Trapp 模型在典型区 PCBs 蔬菜吸收及人体健康风险评估中的应用

邓绍坡[1,2], 骆永明[1,2*], 宋静[1,2], 滕应[1,2], 陈永山[1,2]

(1. 中国科学院土壤环境与污染修复重点实验室(南京土壤研究所), 南京 210008; 2. 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要: 对某电子垃圾拆解地大气、土壤、蔬菜进行采样, 分析其中 PCBs 的含量; 根据获得的大气中气态及土壤中 PCBs 的含量, 应用 Trapp 作物吸收模型对该地区叶菜类蔬菜中 PCBs 的含量进行模拟预测; 根据模型机制, 分析了叶菜类蔬菜中 PCBs 的来源、构成及影响蔬菜对 PCBs 吸收的因素; 利用美国 EPA 人体健康风险评估方法, 分析了环境中 PCBs 被蔬菜吸收后经食物链对人体健康的影响. 结果表明, Trapp 作物模型可较好地依据土壤及大气中 PCBs 含量预测叶菜类蔬菜中 PCBs 含量, 实测值与预测值相近, 蔬菜中 7 种 PCBs 总和实测值为 51.2 $\mu g \cdot kg^{-1}$, 模型预测值为 39.9 $\mu g \cdot kg^{-1}$; 大气中气态 PCBs 是叶菜类蔬菜中 PCBs 的主要来源, 模型预测表明其贡献率高达 98.8%; 蔬菜吸收 PCBs 的途径、辛醇-水分配系数(K_{ow})及辛醇-大气分配系数(K_{oa})影响蔬菜中 PCBs 含量及构成比例; 蔬菜吸收 PCBs 达到平衡所需时间与 $\lg K_{ow}$、$\lg K_{oa}$ 有很好的乘幂相关性, 多元线性回归表明 $\lg K_{oa}$ 是更重要的影响因素. 大气气态 PCBs 被蔬菜吸收后对人体健康的致癌风险是气态 PCBs 的10 000多倍, 非致癌风险则增加了近 200 倍, 原因主要在于: 一是蔬菜吸收、积累了空气中毒性更高的高氯代 PCBs, 经口摄入 PCBs 的毒性因子极大增加; 二是成人每天食用蔬菜摄入 PCBs 的量相当于正常情况下成人通过呼吸空气摄入 PCBs 量的 71 倍多.

关键词: Trapp 模型; 典型区; 蔬菜; PCBs; 人体健康风险

中图分类号: X820.4 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2010)12-3018-10

Prediction of PCBs Uptake by Vegetable in a Representative Area and Evaluation of the Human Health Risk by Trapp Model

DENG Shao-po[1,2], LUO Yong-ming[1,2], SONG Jing[1,2], TENG Ying[1,2], CHEN Yong-shan[1,2]

(1. Key Laboratory of Soil Environment and Pollution Remediation, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 2. Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Air, soil and vegetable samples were collected from an e-waste disassembly site and analyzed for characteristic contaminants PCBs. Based on the measured PCBs concentrations in soil and air, PCBs concentration in leafy vegetables was predicted by Trapp Model and the sources, composition of PCBs in vegetable and influencing factors were analyzed. By using human health risk assessment model of USEPA, risk to human health from consumption of vegetable that take up PCBs from environment was evaluated. The results showed that the Trapp Model could give good prediction of PCBs concentrations in leafy vegetables based on PCBs concentration in the soil and air. For instance, the measured sum of seven PCBs in vegetable was 51.2 $\mu g \cdot kg^{-1}$ and the predicted value was 39.9 $\mu g \cdot kg^{-1}$. So the predicted value agrees well with the measured value. The gaseous PCBs were the main source of PCBs in leafy vegetables, and the model predicting results indicated that the contribution rate was as high as 98.8%. The uptake pathway, n-octanol/water partition coefficient (K_{ow}) and the n-octanol/air partition coefficient (K_{oa}) of PCBs determine the concentration and composition of PCBs in vegetables. The duration needed for PCBs uptake to reach equilibrium was in good correlation with $\lg K_{ow}$ and $\lg K_{oa}$. Multiple linear regression analysis indicated that $\lg K_{oa}$ was more important. Carcinogenic risk from consumption of PCBs contaminated vegetables was 10 000 times higher than that of gaseous PCBs, and the no-carcinogenic risk was increased by approximately 200 times. The main reasons are firstly the vegetables take up and accumulate more toxic PCBs with high-chloride substitutes and consequently the oral toxic factors of PCBs increase dramatically. Secondly, an adult takes 71 times more PCBs via consumption of vegetables than via inhalation of air.

Key words: Trapp Model; representative area; vegetable; PCBs; human health risk

多氯联苯(polychlorinated biphenyls, PCBs)是水体、大气及土壤环境中普遍存在的一种污染物, 其主要来源为人工合成的用于电容器、变压器以及其他一些电器设备的氯代联苯类混合物(商品名称: Aroclor); 含氯化合物及工业和市政垃圾的燃烧也会产生 PCBs[1]. 环境中的家禽家畜、农作物在生长过程中会吸收、积累污染物(尤其是持久性污染物

收稿日期: 2010-01-08; **修订日期**: 2010-03-05

基金项目: 国家自然科学基金项目(40810180, 40871155); 中国科学院知识创新工程重要方向项目(KZCX2-YW-404); 国家高技术研究发展计划(863)重点项目(2009AA063104)

作者简介: 邓绍坡(1981 ~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为污染场地风险评估, E-mail: spdeng@issas.ac.cn

* 通讯联系人, E-mail: ymluo@issas.ac.cn

POPs(persistent organic pollutants),最终进入人类食物链影响人类健康[2],尤其是会影响儿童的身体健康[3].不少研究表明,食用受 PCBs 污染的食物是人类最重要、最普遍的暴露途径[4].美国、欧洲等不少国家均开发建立了风险评估模型或机构以评估人们在生产生活过程中经不同途径污染物的暴露量,如英国的 CLEA 模型(contaminated land exposure assessment model)、丹麦的 CETOX 模型(center for environment and toxicology)、荷兰的 CSOIL 模型(contaminated soil)、美国加利福尼亚州的 CalTOX 模型、德国的 UMS 模型、欧盟的 EUSES 模型(European union system for the evaluation of substances)以及美国的 SSG(soil screening guidance)和 RBCA 模型(risk-based corrective action),以上每种模型中均考虑了环境中污染物经食物链对人体健康的危害[5],而每种模型考虑食物暴露途径所采用的作物吸收模型有所不同.

针对植物对有机污染物的吸收,目前主要有三类模型:①Briggs 作物吸收因子模型[6],模型将作物分为地下及地上 2 个部分,根据大麦嫩芽实验,选用 $\lg K_{ow}$ 在 -0.6 ~ 3.7 之间的污染物推导出茎浓缩系数、蒸腾流浓缩系数,选用 $\lg K_{ow}$ 在 -0.6 ~ 4.6 之间的污染物推导出了根浓缩系数,根据不同的浓缩系数计算植物不同部位中污染物浓度;②Paterson 和 Mackay 逸度模型[7],该模型是一种包含植物根、茎、叶、木质部、韧皮部、植物角质层等在内的 7 区间逸度模型,考虑的过程主要有离子态及非离子态有机污染物在植物与空气、植物与土壤间的交换,以植物体内污染物逸度与环境介质中污染物逸度间的平衡关系,来模拟计算植物体内污染物的含量;③Trapp 机制模型[8],主要应用于疏水性有机污染物,模型主要基于植物生长过程中对环境介质中污染物的吸收,考虑了植物通过根系吸收土壤孔隙水中污染物、地上部分通过植物叶片与大气气态污染物的交换、植物生长引起的污染物的稀释以及污染物的光降解.

英国的 CLEA 模型、荷兰的 CSOIL 模型以及美国的 RBCA 模型在计算作物根及叶片中有机污染物的含量时主要参考了 Briggs 作物吸收模型,该模型主要针对相对亲水的有机污染物;欧盟的 EUSES 模型和德国的 UMS 模型采用了 Trapp 模型,在进行植物地上部分污染物浓度模拟预测时,荷兰 CSOIL 模型除了采用 Briggs 经验模型外,还结合使用 Trapp 模型,但未对 2 种模型的优劣采用野外实测数 C 行验证[6].美国加利福尼亚州的 CalTOX 模型采用了 Paterson 和 Mackay 逸度模型,该模型考虑了污染物在植物体内的空间分布,但缺乏对植物生长对污染物含量影响的考虑.

我国污染场地及区域的人体健康风险评估正处于起步阶段,近年来不少学者在典型污染区尝试开展过一些人体健康风险评估工作[9~12],但大多以调查环境介质污染情况为主,进行的人体健康风险评估多基于实际调查的环境介质中污染物的含量.而进行人体健康风险评估不可能完全依靠对研究区域进行彻底的调查,将数学模型或结构活性模型等预测方法引入风险评估中,可有效地推动人体健康风险评估工作的开展[13],在这方面我国目前开展的研究工作比较欠缺.该研究针对某电子垃圾拆解地存在的典型污染物 PCBs,采用 Trapp 作物吸收机制模型,根据实际调查获得的土壤、大气中 PCBs 含量,对该地区叶菜类蔬菜中 PCBs 含量进行了模拟预测,并与实测值进行比较,以探讨该模型的优劣.根据模型中蔬菜吸收土壤源、大气源 PCBs 的方式,结合 PCBs 特性分析了蔬菜中 7 种指示性 PCBs 的来源、构成比例及影响因素,根据蔬菜中土壤源、大气源 PCBs 所占的比例,分析了大气及土壤中 PCBs 被蔬菜吸收后经食物链对人体健康的危害.

1　材料与方法

1.1　样品采集

采集的样品包括土壤、蔬菜、大气气态 PCBs.蔬菜样品在 2009 年 4 月和 7 月进行,主要采集露天种植蔬菜,采样点位于研究区蔬菜种植比较集中的地区,样品种类包括包菜、生菜、青菜,采集蔬菜时其对应的土壤样一同采集,蔬菜及土壤样品各 14 份.大气气态 PCBs 采用聚氨酯泡沫材料(PUF)被动式采样器进行采集,采样器样式如文献[14,15]所示,采样器设于农田中,共设 4 个被动式采样点,采样点均远离主要道路,距地面高度 > 3 m,周围 100 m 范围内无遮挡物和重大污染源,PUF 被动式采样从 2009 年 4 月 13 日开始,至 2009 年 7 月 26 日结束,取下 PUF 膜后密封保存,尽快运送至实验室储存于 -20℃待分析.

1.2　样品处理与分析

土壤样品自然风干,剔除杂物后粉碎过 60 目,采用 1∶1的丙酮-正己烷提取剂进行超声提取;蔬菜样品清洗后,在 105℃下杀青 30 min 后,于 50℃下烘干后粉碎,采用与土壤样品相同的提取剂和提取

方法进行提取;PUF 被动式采样膜中 PCBs 的提取以二氯甲烷为提取剂,在水浴温度 53℃下索氏提取 48 h,然后旋转蒸发至近干,加入 5 ~ 10 mL 重蒸过的正己烷,再蒸至近干;所有样品经以上相应处理后均采用 2∶2∶1∶1的硅胶、中性氧化铝、酸性硅胶、无水硫酸钠净化柱进行净化,蔬菜样品提取液的净化适当增加酸性硅胶的用量;净化后土壤样品蒸发浓缩定容至 10 mL,蔬菜、PUF 被动式采样膜净化后均蒸发浓缩定容至 1mL,转移入进样瓶中待测.

PCBs 的测定使用 GC-ECD,测定条件:色谱柱[CP-sil24CB(30 m × 0.25 mm × 0.25 μm)],进样口温度 260℃,检测器温度 300℃,柱子升温程序:初始 180℃保持 0.5 min,以 30 ℃/min升至 260℃,保持 22 min 后以 15 ℃/min升至 270℃,保持 8 min,分流比设为 30. 在 GC-ECD 上,采用从上海百灵威购买的 PCBs 混合标准物质 C-CCSEC-R(Accustandard, USA),采用 6 点外标校正曲线法,根据保留时间对目标化合物进行定性,根据峰面积进行定量分析. 以上所有样品 PCBs 的测定均加入 PCBS209 进行回收率检验,蔬菜、土壤及 PUF 被动式采样膜样品中 PCBs 的回收率分别为:58.7% ~ 113.4%、76.3% ~ 98.5%、43.6% ~ 105.3%;仪器检测限为:0.31 ~ 5.10 $\mu g \cdot kg^{-1}$. 进行模型预测时选用其中的 7 种指示性 PCBs(PCB28、PCB52、PCB101、PCB118、PCB138、PCB153、PCB180)为主要研究对象.

1.3 Trapp 作物吸收模型

作物从环境中吸收污染物的途径主要有 2 种:地下部分经根系吸收土壤溶液中污染物、地上部分植物叶片吸收大气中气相污染物. 地下部分经植物根系的吸收溶解于水中的污染物,随蒸腾流输送至植物叶片,随水分蒸发污染物积累在植物叶片中,该过程受植物木质部蒸腾流支配. 对大多数电中性的污染物,从植物叶片经韧皮部向根部的输送可忽略不计[16]. 对于一些水溶性低的污染物,植物经根部吸收、蒸腾流输送的量很小,通过地上部分经植物叶片与大气中气态污染物的分配交换将可能会是更重要的植物吸收途径. 作物在吸收污染物的同时也伴随着植物体内污染物的稀释和损失,一些具挥发性的污染物通过植物叶片的挥发会是一个重要的损失途径;污染物在植物体内也可能发生光降解和代谢;随植物生长,植物生物量的增加将会稀释植物体内污染物.

基于以上植物体内污染物吸收及损失过程,Trapp 等[8]针对疏水性污染物提出了基于植物生长过程机制性作物吸收模型,考虑的物质吸收与交换过程有:植物根部吸收土壤溶液中污染物、植物叶片与大气中气相污染物的交换、植物生长引起的污染物稀释及污染物本身光降解. Trapp 等提出的疏水性有机污染物的作物吸收模型如下.

$$dc_L/dt = -[A \cdot g/(K_{LA} \cdot V_L) + \lambda_E + \lambda_G] \cdot c_L + c_w \cdot \mathrm{TSCF} \cdot (Q/V_L) + c_A \cdot g \cdot (A/V_L) \quad (1)$$

令:

$$a = A \cdot g/(K_{LA} \cdot V_L) + \lambda_E + \lambda_G \quad (2)$$

(植物体内污染物削减)

式中,$A \cdot g/(K_{LA} \cdot V_L)$ 为污染物从植物叶片向空气中的损失,λ_E 为污染物光降解损失,λ_G 为植物生长引起的稀释.

$$b = c_w \cdot \mathrm{TSCF} \cdot (Q/V_L) + c_A \cdot g \cdot (A/V_L) \quad (3)$$

(植物体内污染物源项)

式中,$c_w \cdot \mathrm{TSCF} \cdot (Q/V_L)$ 为从土壤中吸收,$c_A \cdot g \cdot (A/V_L)$ 为从大气中吸收气态污染物.

则式(1)转换为:

$$dc_L/dt = -a \cdot c_L + b \quad (4)$$

式(4)的解为:

$$c_L(t) = c_L(0)e^{-at} + b/a(1 - e^{-at})$$

随植物生长,植物地上部分体内污染物与周围环境中污染物达到平衡,即生长时间无穷大时植物体内污染物的含量:

$$c_L(\infty) = b/a \quad (5)$$

植物体内污染物达到稳定状态(即平衡态)的 95% 所需要的时间:

$$t(95\%) = -\ln 0.05/a \quad (6)$$

以上各式中参数的含义及取值如表 1 所示.

由式(2)、(3)、(5)及 c_w 计算式,推导出在考虑植物吸收、稀释情况下,植物体内污染物浓度达到稳定时与周围环境大气中气相 PCBs 浓度 c_A(以 $\mu g \cdot kg^{-1}$ 为单位)、土壤中 PCBs 浓度 c_{soil} 存在以下关系[对于所研究的 7 种指示性 PCBs,由于其在大气中有较长的半衰期(表 2),该研究中在植物生长期内不考虑 PCBs 的光降解 λ_E]:

$$c_L = c_{soil} \cdot \left(\frac{\mathrm{TSCF} \cdot Q \cdot K_{LA}}{\mathrm{OC} \cdot K_{OC} \cdot (A \cdot g + \lambda_G \cdot K_{LA} \cdot V_L)}\right) + c_A \cdot \frac{g \cdot A \cdot K_{LA}}{A \cdot g + \lambda_G \cdot K_{LA} \cdot V_L} \cdot \frac{1\ \mu g}{1.19\ kg/m^3 \cdot m^3 \cdot 1\,000\,000} \quad (7)$$

令:

$$c = \frac{\mathrm{TSCF} \cdot Q \cdot K_{LA}}{\mathrm{OC} \cdot K_{OC} \cdot (A \cdot g + \lambda_G \cdot K_{LA} \cdot V_L)}$$

表 1　Trapp 作物吸收模型参数含义及取值1)

Table 1　Parameters' meaning and value of the Trapp's crop uptake model

模型参数	参数含义	单位及单位转换	参数取值[6]
A	植物叶片表面积	m^2	5
c_L	植物中污染物浓度	(fw)/pg·m^{-3};单位转换为μg·kg^{-1}:1 μg·kg^{-1} = 1pg/[1 000 000·ρ_p·m^3·(1 − θ)],式中,ρ_p 为鲜植物密度,800 kg·m^{-3}[6],θ 为植物含水率,0.869(实测)	模型计算
c_w	土壤水溶液中污染物浓度	mg·L^{-1}	计算值2)
$c_L(0)$	时间 t = 0 时植物中污染物浓度	(fw)/pg·m^{-3}	设为 0
c_A	大气中气态污染物浓度	pg·m^{-3},单位转换为μg·kg^{-1}:1 μg·kg^{-1} = 1pg/(1 000 000·ρ_a·m^3),ρ_a:大气密度,1.19 kg·m^{-3}[18]	实测
g	植物叶片传导率	m·s^{-1}	9.26×10^{-4}
K_{LA}	植物叶片-大气分配系数	无量纲	计算值3)
V_L	植物叶片体积	m^3	0.002
Q	植物蒸腾流速	m^3·s^{-1}	1.16E-08
TSCF	蒸腾流浓度系数(即木质部汁液中污染物浓度与外部溶液中污染物浓度比值)	无量纲	计算值4)
t	植物生长时间	d	
λ_E	污染物光降解速率常数	d^{-1}	
λ_G	植物生长速率常数	s^{-1}	4.05×10^{-7}

1)fw 表示鲜重;2)土壤水溶液中污染物浓度计算:$c_w \approx c_{soil}/K_d = c_{soil}/(OC\times K_{OC})$;式中,$c_{soil}$为风干土壤中污染物浓度(实测),OC 为土壤有机碳含量0.046 5(实测),K_{OC}污染物有机碳分配系数[17];3)K_{LA}计算方法:$K_{LA} = K_{LW}/K_{AW}$,式中 K_{LW} 为植物-水分配系数,$K_{LW} = (W_p + L_p\cdot a\cdot K_{ow}^b)\cdot\rho_p/\rho_w$[8],式中,$W_p$:植物中水含量,(g·$g^{-1}$);$L_p$:植物中脂含量,(g·$g^{-1}$);$\rho_p$、$\rho_w$:植物及水密度,kg·$m^{-3}$;$b$:植物脂-辛醇矫正系数;$K_{ow}$:污染物辛醇-水分配系数;$a$:辛醇-水矫正系数,$a = \rho_w/\rho_o$;水密度:$\rho_w$ = 1 000 kg·m^{-3},辛醇密度 ρ_o = 827 kg·m^{-3};以上参数取值见文献[6];K_{aw}:无量纲亨利常数[17];4)TSCF 计算方法:计算方法有 2 种,理论上,对于强亲脂性污染物 TSCF 取值趋向于 1,选取计算值较大者[8];计算方法 1:TSCF = 0.784exp[− (lgK_{ow} − 1.78)^2/2.44][19],计算方法 2:TSCF = 0.7exp[− (lgK_{ow} − 3.07)^2/2.78][20]

$$d = \frac{g\cdot A\cdot K_{LA}}{A\cdot g + \lambda_G\cdot K_{LA}\cdot V_L}\cdot\frac{1\ \mu g}{1.19\ kg/m^3\cdot m^3\cdot 1\ 000\ 000}$$

Trapp作物吸收模型考虑的物质交换过程涉及到土壤溶液中污染物的吸收、大气气相污染物的交换、污染物光降解,这些过程与污染物自身理化性质有很大关系,土壤及大气中气相 PCBs 的含量均在研究区实际测定,在模型中需用到的 PCBs 的理化参数及土壤、大气气态 PCBs 含量如表 2 所示.

表 2　7 种指示性 PCBs 基本理化参数及研究区环境中含量

Table 2　Physicochemical property and the concentration in the environment of seven indicated PCBs

PCB 理化参数	PCB28	PCB52	PCB 101	PCB 118	PCB 138	PCB 153	PCB 180
CAS. NO.	7012-37-5	35693-99-3	37680-73-2	31508-00-6	35065-28-2	35065-27-1	35065-29-3
lgK_{ow}[17]	5.66	5.91	6.33	6.69	7.22	6.87	7.16
分子量/g·mol^{-1}[17]	257.55	291.99	326.44	326.44	360.9	360.88	395.33
蒸气压/Pa[17]	2.60E-02	1.13E-03	3.36E-03	1.20E-03	1.59E-02	5.07E-04	1.30E-04
水溶解度(25℃)/mg·L^{-1}[17]	0.27	0.015 3	0.015 4	0.013 4	0.000 95	0.001 5	0.003 85
lgK_{oa}(20℃)[21]	8.3	8.56	9.27	10.19	10.12	9.99	10.73
亨利常数 K_{aw}(无量纲,31℃)[17]	1.86E-02	1.56E-02	1.49E-02	9.30E-03	1.98E-02	1.29E-02	5.36E-03
lgK_{OC}(25℃)[17]	4.91	5.38	6.53	6.67	6.78	6.69	7.42
大气中半衰期/d[17]	14 ~ 30	25 ~ 60	60 ~ 120	60 ~ 120	29 ~ 90	29 ~ 90	500
c_{soil}(土壤浓度,dw)/μg·kg^{-1}	6.11	6.63	27.65	4.97	11.75	13.00	2.11
c_A(气相 PCB)/pg·m^{-3}	2648.58	1557.00	813.63	510.26	464.06	711.85	111.03

以上模型中未考虑土壤颗粒在植物叶片上的残留,欧盟 EUSES 模型在评估农业用地方式下污染物以蔬菜为介质对人体健康的风险时,将大气中土壤颗粒物作为一种重要的污染物来源,特别是大气颗粒物中一些亨利常数高的有机污染物[22]. Smith 等[23]在没有考虑有多少土壤颗粒物会被冲洗掉的条件下,提出单位干重植物中有 0.2% ~20% 的土壤残留(几何平均值为 1.2%);Sheppard 等[24]在研究中假设单位干重植物中有 3% 的土壤颗粒物残留,Rikken 等[6]提出单位干重植物中土壤颗粒物的残留比例为 1%,荷兰公共卫生与环境国家研究院认为在健康风险评估中 3% 的取值过于保守,因此选用 1% 来评估农业用地方式下大气中土壤颗粒物在蔬菜上的残留对人体健康的危害. 该研究中,参考荷兰的做法假设有 1% 的土壤颗粒物残留在蔬菜上,评估其对人体健康的风险.

1.4 PCBs 人体健康风险评估

研究区为城镇农村混合区,以农业和居住用地为主,当地居民多食用自产的蔬菜、大米. 进行人体健康风险评估、分析蔬菜对当地居民人体健康风险的影响时考虑以下几种暴露途径:经口摄入土壤、经皮肤接触土壤、经呼吸吸入大气、经食用自产蔬菜. 致癌风险评估以成人为敏感受体,非致癌风险以儿童为敏感受体,致癌及非致癌暴露剂量的计算如下.

致癌暴露剂量计算:

$$CDI_{ca} = c_M \times \left(\frac{IR_c \times ED_c \times EF_c}{BW_c} + \frac{IR_a \times ED_a \times EF_a}{BW_a}\right) / AT_{ca}$$

非致癌暴露剂量计算:

$$CDI_{nc} = c_M \times \frac{IR_c \times ED_c \times EF_c}{BW_c \times AT_{nc}}$$

致癌风险:

$$CR = CDI_{ca} \times SF$$

非致癌风险商:

$$HQ = CDI_{nc} / RfD$$

式中,CDI_{ca}:致癌暴露剂量,$mg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$;$CDI_{nc}$:非致癌暴露剂量,$mg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$;$c_M$:环境介质中污染物浓度,$mg \cdot kg^{-1}$;$IR_c$:儿童污染物摄入频率,$kg \cdot d^{-1}$;$ED_c$:儿童暴露周期,a;$EF_c$:儿童暴露频率,$d \cdot a^{-1}$;$IR_a$:成人污染物摄入频率,$kg \cdot d^{-1}$;$ED_a$:成人暴露周期,a;$EF_a$:成人暴露频率,$d \cdot a^{-1}$;$AT_{ca}$:致癌效应平均时间,a;$AT_{nc}$:非致癌效应平均时间,a;CR:致癌风险,无量纲;SF:污染物致癌斜率因子,$[mg \cdot (kg \cdot d)^{-1}]^{-1}$;RfD:参考剂量,$mg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$;HQ:非致癌风险商,无量纲. 各暴露途径下致癌及非致癌暴露剂量的具体计算及参数取值参考美国 RAIS 风险评估信息系统[25].

2 结果与讨论

2.1 Trapp 作物吸收模型预测结果

根据研究区土壤及大气中气相 PCBs 含量,采用 Trapp 作物吸收模型对研究区蔬菜中的 PCBs 含量进行模拟计算;预测结果及蔬菜实测值如表 3 所示. 从表 3 中可看出,蔬菜吸收 PCBs 达到 95% 稳定的时间随 PCBs 含氯量的增加而增加,含氯量最高的 PCB180 达到 95% 稳定所需要的时间为 53 d,假设 60 d 时蔬菜对 7 种 PCBs 的吸收达到平衡. 稳定时 Trapp 模型预测的 7 种 PCBs 在蔬菜中的含量均在实测值范围内,且与实测平均值相近,蔬菜中 7 种

表 3 蔬菜中 PCBs 含量预测值与实测值1)

Table 3 Measured values and the predicted values of PCBs in vegetable

项目	PCB28	PCB 52	PCB 101	PCB 118	PCB 138	PCB 153	PCB 180
叶片吸收达 95% 稳定的时间/d	1.51	3.04	7.57	21.78	28.93	22.88	53.37
假设 60 d 7 种 PCBs 可全达稳定,植物中 PCBs 浓度2)(fw)/ $pg \cdot m^{-3}$	2.67E+08	3.16E+08	4.11E+08	7.42E+08	8.94E+08	1.09E+09	3.82E+08
转换单位为(dw)/$\mu g \cdot kg^{-1}$	2.56	3.04	3.95	7.13	8.60	10.45	3.67
蔬菜中土壤源 PCBs 含量(dw)/$\mu g \cdot kg^{-1}$	1.34E-02	3.01E-03	3.54E-04	1.89E-05	7.89E-06	2.92E-05	3.87E-07
蔬菜中大气源 PCBs 含量(dw)/$\mu g \cdot kg^{-1}$	2.56	3.04	3.95	7.13	8.60	10.45	3.67
蔬菜中来自大气中土壤颗粒物的 PCBs (dw)/$\mu g \cdot kg^{-1}$	0.040	0.042	0.166	0.034	0.074	0.081	0.013
考虑来自土壤、大气中土壤颗粒、气相 PCBs 时蔬菜中 PCBs(dw)/$\mu g \cdot kg^{-1}$	2.60	3.08	4.12	7.16	8.67	10.53	3.69
实测值平均值($n=14$)均为叶菜(dw) /$\mu g \cdot kg^{-1}$	13.74	9.87	6.17	7.80	5.18	5.07	3.41
实测值范围($n=14$)均为叶菜(dw) /$\mu g \cdot kg^{-1}$	0.65 ~ 34.73	ND ~ 36.27	ND ~ 12.27	0.56 ~ 14.42	0.35 ~ 17.01	0.52 ~ 9.94	ND ~ 10.98

1)fw 表示鲜重;dw 表示干重;ND 表示未检出; 2)60 d 时蔬菜中 PCBs 浓度计算:$c(t=60) = (b/a) \times (1 - e^{-at})$

PCBs 总和实测值为 51.2 μg·kg^{-1},模型预测值为 39.9 μg·kg^{-1}. 但模型预测值与实测值也存在不少差异,模型预测值随氯代数增加($\lg K_{oa}$逐渐变大)逐渐升高,实测值则逐渐降低. 将蔬菜中 PCBs 预测值、实测值与大气中气态 PCBs 含量比值取对数,则其与 PCBs 的 $\lg K_{oa}$之间均存在如图 1 所示的线性关系.

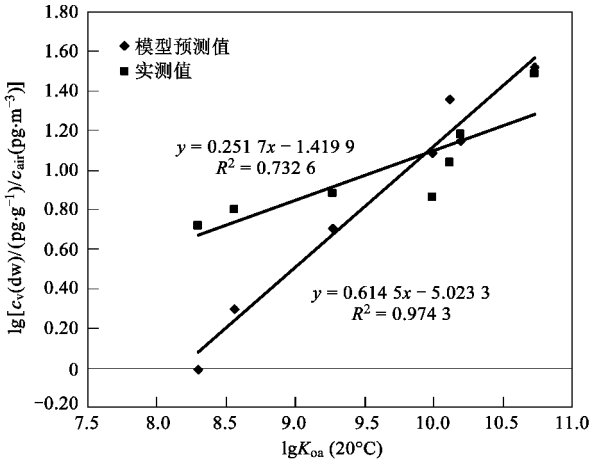

图 1　蔬菜中 PCBs 与空气中 PCBs 比值的对数与 $\lg K_{oa}$关系

Fig. 1　Relationship between $\lg K_{oa}$ and logarithm of to the ratio of PCBs in vegetable to air gaseous concentration of PCBs

从图 1 中可以看出随 PCBs 氯代数增加,植物中 PCBs 含量与空气中 PCBs 含量比值的对数与 $\lg K_{oa}$之间存在很好的线性关系,并且模型预测值与 $\lg K_{oa}$的线性相关性要明显好于实测值,这与 Jonathan[18]、Claudia[21]等采用小室模型,在严格控制实验条件(空气流动、温度等)下研究的植物角质层、蜡质层及牧草对气态 PCBs 的吸收随 $\lg K_{oa}$的变化趋势是一致的,说明模型预测值与控制条件下的实验测定值能够更好地吻合,而实测值由于受到了更多环境因素的影响,与模型预测值及受控条件下的实验值相比与 $\lg K_{oa}$的相关性要差. 这也反映出模型预测的局限性,Trapp 作物吸收模型虽然是基于植物生长过程中与周围环境介质间的物质交换的机制模型,尤其是考虑了植物地上部分与大气中气相污染物的交换吸收,但它在很大程度上还是受污染物本身理化特性参数(K_{ow}、K_{oa} 等)支配;Mclachlan[22]指出污染物的植物叶片-大气分配系数($K_{leaf\text{-}air}$)与污染物的 $\lg K_{oa}$有很强的相关性,植物中污染物的浓度强烈的依赖于污染物的 $\lg K_{oa}$. 模型预测所依据的理化参数均是在一定条件下通过实验或模型计算获得,当环境条件发生变化时(如温度、大气压等)这些物理参数将会发生很大变化,最终将会影响模型预测结果.

另外,Trapp 模型虽然将植物-大气交换吸收途径考虑在内,但模拟的是稳态条件下植物-大气交换,对于环境条件则没有考虑. 实际情况下植物-大气交换会受到环境条件如风速、温度、大气压等的影响,如 Jonathanl 等[26]在研究气态 PCBs 与牧草的交换时采用小室模型研究了吹风与不吹风条件下牧草体内 PCBs 含量与暴露时间、牧草 PCBs-大气 PCBs 含量比值与 $\lg K_{oa}$之间的关系,研究结果表明随暴露时间延长,吹风条件下牧草中 PCB28 与暴露时间的相关性要好于不吹风,而 PCB203 的表现则相反. 温度变化会改变 PCBs 的蒸气压、植物角质层(蜡质层)-空气分配系数及扩散系数,从而影响植物对 PCBs 的吸收[21].

2.2　研究区蔬菜中 PCBs 来源及影响因素

2.2.1　蔬菜中 PCBs 来源

研究区各种环境介质中均含有 PCBs,PCBs 的强疏水性决定了其在不同环境介质中对蔬菜的生物有效性差别很大,对蔬菜中 PCBs 含量的贡献必然不同,分析研究蔬菜中 PCBs 的来源,明确哪种环境介质是导致蔬菜 PCBs 污染的首要因素,有利于有针对性的采取措施保障蔬菜安全,保护人体健康.

根据由 Trapp 作物吸收模型转换得到的植物体内污染物含量与土壤及大气中土壤含量的关系式(7). 式(7)中系数 c、d 分别表示植物体内来自土壤和大气的 PCBs 的比例,根据 c、d 的计算式获得 7 种指示性 PCBs 的值如图 2 所示,从中可以看出植物中大气源 PCBs 系数是土壤源 PCBs 系数的 10^6 倍,表明大气中气态 PCBs 是植物中 PCBs 的主要来源;并且土壤源 PCBs 系数 c 与大气源系数 d 随 PCBs 氯代数增加表现出相反的变化趋势. 土壤源 PCBs 以

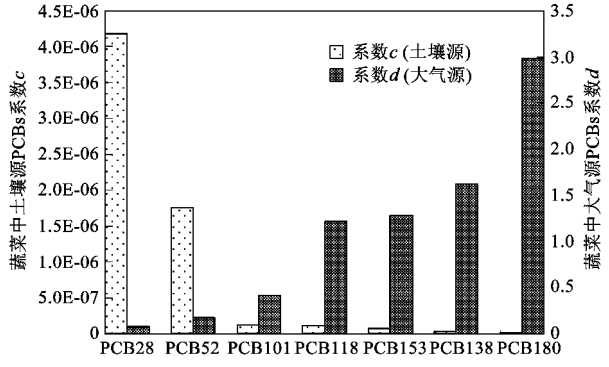

图 2　土壤、大气源 7 种指示性 PCBs 对蔬菜的贡献比例

Fig. 2　Contribution factors of seven soil and gasous-borned indicated PCBs to vegetable

水溶液形式经被动扩散进入植物体内,制约 PCBs 输送的主要因素是 PCBs 的水溶解度,随氯代数增加 PCBs 的水溶解度迅速降低(表 2),土壤中高氯代 PCBs 对植物的贡献也迅速下降;大气源 PCBs 主要是大气中气态 PCBs 在植物叶片上的跨膜吸收、经叶片气孔吸收,气态 PCBs 跨植物叶片表面-空气界面层进入叶片后储存于植物蜡质或角质层中,然后进一步扩散进入叶片细胞内[22,27],这个吸收过程受污染物性质、植物种类及环境条件的限制,疏水性更强的气态高氯代 PCBs 更容易 植物叶片中的蜡质、角质层所吸收,因此大气源 PCBs 的植物吸收系数 d 随氯代数增加而增大. 从表 3 中的模型预测结果也可看出,气相源 PCBs 对蔬菜的贡献占绝大部分,其次为大气中土壤颗粒物,而蔬菜经根系吸收土壤中 PCBs 所占的比例微乎其微,这与根据土壤源及大气源 PCBs 系数进行的分析结果是一致的.

2.2.2 蔬菜中 PCBs 构成特征及其影响因素

PCBs 是一类混合污染物,由于其本身具有的强疏水性特征,在不同环境介质中 PCB 单体的构成比例不同,蔬菜从不同环境介质中吸收 PCBs,吸收途径不同其最终在植物体内的构成比例也会发生改变. 分析影响蔬菜中 PCBs 含量及构成的主要因素,有助于深入了解 PCBs 从环境介质向蔬菜中的迁移.

图 3 为研究区土壤、大气及蔬菜中土壤源、大气源 PCBs 的构成. 图 3(b)为根据土壤中 7 种 PCBs 的含量及式(7)中土壤源系数 c 计算获得的蔬菜中来自土壤的 PCBs 构成. 从图 3(a)与图 3(b)的对比可以看出,在土壤中 7 种指示性 PCBs 的构成规律性不明显,以 PCB101 含量最高,其次为 PCB118 和 PCB138, PCBs 经蔬菜根吸收进入蔬菜体内后,在蔬菜中的构成显现出很强的规律性,即随氯代数升高,高氯代 PCBs 所占的比例急剧降低. 图 3(d)为根据大气中 7 种气态 PCBs 含量及式(7)中大气源系数 d 计算获得的蔬菜中来自大气气态 PCBs 的构成. 与土壤及蔬菜中土壤源 PCBs 构成不同,大气中 7 种气态 PCBs 构成随氯代数增加表现出一定的规律性,以低氯代 PCB28 所占比例最高,并且随氯代数增加,高氯代 PCBs 的比例逐渐降低. 但是当大气中7种气态PCBs经叶片吸收进入蔬菜中后,在蔬菜中

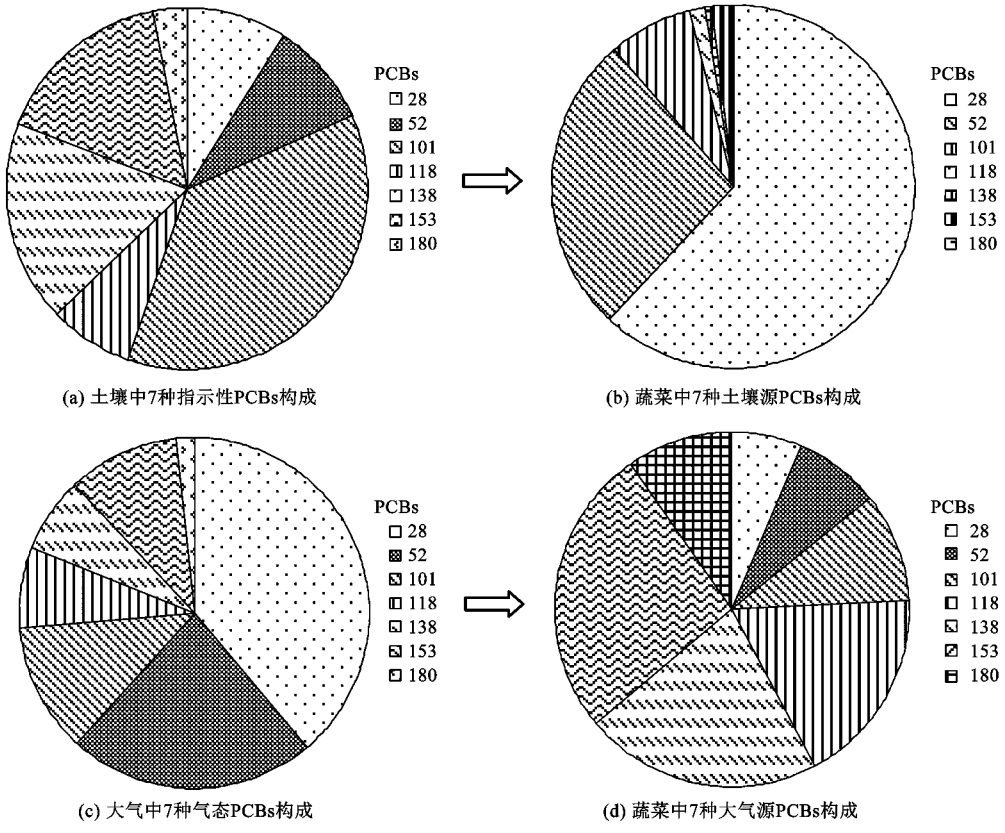

图 3 土壤、大气及蔬菜中 7 种指示性 PCBs 的构成

Fig. 3 Composition of seven indicated PCBs in soil, air and leafy vegetable

的构成比例发生了很大变化,随氯代数变化没有表现出规律性,低氯代 PCBs 所占的比例降低很多,较高氯代 PCBs 尤其是 PCB118(类二噁英)、PCB138、PCB153 所占的比例大增.

与 2.2.1 节影响土壤源系数 c、大气源系数 d 的变化原因类似,土壤中的 PCBs 以水溶液形式被植物吸收,低氯代 PCB28 的水溶解度高(见表 2),最终被植物所吸收的量就大,而 PCB101、PCB153 虽然在土壤中所占的比例很高,但是其水溶解度比 PCB28 分别小了 17 倍和 180 倍,最终被蔬菜吸收进入蔬菜中的量就少. 蔬菜中 7 种土壤源 PCBs 的构成比例随氯代数变化有很强的规律性,随氯代数增加,PCBs 的水溶解度降低,在蔬菜中的比例就降低,PCBs 的水溶解度是决定蔬菜中土壤源 PCBs 构成比例的主要因素. 大气中的气态 PCBs 进入蔬菜后,在大气中比例很高的低氯 PCBs 在蔬菜中的比例降低很多,高氯代 PCBs 的比例占优,原因在于气态 PCBs 进入蔬菜体内主要通过植物叶片中的气孔、蜡质及角质层吸收,亲脂性越高的 PCBs 越容易吸收;从式(7)中可以看出蔬菜中 PCBs 的含量取决于吸收系数 d 和大气中气态 PCBs 浓度,高氯代 PCBs 的亲脂性高,但在大气中的含量低,最终进入蔬菜中的绝对量相对不是很高. PCBs 在植物蜡质和角质层中的亲和性虽然很高但是不相同,植物吸收 PCBs 的速率依赖于 PCBs 的辛醇-大气分配系数及植物种类[21],因此蔬菜种类及蔬菜中蜡质和角质层含量也会影响 PCBs 在蔬菜中含量及构成.

2.2.3　影响蔬菜吸收 PCBs 平衡时间的因素

图 4 为蔬菜吸收 PCBs 达到 95% 稳定所需要的时间 t 与 PCBs 的 $\lg K_{ow}$ 和 $\lg K_{oa}$ 的关系. 时间 t 根据式(6)计算获得,7 种指示性 PCBs 的 $\lg K_{ow}$ 及 $\lg K_{oa}$ 由文献资料获得,如表 2 中所示. Trapp 吸收模型考虑了地下及地上 2 个动态吸收过程,蔬菜中 PCBs 含量是否达到稳定受这 2 个过程的控制. 从图 4 可以看出蔬菜中 PCBs 达到稳定的时间与 $\lg K_{ow}$、$\lg K_{oa}$ 有很好的乘幂相关性,从曲线变化趋势上看,PCBs 的 $\lg K_{ow}$、$\lg K_{oa}$ 较低时,随 $\lg K_{ow}$、$\lg K_{oa}$ 的变大蔬菜吸收 PCBs 达到稳定所需要的时间变化不很剧烈;对于 $\lg K_{ow}$、$\lg K_{oa}$ 较高的 PCBs,蔬菜吸收 PCBs 达到稳定所需时间随 $\lg K_{ow}$、$\lg K_{oa}$ 的变大快速增加. 图 4 中蔬菜吸收 PCBs 达到稳定的时间与 $\lg K_{oa}$ 的相关性更好一些. 采用 Origin8.0 分析软件,对蔬菜吸收 PCBs 达到 95% 稳定所需的时间 t 与 $\lg K_{ow}$、$\lg K_{oa}$ 进行多元线性回归分析,获得时间 t 与 $\lg K_{ow}$、$\lg K_{oa}$ 存在以下关系:

$$t = 0.05812\lg K_{ow} + 18.228\,71\lg K_{oa} - 155.96$$
$$(R^2 = 0.75, p < 0.05)$$

从中可以看出 PCBs 的 $\lg K_{oa}$ 是影响蔬菜吸收 PCBs 达到平衡所需时间更为重要的因素.

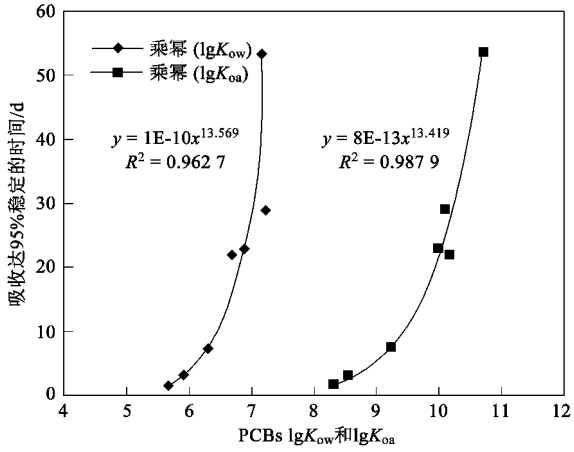

图 4　蔬菜吸收 PCBs 时间与 $\lg K_{ow}$、$\lg K_{oa}$ 关系

Fig. 4　Relationship between $\lg K_{ow}$ and $\lg K_{oa}$ to the uptake time of PCBs by vegetable

2.3　蔬菜对 PCBs 人体健康风险的影响

多氯联苯(PCBs)是一种混合污染物,对人体既有致癌效应又有非致癌效应,并且氯代程度越高毒性越大[28]. PCBs 在环境中存在的形态、赋存的环境介质均影响着 PCBs 进入人体的途径和生物有效性,PCBs 以不同环境介质为载体、经不同暴露途径对人体产生不同程度的毒性效应. 如 PCBs 经呼吸吸入 PCBs 的致癌斜率因子为 0.002 19 $[\mathrm{mg\cdot(kg\cdot d)^{-1}}]^{-1}$,而经皮肤接触和口腔摄入 PCBs 的致癌斜率因子为 2 $[\mathrm{mg\cdot(kg\cdot d)^{-1}}]^{-1}$[25]. 当大气、土壤、水体中的 PCBs 被动物、植物所吸收后,PCBs 赋存的环境介质及存在形态均发生了变化,并且改变了进入人体的途径,这势必改变 PCBs 对人体的毒性效应;另外,不同 PCBs 单体的理化性质差别很大,随氯代数增加其水溶解度降低、亲脂性增加,高氯代的 PCBs 更容易被生物体所吸收和积累,对人体的危害更大.

根据 Trapp 模型计算的蔬菜中大气源、土壤源 PCBs 所占的比例,考虑大气中土壤颗粒物在蔬菜上的残留为 1%,研究区居民食用的蔬菜中大气源 PCBs 所占比例为 98.82%,土壤源(包含土壤颗粒物残留)所占比例为 1.18%,以此比例计算 Trapp 模型模拟以及实测蔬菜中大气及土壤源 PCBs 的量. 图 5 为根据美国 EPA 人体健康风险评估模型,计算

研究区居民经呼吸吸入大气中气态 PCBs、经口摄入土壤、经皮肤接触土壤以及经食用蔬菜摄入 PCBs 对人体的致癌及非致癌风险. 图 5 中“实测-气相-蔬菜”指按上述蔬菜中大气源 PCBs 所占比例推算的蔬菜实测值中气相源 PCBs 的致癌及非致癌效应,“预测-气相-蔬菜”为按照上述比例推算的蔬菜预测值中气相源 PCBs 的致癌及非致癌效应,“实测-土壤-蔬菜”、“ 预测-土壤-蔬菜”与此含义类同.

从图 5 中可看出,大气中气态 PCBs、土壤中 PCBs 对人体的致癌风险低于可接受致癌风险 10^{-6},非致癌风险商低于 1;当气态 PCBs 被蔬菜吸收,对人体的致癌风险极大增加,实测及预测值均高于 10^{-5},非致癌风险商高于 2,与大气中气态 PCBs 被蔬菜吸收后对人体的影响不同,土壤中的 PCBs 被蔬菜吸收,以蔬菜为介质对人体的危害反而有所降低. 其原因主要有 2 个方面:①大气中气态 PCBs 主要是通过蔬菜地上部分吸收,蔬菜更容易吸收、储存毒性更大的高氯代 PCBs,并且大气中气态 PCBs 进入蔬菜后,其进入人体的方式从经呼吸吸入改变为经口摄入,对人体的致癌斜率因子增大了近1 000倍. 土壤中 PCBs 主要通过蔬菜根系吸收土壤溶液中溶解态 PCBs,毒性高的高氯代 PCBs 水溶解度低,不易被蔬菜吸收,蔬菜吸收的部分也是毒性较低的低氯代 PCBs,并且土壤中的 PCBs 和蔬菜中的 PCBs 均可经口进入人体,其致癌斜率因子没有发生改变;②根据式(7)中蔬菜中 PCBs 浓度与土壤中 PCBs 及大气 PCBs 含量的关系、我国居民每天食用蔬菜 185.4 g(鲜重)[29],可推算出研究区成人每天经食用蔬菜摄入的 PCBs 的量(以 7 种指示性 PCBs 计)相当于吸入 1 071.63 m^3 的空气,为正常情况下成人呼吸空气量的 71 倍多,这表明空气中的 PCBs 被蔬菜吸收后再被人食用的过程中,蔬菜起到了积累、放大 PCBs 人体摄入量的作用. 大气中气态及土壤中 PCBs 被蔬菜吸收后对人体的非致癌效应变化与致癌效应的变化趋势及原因相同.

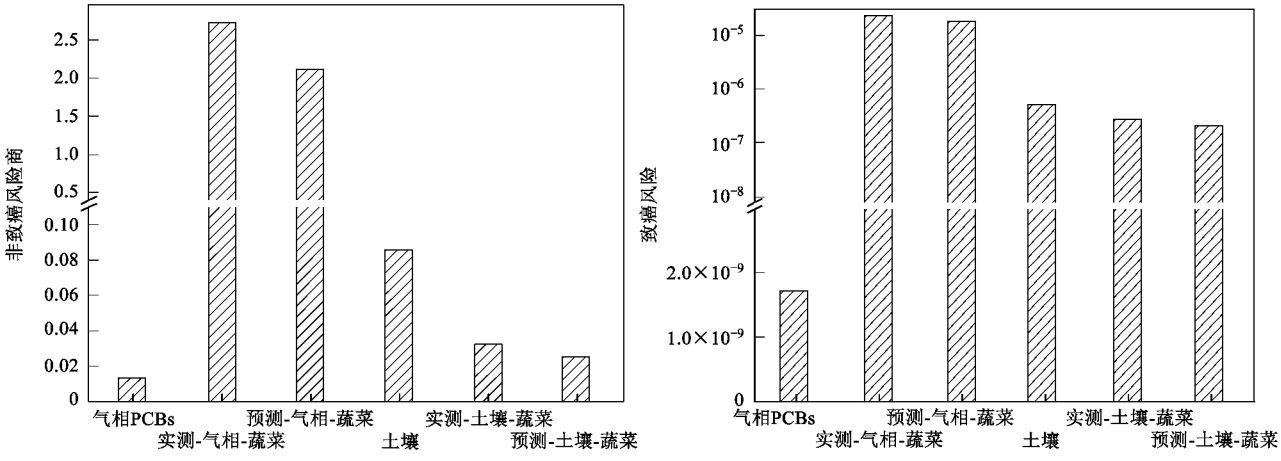

图 5 蔬菜对环境介质中 PCBs 致癌及非致癌风险的影响

Fig. 5 Effects of vegetable on the carcinogenic and non-carcinogenic of PCBs in the environmental media

3 结论

(1)Trapp 作物吸收模型可较好地根据土壤及大气中气态 PCBs 预测叶菜中 PCBs 的含量,模型预测值均在实测值范围内,与实测平均值相近.

(2)大气中气态 PCBs 是叶菜类蔬菜中 PCBs 的最主要来源;PCBs 的 K_{ow}、K_{oa}是决定蔬菜中 7 种指示性 PCBs 构成及影响蔬菜吸收 PCBs 达到稳定所需时间的主要因素,其中 K_{oa}的影响更大.

(3)大气中气态 PCBs 被蔬菜吸收后对人体的致癌风险增大了10 000多倍,非致癌风险商超过 2,主要原因有 2 个方面:①蔬菜更容易吸收积累大气中毒性大的高氯代 PCBs,气态 PCBs 被蔬菜吸收后以经口摄入的方式对人体的致癌斜率因子增加了近 1 000倍;②大气中气态 PCBs 经蔬菜以食物链的方式进入人体情况下,成人每天食用蔬菜摄入 PCBs(以 7 种指示性 PCBs 计)的量相当于呼吸吸入 1 071.63 m^3 的空气,为正常情况下成人呼吸空气量的 71 倍多. 而土壤中 PCBs 被蔬菜吸收后对人体的危害则有所降低.

(4)研究区大气气态 PCBs 是影响蔬菜 PCBs 含量及人体健康的最主要的环境介质,在加强研究区

气态 PCBs 排放源控制的同时,建议采用在研究区采用大棚种植蔬菜,尽量减少食用露天种植蔬菜.

参考文献:

[1] DeGrandchamp R L, Barron M G, McConaughy D. PCB analysis and risk assessment at navy installations Part A:Overview of PCB Mixtures[R]. USA,EPA,2005. 4.

[2] Czub G, McLachlan M S. A food chain model to predict the levels of lipophilic organic contaminants in humans[J]. Environ Toxicol Chem,2004,**23**:2356-2366.

[3] WHO(World Health Organisation). Principles for evaluating health risks in children associated with exposure to chemicals [R]. USA:IPCS,2007. 18-24.

[4] Adeola A A, Dena W M, Angus J B. In vitro approaches to assess bioavailability and human gastrointestinal mobilization of food-borne polychlorinated biphenyls (PCBs)[J]. J Environ Sci Heal (Part B),2008,**43**:410-421.

[5] Versluijs C W, Koops R, Kreule P, *et al*. The accumulation of soil contaminants in crop, location-specific calculation based on the CSOIL module. Part 1:Evaluation and suggestion for model development[R]. The Netherlands:Bilthoven,1998. 47-52.

[6] Rikken M G J, Lijzen J P A, Cornelese A A. Evaluation of model concepts on human exposure (Proposals for updating the most relevant exposure routes of CSOIL)[R]. The Netherlands: Bilthoven,2001. 83-91.

[7] Paterson S, Mackay D. Modeling the uptake and distribution of organic chemicals in plants. Intermedia Pollutant Transport: Modeling and field measurements [M]. New York: Plenum Press,1989. 283-292.

[8] Trapp S, Matthies M. Generic one-compartment model for uptake of organic chemicals by foliar vegetation [J]. Environ Sci Technol, 1995,**29**:2333-2338.

[9] 张瑜,吴以中,宗良纲,等. POPs 污染场地土壤健康风险评价[J]. 环境科学与技术,2008,**31**(7):135-140.

[10] 臧振远,赵毅,尉黎,等. 北京市某废弃化工厂的人类健康风险评价[J]. 生态毒理学报,2008,**3**(1):48-54.

[11] 丁会请. 大连经济技术开发区空气中挥发性有机物的检测与健康风险评估[D]. 大连:大连理工大学,2006.

[12] 王慧芬. 典型污染区土壤-植物中 PCBs 污染特征及健康风险评价[D]. 杭州:浙江大学,2008.

[13] Charlotte N L, Trapp S. Modeling the exposure of children and adults via diet to chemicals in the environment with crop-specific models[J]. Environ Pollut,2009,**157**:778-785.

[14] Tom H, Mahiba S, Miriam D, *et al*. Using passive air samplers to assess urban - Rural trends for persistent organic pollutants. 1. Polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides [J]. Environ Sci Technol,2004,**38**:4474-4483.

[15] 王俊,张干,李向东,等. 利用 PUF 被动式采样技术检测珠江三角洲地区大气中多氯联苯分布[J]. 环境科学,2007,**28**(3):478-481.

[16] Bromilow R H, Chamberlain K. Principles governing uptake and transport of chemicals. In: Plant Contamination[M]. Florida, USA:Lewis Boca Raton, 1995. 37-68.

[17] D Mackay, Shiu W Y, Ma K C, *et al*. Handbook of physical-chemical properties and environmental fate for organic chemicals. Volume Ⅱ: Halogenated Hydrocarbons[M]. New York:Taylor & Francis Group,2006.

[18] Jonathan L B, Gareth O T, Gerha D, *et al*. Study of Plant-Air Transfer of PCBs from an Evergreen Shrub: Implications for Mechanisms and Modeling[J]. Environ Sci Technol, 2003, **37**: 3838-3844.

[19] Briggs G, Bromilow R, Evans A. Relationships between lipophilicity and root uptake and translocation of non-ionised chemicals by barley[J]. Pestic Sci 1982,**13**:495-504.

[20] Francis C H, Marxmiller R L, Yang A S. Study of root uptake and xylem translocation of cinmethylin and related compounds in detopped soybean roots using a pressure chamber technique[J]. Plant Physiol,1990,**93**:1573-1578.

[21] Claudia M, Gareth O T, Jonathan L B, *et al*. Uptake and storage of PCBs by plant cuticles[J]. Environ Sci Technol,2008,**42**: 100-105.

[22] Mclachlan M S. Framework for the interpretation of measurements of SOCs in plants[J]. Environ Sci Technol, 1999, **33**: 1799-1804.

[23] Smith K E C, Jones K C. Particles and vegetation: implications for transfer of particle bound organic contaminants to vegetation [J]. Sci Total Environ,2000,**246**:207-236.

[24] Sheppard S C, Evenden W G. Contaminant enrichment of sparingly soluble contaminants (U, Th and Pb) by erosion and by soil adhesion to plants and skin [J]. Environ Geochem Health,1992,**14**:121-131.

[25] USA. Risk assessment information system (RAIS) [EB/OL]. Department of Energy's Oak Ridge Operations Office (ORO). http://rais. ornl. gov/cgi-bin/tools.

[26] Jonathanl B, Garetho T, Rebekah B, *et al*. Exchange of polychlorinated biphenyls (PCBs) and polychlorinated naphthalenes (PCNs) between air and a mixed pasture sward [J]. Environ Sci Technol,2004,**38**:3892-3900.

[27] Wild E, Dent J, Thomas G O, *et al*. Visualizing the air-to-leaf transfer and within-leaf movement and distribution of phenanthrene: Further studies utilizing two-photon excitation microscopy [J]. Environ Sci Technol,2006,**40**:907-916.

[28] Richard L D, Mace G B, David M. PCB analysis and risk assessment at navy installations. Part B:PCB human health risk assessment[R]. USA:EPA,2005. B-1-B-4.

[29] 中华人民共和国卫生部. 2008 中国卫生统计年鉴[EB/OL]. http://www. moh. gov. cn/publicfiles/business/htmlfiles/zwgkzt/ptjnj/year2008/8. htm.