的浓度, 整个研究区域海水中的最高浓度是 $1.94 \times 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$, 位于栅格 331, 其次是栅格 362 和 332, 浓度分别为 $1.36 \times 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $1.19 \times 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$. PCB28 在城市大气和城市土壤中的浓度分布特征基本一致, 这与 PCB28 在城市大气中的排放分布格局紧密相关. PCB28 在城市大气中的最高浓度是 $4.66 \times 10^{-11} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$, 位于栅格 387, 城市土壤中的最高浓度同样位于栅格 387, 浓度是 $1.74 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$.

PCB28 进入大气相后, 首先会通过降水过程和干湿沉降进入到其他环境相, 随后发生淡水冲刷土壤、向沉积物沉降聚集和随河流进入海洋等迁移过程, 这些都使得 PCB28 在各环境相中的分配情况与最初的排放情况不同. 因此, 当环境系统中各环境

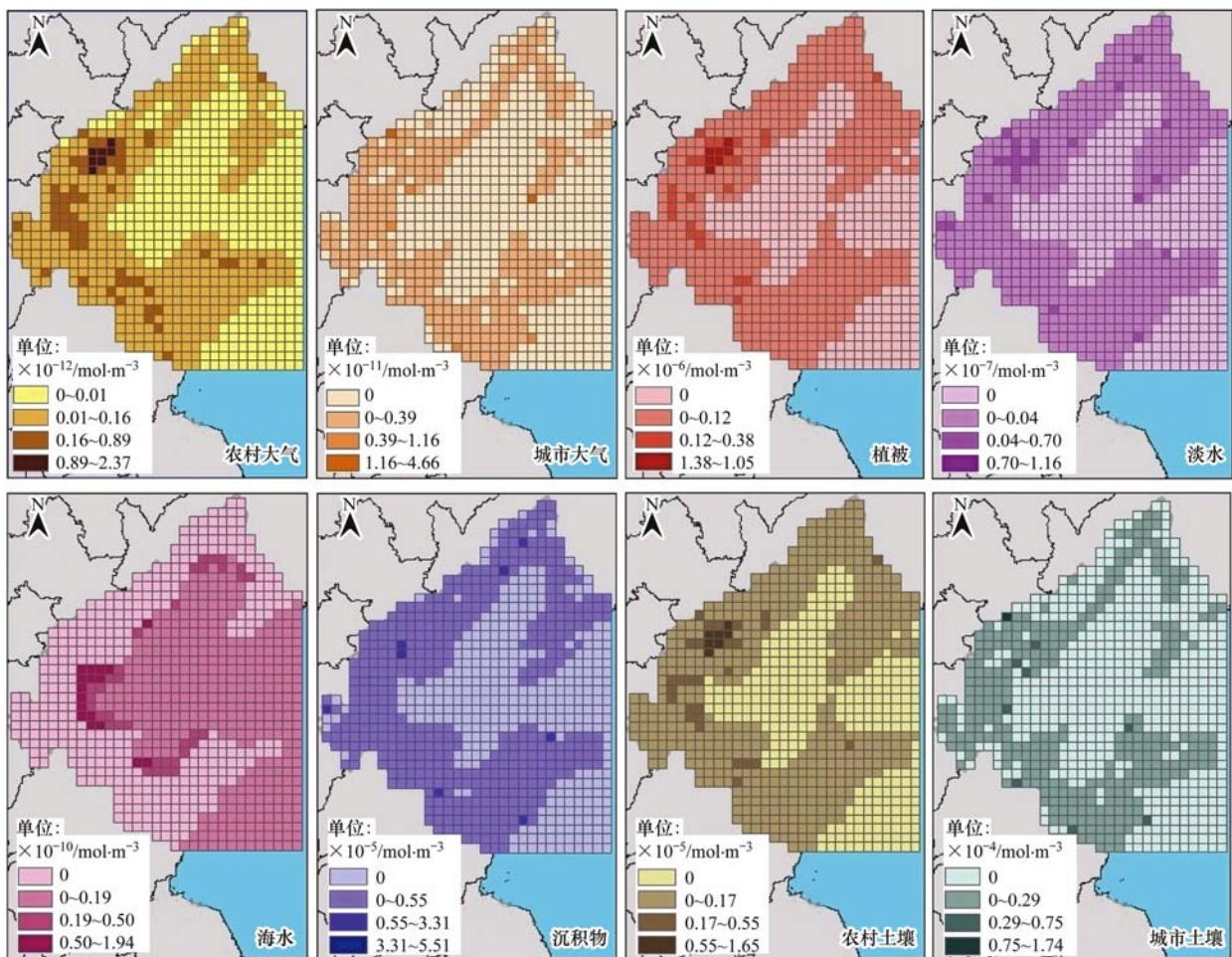


图 4 环境介质中 PCB28 浓度的空间分布特征

Fig. 4 Spatial distribution characteristics of PCB28 concentrations in environmental media

相达到平衡后,PCB28 在各相中的总量分配情况反映了稳态条件下 PCB28 在环渤海地区的最终归趋,如图 5 所示. 从中可知,环境介质中 PCB28 的总量分布为:农村土壤>城市土壤>沉积物>海水>淡水>植被>农村大气>城市大气,所占环境中 PCB28 总量的比例依次为:64.44%、32.01%、1.88%、0.70%、0.35%、0.29%、0.21%和 0.13%. 由此可知,土壤是 PCB28 最主要的“汇”(占环境中 PCB28 总量的 96.45%),这是由于 PCB28 是一种疏水性化合物,辛醇-水分配系数较高,更易向土壤中迁移并积累.

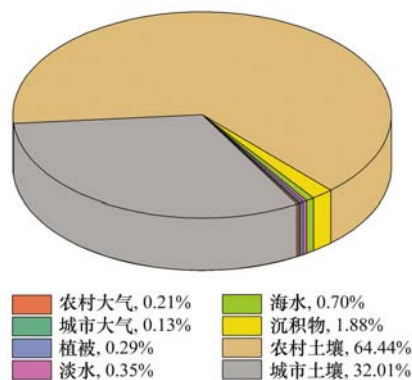


图 5 PCB28 在环渤海地区的介质分布
Fig. 5 Fate distribution of PCB28 in the Bohai Rim

2.3 相间迁移过程分析

PCB28 通过气相进入到各个栅格单元后,会在各环境相间进行迁移,直到 PCB28 在各相分配平衡. 每个栅格单元中涉及到的相间迁移过程有 25 种,包括从农村大气到植被、农村大气到淡水、农村大气到海水、农村大气到农村土壤、农村大气到城市大气、植被到农村大气、植被到农村土壤、植被到城市土壤、植被到城市大气、淡水到农村大气、淡水到海水、淡水到沉积物、淡水到城市大气、海水到农村

大气、农村土壤到农村大气、农村土壤到植被、农村土壤到淡水、沉积物到淡水、城市大气到农村大气、城市大气到植被、城市大气到淡水、城市大气到城市土壤、城市土壤到植被、城市土壤到淡水和城市土壤到城市大气等过程.

由于 PCB28 从排放源最先进入大气相,因此,大气相与其他环境相间的相互迁移过程成为 PCB28 在环渤海地区进行空间迁移的主导过程(图 6). 可以看出,不同栅格单元的相间迁移过程存在较大差异. 对于完全包含海水的栅格,从农村大气到海水的迁移成为 PCB28 迁移的主要过程. 对于完全包含陆地的栅格,从农村大气到农村土壤是 PCB28 最主要的迁移过程,其次是农村大气与植被间的相互迁移过程. 对于既包含陆地又包含海水的这类栅格,迁移过程主要有 3 种,包括从农村大气到农村土壤、农村大气到海水和农村大气到植被.

另外,通过相间迁移通量可计算出 PCB28 在环渤海地区的人海通量. 据估计,PCB28 进入渤海的通量为 $26.58\text{ kg}\cdot\text{a}^{-1}$,其中从农村大气到海水的迁移通量为 $25.84\text{ kg}\cdot\text{a}^{-1}$,占总入海通量的 97.22%,远大于淡水到海水这一迁移过程,说明大气传输是环渤海地区 PCB28 最主要的人海途径.

2.4 敏感性和不确定性分析

2.4.1 敏感性分析

为了评估输入参数的变化对模型模拟结果的影响程度,需要定量分析各输入参数的敏感性,其中参数敏感性越高,表明参数对模型模拟结果的影响越大^[53]. 本研究敏感性通过以下公式进行计算:

$$S = (Y_{1.001} - Y)/(0.001 \times Y)$$

式中, S 为参数的敏感度; Y 为模型原始的模拟值; $Y_{1.001}$ 为将参数扩大 0.1% 后的模型模拟值.

由于各栅格单元之间在输入参数的来源、分布

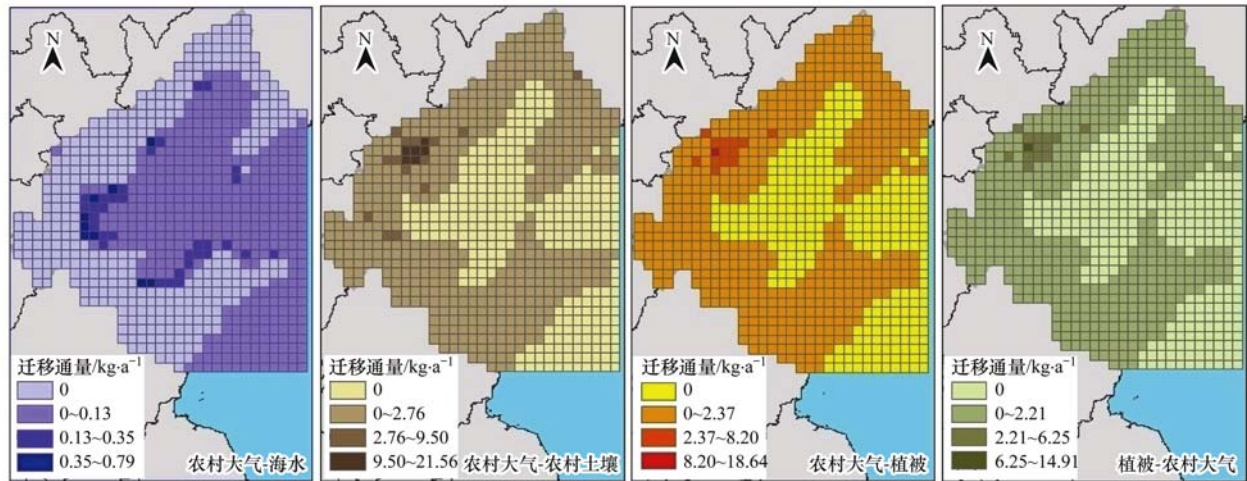


图 6 环渤海地区 PCB28 相间的主要迁移过程

Fig. 6 Intermedia transport pathways of PCB28 in the Bohai Rim

方面并没有明显不同,同时考虑到大气是 PCB28 排入的主要环境相和 PCB28 进行相间迁移的主要介质,因此笔者以栅格 118 为例,重点分析影响大气中 PCB28 浓度的主要参数,分析结果如图 7 所示(值的正负代表参数对 PCB28 浓度的增大或减小作用). 从中可知:农村大气中,影响 PCB28 浓度的参数主要有农村大气排放、栅格的总表面积、降水速率和降雨清除比例等,敏感度分别为

0.840 3、-0.690 3、-0.450 1和 -0.450 1;城市大气中,栅格的总表面积是 PCB28 浓度最敏感的参数,其次是城市大气排放、降水速率、降雨清除比例和城市区域面积等,敏感度分别为 -0.779 7、0.705 7、-0.535 4、-0.511 0 和 -0.511 0. 由此可见,与 PCB28 排放速率、栅格规模及迁移速率相关的参数是影响大气相中 PCB28 浓度的关键性模型参数.

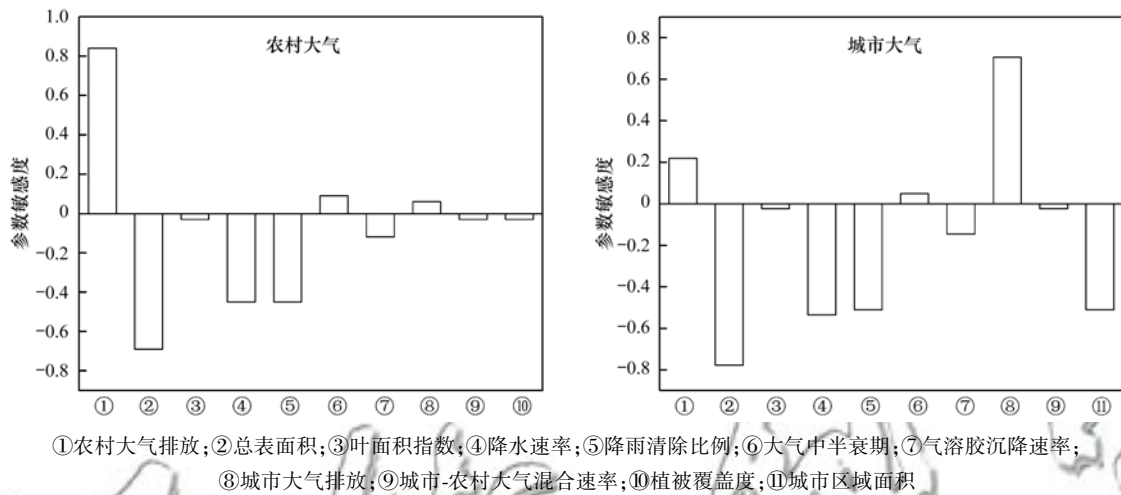


图 7 气相中 PCB28 浓度的敏感性分析
Fig. 7 Sensitivity analysis of PCB28 concentration in air

2.4.2 不确定性分析

模型的输入参数存在一定程度的误差和变异性,这些变异性将会导致模型的输出结果(PCB28 浓度、迁移通量等)存在一定程度的不确定性,因此,有必要对模型的模拟结果进行不确定性分析.

本研究采用 Monte Carlo 模拟方法,通过分析敏感参数的分布特征和变异性,评估了敏感参数对栅

格 118 里大气相中 PCB28 浓度的不确定性. 整个程序运算过程在内嵌了 Crystal Ball 的 Excel 中进行,经过 10 000 次模拟后,便得到大气相中 PCB28 浓度的排放分布,如图 8 所示. 从结果来看,农村大气和城市大气中 PCB28 的分布都符合对数正态分布,浓度均值分别为 $0.94 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $1.45 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$,变异系数分别为 0.44 和 0.41.

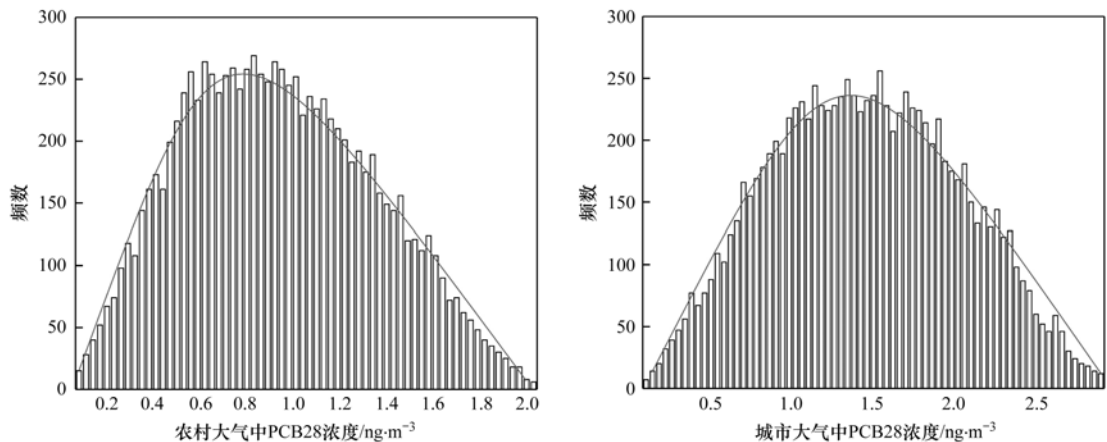


图 8 气相中 PCB28 浓度估算值的分布
Fig. 8 Estimated distribution of PCB28 concentration in air

3 结论

(1)在稳态条件下,利用区域尺度多介质城乡逸度模型,对 PCB28 在环渤海地区各环境相中的浓

度分布进行模拟,结果显示,模型的模拟值与实测值的残差在 0.5 个对数范围内,说明该模型能适用于环渤海地区 PCB28 的多介质迁移与归趋模拟.

(2)PCB28 进入大气后,在环境中迁移转化,主

要归宿是土壤(占系统中 PCB28 总量的 96.45%)。从浓度分布来看,土壤、沉积物中 PCB28 浓度较高,大气、水体中浓度较低,其中农村大气、植被和农村土壤的污染范围主要集中在唐山,这与唐山巨大的工业排放密切相关。

(3)不同相间的迁移过程中,主要通过气相进行迁移,其中以农村大气到海水、农村大气到农村土壤、农村大气到植被和植被到农村大气的迁移通量最为显著。另外,据估算,PCB28 进入渤海的通量为 $26.58 \text{ kg} \cdot \text{a}^{-1}$,大部分来自大气传输。

(4)敏感性分析结果指出,与 PCB28 排放速率、栅格规模及迁移速率相关的参数对模型影响最为显著;不确定性分析结果表明,PCB28 在农村大气和城市大气中的浓度分布都符合对数正态分布,其变异系数分别为 0.44 和 0.41。

参考文献:

- [1] Borja J, Taleon D M, Auresenia J, *et al.* Polychlorinated biphenyls and their biodegradation[J]. *Process Biochemistry*, 2005, **40**(6): 1999-2013.
- [2] Tang B, Luo X J, Zeng Y H, *et al.* Tracing the biotransformation of polychlorinated biphenyls (PCBs) in common carp (*Cyprinus carpio*): enantiomeric fraction and compound-specific stable carbon isotope analyses[J]. *Chemosphere*, 2016, **159**: 449-456.
- [3] 李艳, 黄冠华, 顾华, 等. 北京典型灌区土壤和农产品多氯联苯污染风险评估[J]. *农业机械学报*, 2018, **49**(5): 313-322.
- [4] Li Y, Huang G H, Gu H, *et al.* Assessment of contamination risk of PCBs in soils and agricultural products in typical irrigation district in Beijing[J]. *Transactions of the Chinese Society for Agricultural Machinery*, 2018, **49**(5): 313-322.
- [5] 刘丹, 张圣虎, 刘济宁, 等. 南京地区 PCB52 多介质迁移归趋行为模拟及环境风险评估[J]. *生态毒理学报*, 2015, **10**(2): 353-361.
- [6] Liu D, Zhang S H, Liu J N, *et al.* Simulating the transfer and fate and environmental risk assessment of PCB52 in Nanjing[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2015, **10**(2): 353-361.
- [7] 王飞. 持久性有机污染物多氯联苯(PCBs)的研究进展[J]. *科技资讯*, 2015, **13**(20): 139-141, 143.
- [8] Wang F. Research progress of persistent organic pollutants (PCBs) [J]. *Science & Technology Information*, 2015, **13**(20): 139-141, 143.
- [9] 王亚校, 王子岚, 孙然, 等. Aroclor1242 暴露对菰组培苗不定根分化的影响[J]. *林业与生态科学*, 2019, **34**(3): 308-313.
- [10] Wang Y X, Wang Z L, Sun R, *et al.* Effects of Aroclor1242 on the adventitious roots differentiation of *Triarrhena sacchariflora* [J]. *Forestry and Ecological Sciences*, 2019, **34**(3): 308-313.
- [11] Wang Q, Wei L W, Zhou W T, *et al.* PCB28 and PCB52 induce hepatotoxicity by impairing the autophagic flux and stimulating cell apoptosis *in vitro* [J]. *Toxicology Letters*, 2018, **289**: 28-41.
- [12] Liu H X, Zhang Q H, Wang Y W, *et al.* Occurrence of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins, dibenzofurans and biphenyls pollution in sediments from the Haihe River and Dagou Drainage River in Tianjin City, China[J]. *Chemosphere*, 2007, **68**(9): 1772-1778.
- [13] 盖楠. 若尔盖湿地有机氯农药和多氯联苯的生态地球化学研究[D]. 北京: 中国地质科学院, 2012.
- [14] Gai N. Ecological geochemistry of organochlorine pesticides and polychlorinated biphenyls in Zoige Alpine Wetland[D]. Beijing: China Academy of Geochemistry, 2012.
- [15] Men B, He M C, Tan L, *et al.* Distributions of polychlorinated biphenyls in the Daliao River estuary of Liaodong Bay, Bohai Sea (China) [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, **78**(1-2): 77-84.
- [16] 迭庆杞, 聂志强, 何洁, 等. 珠江三角洲地区大气和土壤中多氯联苯分布特征研究[J]. *环境工程技术学报*, 2014, **4**(6): 520-524.
- [17] Die Q Q, Nie Z Q, He J, *et al.* Characteristics of polychlorinated biphenyl in the air and soils from Pearl River Delta, China [J]. *Journal of Environmental Engineering Technology*, 2014, **4**(6): 520-524.
- [18] 李沐霏, 刘劲松, 周欣, 等. 杭州市冬季大气气溶胶 PM_{2.5} 中二恶英和多氯联苯的污染特征[J]. *色谱*, 2014, **32**(9): 948-954.
- [19] Li M F, Liu J S, Zhou X, *et al.* Pollution characteristics of polychlorinated dibenzo-*p*-dioxins, polychlorinated dibenzofurans and polychlorinated biphenyls in PM_{2.5} of Hangzhou City during winter[J]. *Chinese Journal of Chromatography*, 2014, **32**(9): 948-954.
- [20] 洪维哲, 李英明, 张林楠, 等. 北京市大气中多氯联苯的污染水平和分布特征[J]. *环境化学*, 2015, **34**(3): 410-416.
- [21] Hong W Z, Li Y M, Zhang L N, *et al.* Levels and distribution of polychlorinated biphenyls in the atmosphere of Beijing [J]. *Environmental Chemistry*, 2015, **34**(3): 410-416.
- [22] Schnoor J L, McAvoy D C. Pesticide transport and bioconcentration model [J]. *Journal of the Environmental Engineering*, 1981, **107**(6): 1229-1246.
- [23] Burns L A, Cline D M, Lassiter R R. Exposure analysis modeling system (EXAMS): user manual and system documentation [R]. EPA-600/3-82-023. Washington, DC: Environmental Protection Agency, 1982. (请核对出版地信息)
- [24] Yoshida K, Shigeoka T, Yamauchi F. Multi-phase non-steady state equilibrium model for evaluation of environmental fate of organic chemicals [J]. *Toxicological & Environmental Chemistry*, 1987, **15**(3): 159-183.
- [25] Mackay D. Finding fugacity feasible[J]. *Environmental Science & Technology*, 1979, **13**(10): 1218-1223.
- [26] Su C, Zhang H, Cridge C, *et al.* A review of multimedia transport and fate models for chemicals: principles, features and applicability[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **668**: 881-892.
- [27] MacLeod M, Woodfine D, Brimacombe J, *et al.* A dynamic mass budget for toxaphene in North America [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2002, **21**(8): 1628-1637.
- [28] 崔晓宇, 张鸿, 罗骥, 等. 深圳地区全氟辛烷磺酸的环境多介质迁移和归趋行为研究[J]. *环境科学*, 2016, **37**(8): 3001-3006.
- [29] Cui X Y, Zhang H, Luo J, *et al.* Simulation of multimedia transfer and fate of perfluorooctane sulfonate (PFOS) in Shenzhen Region [J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(8): 3001-3006.
- [30] 中华人民共和国国家发展和改革委员会. 环渤海地区合作发展纲要 [EB/OL]. <https://www.ndrc.gov.cn/xwdt/dt/sjdt/201510/W020190909494094747827.pdf>, 2015-10-12.
- [31] 刘立丹. 典型工业地区及流域沉积物中持久性有机物的分布特征研究[D]. 保定: 河北农业大学, 2011.
- [32] Liu L D. Distribution of persistent organic pollutants (POPs) in sediments of typical industrial areas and basin in China [D].

- Baoding: Hebei Agricultural University, 2011.
- [23] 王泰, 张祖麟, 黄俊, 等. 海河与渤海湾水体中溶解态多氯联苯和有机氯农药污染状况调查[J]. 环境科学, 2007, **28**(4): 730-735.
- Wang T, Zhang Z L, Huang J, *et al.* Occurrence of dissolved polychlorinated biphenyls and organic chlorinated pesticides in the surface water of Haihe River and Bohai Bay, China [J]. Environmental Science, 2007, **28**(4): 730-735.
- [24] Song S, Su C, Lu Y L, *et al.* Urban and rural transport of semivolatile organic compounds at regional scale: a multimedia model approach[J]. Journal of Environmental Sciences, 2016, **39**: 228-241.
- [25] Mackay D. Multimedia environmental models: the fugacity approach (2nd ed.) [M]. Boca Raton: CRC Press, 2001.
- [26] 杨淑伟, 黄俊, 余刚. 中国主要排放源的非故意产生六氯苯和多氯联苯大气排放清单探讨[J]. 环境污染与防治, 2010, **32**(7): 82-85, 91.
- Yang S W, Huang J, Yu G. Inventory study of unintentionally produced hexachlorobenzene and polychlorinated biphenyls release to the air [J]. Environmental Pollution and Control, 2010, **32**(7): 82-85, 91.
- [27] Cui S, Qi H, Liu L Y, *et al.* Emission of unintentionally produced polychlorinated biphenyls (UP-PCBs) in China: has this become the major source of PCBs in Chinese air? [J]. Atmospheric Environment, 2013, **67**: 73-79.
- [28] Song S, Xue J F, Lu Y L, *et al.* Are unintentionally produced polychlorinated biphenyls the main source of polychlorinated biphenyl occurrence in soils? [J]. Environmental Pollution, 2018, **243**: 492-500.
- [29] Mackay D, Shiu W Y, Ma K C, *et al.* Handbook of physical-chemical properties and environmental fate for organic chemicals (2nd ed.) [M]. Boca Raton: CRC Press, 2006.
- [30] 中国科学院资源环境科学数据中心. 中国土地利用遥感监测数据样例 [EB/OL]. <http://www.resdc.cn/data.aspx?DATAID=283>.
- [31] 中华人民共和国国家统计局. 中国统计年鉴 2014 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2014.
- [32] 穆西哈, 柳钦火, 阮改燕, 等. 中国-东盟 1km 分辨率植被覆盖度数据集 [EB/OL]. <http://www.geodoi.ac.cn/WebCn/doi.aspx?Id=218>, 2015.
- [33] 李静, 柳钦火, 尹高飞, 等. 中国-东盟 1km 分辨率叶面积指数数据集 (2013) [EB/OL]. <http://www.geodoi.ac.cn/WebCn/doi.aspx?Id=220>, 2015.
- [34] 国家海洋信息中心. 海底地形数据集 [EB/OL]. <http://mds.nmdis.org.cn/pages/dataViewDetail.html?type=1&did=cb7f7b863b414e35a5ece47eb1634d54&dataSetId=86>.
- [35] 全国土壤普查办公室. 中国土壤 [M]. 北京: 中国农业出版社, 1998.
- [36] 高梓闻, 徐月, 亦如瀚. 典型有机氯农药在珠三角地区多介质环境中的归趋模拟[J]. 环境科学, 2018, **39**(4): 1628-1636.
- Gao Z W, Xu Y, Yi R H. Simulating the fate of typical organochlorine pesticides in the multimedia environment of the Pearl River Delta [J]. Environmental Science, 2018, **39**(4): 1628-1636.
- [37] 李静, 吕永龙, 王铁宇, 等. 苯并(a)芘的环境多介质迁移和归宿模拟[J]. 环境工程学报, 2008, **2**(2): 279-284.
- Li J, Lu Y L, Wang T Y, *et al.* Simulation of multi-media transfer and fate of benzo[a]pyrene [J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2008, **2**(2): 279-284.
- [38] 国家气象科学数据中心. 中国地面气候资料日值数据集 (V3.0) [EB/OL]. [http://data.cma.cn/data/detail/dataCode/SURF_CLI_CHN_MUL_DAY_V3.0/keywords/%E4%B8%](http://data.cma.cn/data/detail/dataCode/SURF_CLI_CHN_MUL_DAY_V3.0/keywords/%E4%B8%AD%E5%9B%BD%E5%9C%B0%E9%9D%A2%E6%B0%94%E5%80%99%E8%B5%84%E6%96%99.html)
- AD%E5%9B%BD%E5%9C%B0%E9%9D%A2%E6%B0%94%E5%80%99%E8%B5%84%E6%96%99.html, 2012-08-04.
- [39] 寒区旱区科学数据中心. 基于世界土壤数据库 (HWSD) 的中国土壤数据集 (V1.1) [EB/OL]. <http://westdc.westgis.ac.cn/data/611f7d50-b419-4d14-b4dd-4a944b141175>, 2009.
- [40] Mackay D, Paterson S. Evaluating the multimedia fate of organic chemicals: a level III fugacity model [J]. Environmental Science & Technology, 1991, **25**(3): 427-436.
- [41] 董继元, 王金玉, 张本忠, 等. 兰州城区多环芳烃的多介质归趋模拟研究[J]. 环境科学学报, 2013, **33**(2): 570-578.
- Dong J Y, Wang J Y, Zhang B Z, *et al.* Fate simulation of PAHs in Lanzhou City by multimedia model [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2013, **33**(2): 570-578.
- [42] Woodfine D G, MacLeod M, Mackay D, *et al.* Development of continental scale multimedia contaminant fate models: integrating GIS [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2001, **8**(3): 164-172.
- [43] Saha S, Moorthi S, Pan H L, *et al.* The NCEP climate forecast system reanalysis [J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 2010, **91**(8): 1015-1058.
- [44] Stein A F, Draxler R R, Rolph G D, *et al.* NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system [J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 2015, **96**(12): 2059-2077.
- [45] 中华人民共和国水利部水文局. 中华人民共和国水文年鉴 [M]. 北京: 中华人民共和国水利部水文局, 2013.
- [46] 国家海洋信息中心. 海流综合数据集连续分集 [EB/OL]. <http://mds.nmdis.org.cn/pages/dataViewDetail.html?type=1&did=c51fc3dbbed74b5d8aa8ac50fc070fa&dataSetId=34>.
- [47] Cao H Y, Liang T, Tao S, *et al.* Simulating the temporal changes of OCP pollution in Hangzhou, China [J]. Chemosphere, 2007, **67**(7): 1335-1345.
- [48] Li Q F, Lu Y L, Wang P, *et al.* Distribution, source, and risk of organochlorine pesticides (OCPs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) in urban and rural soils around the Yellow and Bohai Seas, China [J]. Environmental Pollution, 2018, **239**: 233-241.
- [49] Wang H, Sun L N, Liu Z, *et al.* The levels and risks of heavy metals, polycyclic aromatic hydrocarbons, and polychlorinated biphenyls in Hun River in Northeastern China [J]. Polish Journal of Environmental Studies, 2016, **25**(5): 2167-2175.
- [50] Lv J P, Zhang Y, Zhao X, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) in sediments of Liaohe River: levels, spatial and temporal distribution, possible sources, and inventory [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2015, **22**(6): 4256-4264.
- [51] 尹肃, 李智芹, 吴悦菡, 等. 海河流域水体沉积物中多氯联苯污染特征及风险评价 [J]. 环境污染与防治, 2016, **38**(8): 10-14.
- Yin S, Li Z Q, Wu Y H, *et al.* Pollution characteristics and risk assessment of polychlorinated biphenyls in the sediments of Haihe River Basin [J]. Environmental Pollution and Control, 2016, **38**(8): 10-14.
- [52] Wang P, Lu Y L, Wang T Y, *et al.* Shifts in production of perfluoroalkyl acids affect emissions and concentrations in the environment of the Xiaoqing River Basin, China [J]. Journal of Hazardous Materials, 2016, **307**: 55-63.
- [53] Huang Y P, Sun X, Liu M, *et al.* A multimedia fugacity model to estimate the fate and transport of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in a largely urbanized area, Shanghai, China [J]. Chemosphere, 2019, **217**: 298-307.

CONTENTS

Mixed State and Sources of Fine Particulate Matter in the Summer in Tianjin City Based on Single Particle Aerosol Mass Spectrometer (SPAMS)	LIN Qiu-ju, XU Jiao, LI Mei, <i>et al.</i> (2505)
Characteristics and Sources of Inorganic Ions and Organic Acids in Precipitation in the Northern Suburb of Nanjing, China	YANG Xiao-ying, CAO Fang, LIN Yu-qi, <i>et al.</i> (2519)
Seasonal Variation of Water-soluble Ions in PM _{2.5} in Xi'an	HUANG Han-han, WANG Yu-qin, LI Sheng-ping, <i>et al.</i> (2528)
Effect of Liquid Water Content of Particles and Acidity of Particulate Matter on the Formation of Secondary Inorganic Components in Xinjiang Petrochemical Industrial Area	LIU Hui-bin, Dilinuer-Talifu, WANG Xin-ming, <i>et al.</i> (2536)
Effect of Biomass Burning on the Light Absorption Properties of Water Soluble Organic Carbon in Atmospheric Particulate Matter in Changchun	MENG De-you, CAO Fang, ZHAI Xiao-yao, <i>et al.</i> (2547)
Chemical Characteristics and Sources of Volatile Organic Compounds in Shanghai During an Ozone and Particulate Pollution Episode in May 2019	WANG Qian (2555)
Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric VOCs in the Nanjing Industrial Area in Autumn	CAO Meng-yao, LIN Yu-chi, ZHANG Yan-lin (2565)
Ambient VOCs Characteristics, Ozone Formation Potential, and Source Apportionment of Air Pollution in Spring in Zhengzhou	REN Yi-jun, MA Shuang-liang, WANG Si-wei, <i>et al.</i> (2577)
Characteristics of VOCs and Their Roles in Ozone Formation at a Regional Background Site in Beijing, China	HAN Ting-ting, LI Ying-ruo, QIU Yu-lu, <i>et al.</i> (2586)
Emission Characteristics of the Catering Industry in Beijing	SUN Cheng-yi, BAI Hua-hua, CHEN Xue, <i>et al.</i> (2596)
Emission Factors and Emission Inventory of Agricultural Machinery in Beijing Under Real-world Operation	WANG Kai, FAN Shou-bin, QI Hao-yun (2602)
Localization of Soil Wind Erosion Dust Emission Factor in Beijing	LI Bei-bei, HUANG Yu-hu, BI Xiao-hui, <i>et al.</i> (2609)
Spatial and Temporal Characteristics of AOD and Angström Exponent in the Yangtze River Delta Based on MODIS_C061	ZHANG Ying-lei, CUI Xi-min (2617)
Fate Simulation of 2,4,4'-Trichlorobiphenyl in the Bohai Rim Using the Multimedia Model	ZHANG Yi, MA Yan-fei, SONG Shuai, <i>et al.</i> (2625)
Temporal and Spatial Distribution Characteristics and Difference Analysis of Chromophoric Dissolved Organic Matter in Sediment Interstitial Water from Gangnan Reservoir	ZHOU Shi-lei, SUN Yue, YUAN Shi-chao, <i>et al.</i> (2635)
Environmental Characteristics and Source Apportionment of Heavy Metals in the Sediments of a River-Lake System	LI Yue-zhao, CHEN Hai-yang, SUN Wen-chao (2646)
Speciation Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments from the Yitong River City Area	JIANG Shi-xin, ZHAI Fu-jie, ZHANG Chang, <i>et al.</i> (2653)
Identifying Nitrate Sources in a Typical Karst Underground River Basin	ZHAO Ran, HAN Zhi-wei, SHEN Chun-hua, <i>et al.</i> (2664)
Influence of Nutrient Pulse Input on Nitrogen and Phosphorus Concentrations and Algal Growth in the Sediment-Water System of Lake Taihu	CHEN Jie, XU Hai, ZHAN Xu, <i>et al.</i> (2671)
Temporal and Spatial Variation Patterns of Picophytoplankton and Their Correlations with Environmental Factors During the Wet Season in East Lake Dongting	LI Sheng-nan, CHEN Hao-yu, PENG Hua, <i>et al.</i> (2679)
Toxicological Effects of Enrofloxacin and Its Removal by Freshwater Micro-Green Algae <i>Dictyosphaerium</i> sp.	WANG Zhen-fang, HAN Zi-yu, WANG Meng-xue, <i>et al.</i> (2688)
Comparative Phosphorus Accumulation and Ca-P Content of Two Submerged Plants in Response to Light Intensity and Phosphorus Levels	SANG Yu-xuan, YANG Jia-le, XIONG Yi, <i>et al.</i> (2698)
Effect of Calcium Peroxide Composite Tablets on Water Remediation and Phosphorus Control in Sediment	ZHANG Shuai, LI Da-peng, DING Yu-qin, <i>et al.</i> (2706)
Spatial Differentiation and Driving Analysis of Nitrogen in Rice Rotation Based on Regional DNDC: Case Study of Jinjiang River Watershed	WANG Ya-nan, SHUI Wei, QI Xin-hua, <i>et al.</i> (2714)
Low Temperature Ammonia Nitrogen Removal from an Iron, Manganese, and Ammonia Groundwater Purification Process with Different Concentrations of Iron and Manganese	ZHANG Jie, MEI Ning, LIU Meng-hao, <i>et al.</i> (2727)
Degradation of RBKS by High Crystallinity Mn-Fe LDH Catalyst Activating Peroxymonosulfate	LI Li, WU Li-ying, DONG Zheng-yu, <i>et al.</i> (2736)
Mechanisms of Fe-cyclam/H ₂ O ₂ System Catalyzing the Degradation of Rhodamine B	YU Yu-qing, CHEN Xiang-yu, CAI Quan-hua, <i>et al.</i> (2746)
Removal of Nitrate Nitrogen by Microbial Photoelectrochemical Cell; PANI/TiO ₂ -NTs as a Photoanode	LU Yi, ZHOU Hai-shan, PENG Rui-jian, <i>et al.</i> (2754)
Performance and Membrane Fouling Characteristics of Mariculture Wastewater Treated by Anoxic MBR-MMR	CHEN Fan-yu, XU Zhong, YOU Hong, <i>et al.</i> (2762)
Effect of HRT on Denitrifying Phosphorus and Nitrogen Removal in Modified A ² /O-BAF	ZHAO Kai-liang, LIU An-di, NAN Yan-bin, <i>et al.</i> (2771)
Effect of Ni(II) on Anaerobic Ammonium Oxidation and Changes in Kinetics	SUN Qi, ZHAO Bai-hang, FAN Sa, <i>et al.</i> (2779)
Removal of Urea by Heterotrophic Nitrification-Aerobic Denitrification Mixed Strains and Effects of Heavy Metals and Salinity	WANG Meng-meng, CAO Gang, ZHANG Di, <i>et al.</i> (2787)
Start-up Characteristics of SNAD Process and Functional Abundance Succession of Volcanic Rock Biological Aerated Filter	XUE Jia-jun, ZHANG Shao-qing, ZHANG Li-qiu, <i>et al.</i> (2796)
Effect of Free Hydroxylamine on the Activity of Two Typical Nitrite-oxidizing Bacteria	SHEN Chen, ZHANG Shu-jun, PENG Yong-zhen (2805)
Interference of Dead Cell DNA on the Analysis of Antibiotic Resistance Genes and Microbial Community in Anaerobic Digestion Sludge	SU Yu-ao, LIU Hong-bo, MAO Qiu-yan, <i>et al.</i> (2812)
Spatial Distribution Characteristics and Pollution Evaluation of Heavy Metals in Arable Land Soil of China	CHEN Wen-xuan, LI Qian, WANG Zhen, <i>et al.</i> (2822)
Construction and Application of Early Warning System for Soil Environmental Quality	LI Xiao-nuo, DING Shou-kang, CHEN Wei-ping, <i>et al.</i> (2834)
Response of Aggregate Distribution to Input Straw and Their Linkages to Organic Carbon Mineralization in Soils Developed from Five Different Parent Materials	MAO Xia-li, QIU Zhi-teng, ZHANG Shuang, <i>et al.</i> (2842)
Response of Extracellular Enzyme Activities to Substrate Availability in Paddy Soil with Long-term Fertilizer Management	NING Yu-fei, WEI Liang, WEI Xiao-meng, <i>et al.</i> (2852)
Effects of Biochar on Bioavailability of Two Elements in Phosphorus and Cadmium-Enriched Soil and Accumulation of Cadmium in Crops	HUANG Yang, GUO Xiao, HU Xue-yu (2861)
Characteristics of Cd, As, and Pb in Soil and Wheat Grains and Health Risk Assessment of Grain-Cd/As/Pb on the Field Scale	XIAO Bing, XUE Pei-ying, WEI Liang, <i>et al.</i> (2869)
Reconstructed Soil Vertical Profile Heavy Metal Cd Occurrence and Its Influencing Factors	HU Qing-qing, SHEN Qiang, CHEN Fei, <i>et al.</i> (2878)
Bacterial Community Composition in Cadmium-Contaminated Soils in Xinxiang City and Its Ability to Reduce Cadmium Bioaccumulation in Pak Choi (<i>Brassica chinensis</i> L.)	CHEN Zhao-jin, LI Ying-jun, SHAO Yang, <i>et al.</i> (2889)
Root Activities of Re-Vegetated Plant Species Regulate Soil Nutrients and Bacterial Diversity in the Riparian Zone of the Three Gorges Reservoir	LI Li-juan, LI Chang-xiao, CHEN Chun-hua, <i>et al.</i> (2898)
Spatial Distribution of Nitrogen Metabolism Functional Genes of Eubacteria and Archaeobacteria in Dianchi Lake	ZHANG Yu, ZUO Jian-e, WANG Si-ke, <i>et al.</i> (2908)
Effect of Simulated Warming on Microbial Community in Glacier Forefield	WANG Yu-wan, MA An-zhou, CHONG Guo-shuang, <i>et al.</i> (2918)
Effect of Water-Fertilizer-Gas Coupling on Soil N ₂ O Emission and Yield in Greenhouse Tomato	SHANG Zi-hui, CAI Huan-jie, CHEN Hui, <i>et al.</i> (2924)
Toxicity of Soil Leachate from Coal Gangue and Its Surrounding Village of Barley (<i>Hordeum vulgare</i>)	SHANG Yu, YANG Feng-long, NING Xia, <i>et al.</i> (2936)
Characteristics, Source Analysis, and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) Pollution in Marine Organisms from Estuaries of Changhua River in Hainan Province	WANG Hui-juan, KUANG Ze-xing, ZHOU Xian, <i>et al.</i> (2942)
Characteristics of Macrobenthos Community Structure and Their Relationships with Environmental Factors in Rivers of Beijing in Spring	HE Yu-xiao, LI Ke, REN Yu-fen, <i>et al.</i> (2951)
Effect of Pyrolytic Temperature and Time on Characteristics of <i>Typha angustifolia</i> Derived Biochar and Preliminary Assessment of the Ecological Risk	CAI Zhao-hui, CHU Chen-jing, ZHENG Hao, <i>et al.</i> (2963)
Measurement of Traffic Carbon Emissions and Pattern of Efficiency in the Yangtze River Economic Belt (1985-2016)	JIANG Zi-ran, JIN Huan-huan, WANG Cheng-jin, <i>et al.</i> (2972)