

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第10期

Vol.38 No.10

**2017**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

中国城市热岛时空特征及其影响因子的分析 ..... 曹畅, 李旭辉, 张弥, 刘寿东, 徐家平 (3987)  
卫星遥感在 NO<sub>x</sub> 总量控制中的应用 ..... 武卫玲, 薛文博, 王燕丽, 雷宇 (3998)  
京津冀城市群空气污染的模式总结与治理效果评估 ..... 王振波, 梁龙武, 林雄斌, 刘海猛 (4005)  
南京北郊冬春季气溶胶数浓度变化特征分析 ..... 吴丹, 张璠, 刘刚, 吴明, 夏俊荣, 盖鑫磊, 李凤英, 杨孟 (4015)  
冬季临安大气本底站气溶胶来源解析及其粒径分布特征 ..... 施双双, 王红磊, 朱彬, 林旭, 郭婷, 沙丹丹, 蒋琳, 张玉欣, 师远哲 (4024)  
成都市大气颗粒物粒径分布及水溶性离子组成的季节变化特征 ..... 陶月乐, 李亲凯, 张俊, 李斯奇, 李晓东 (4034)  
泉州市大气 PM<sub>2.5</sub> 中水溶性离子季节变化特征及来源解析 ..... 张云峰, 于瑞莲, 胡恭任, 孙境蔚, 张棕巍, 许文质 (4044)  
2011~2012 年北京大气 PM<sub>2.5</sub> 中重金属的污染特征与来源分析 ..... 周雪明, 郑乃嘉, 李英红, 段菁春, 谭吉华, 张元勋, 贺克斌, 马永亮 (4054)  
厦门海沧区 PM<sub>2.5</sub> 中金属元素污染评价及来源分析 ..... 赵莉斯, 于瑞莲, 徐玲珍, 胡恭任, 吴鑫, 陈衍婷 (4061)  
道路扬尘 PM<sub>2.5</sub> 中金属元素污染特征及健康风险评价 ..... 张静, 张衍杰, 方小珍, 李风华, 吴琳, 毛洪钧 (4071)  
福建九仙山大气 PM<sub>10</sub> 及部分化学组成的季节变化 ..... 魏雅, 林长城, 胡清华, 吴水平 (4077)  
北京城区冬季空气污染时期 C2~C6 碳氢化合物含量特征 ..... 李月, 魏巍, 杨干, 陈东升, 程水源, 韩力慧 (4084)  
2016 年北京市春节大气颗粒物污染特征激光雷达监测分析 ..... 石琳琳, 李令军, 李倩, 姜磊, 周一鸣, 李云婷, 刘保献, 张大伟 (4092)  
廊坊市夏季臭氧体积分数影响因素及生成敏感性 ..... 李磊, 赵玉梅, 王旭光, 刘炜, 佟洁, 宋丽芸, 李怀瑞, 王清川 (4100)  
人类活动对漓江地表水体水-岩作用的影响 ..... 李磊, 赵玉梅, 王旭光, 刘炜, 佟洁, 宋丽芸, 李怀瑞, 王清川 (4108)  
岩溶区水库冬季溶解有机质组成特征及来源:以桂林五里峡水库为例 ..... 卢晓漩, 彭文杰, 李强, 房君佳, 靳振江, 宋昂, 黄炳惠, 于爽 (4120)  
岩溶关键带微量元素运移的时空变化:以豫西鸡冠洞为例 ..... 梁沙, 杨琰, 张娜, 孙喆, 张萍, 田宁, 凌新有, 任小敏 (4130)  
龟石水库夏季富营养化状况与蓝藻水华暴发特征 ..... 苟婷, 马千里, 王振兴, 王丽, 姚玲爱, 许振成, 赵学敏, 梁荣昌, 蓝郁 (4141)  
阿哈水库叶绿素 a 时空分布特征及其与藻类、环境因子的关系 ..... 罗宜富, 李磊, 李秋华, 焦树林, 李红梅, 陈峰峰 (4151)  
天目湖沙河水库浮游植物群落结构的时空异质性 ..... 孙祥, 朱广伟, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽, 史浩辰, 杭心语, 徐涤非 (4160)  
程海沉积物重金属时空变化及人为污染与潜在生态风险 ..... 于真真, 刘恩峰, 张恩楼, 林琪, 沈吉, 王荣, 李艳玲 (4169)  
自然降雨条件下红壤坡地磷素随径流垂向分层输出特征 ..... 左继超, 郑海金, 奚同行, 王凌云, 聂小飞, 刘昭 (4178)  
邻苯二甲酸酯在三峡库区消落带非淹水期土壤中污染特征及健康风险 ..... 杨婷, 何明靖, 杨志豪, 魏世强 (4187)  
滦河干流水体多环芳烃与有机氯农药季节性分布、组成及源解析 ..... 王乙震, 张世禄, 孔凡青, 袁媛 (4194)  
潍坊滨海经济技术开发区饮用水中有机磷酸酯的水平及人体暴露风险评估 ..... 董政, 马玉龙, 李珺琪, 袁浩东, 金军, 王英 (4212)  
道路灰尘中有机磷阻燃剂污染特征及人体暴露 ..... 李静, 王俊霞, 许婉婷, 尚荣双, 顾海东, 温耀进, 张丽君 (4220)  
居民经手口途径摄入含 PAHs 颗粒物的致癌风险评价 ..... 佟瑞鹏, 杨校毅, 张磊, 程蒙召 (4228)  
基于空间自相关的地下水脆弱性时空演变 ..... 刘宇, 兰双双, 张永祥, 李芳春, 侯树楷 (4236)  
Ag-AgI/CN/MA 复合物的制备及其可见光催化性能 ..... 张塞, 张丽丽, 胡春 (4245)  
凤眼莲对富营养化水体中氨氮化和反硝化微生物的影响 ..... 李洁, 蒋丽娟, 王晓琳, 肖琳 (4253)  
利用含 Cu(II) 废水强化微生物燃料电池处理含 Cr(VI) 废水 ..... 熊晓敏, 吴夏芈, 贾红华, 雍晓雨, 周俊, 韦萍 (4262)  
生态高负荷土地快速渗滤系统处理猪场废水的效能及微生态 ..... 宿程远, 刘凡凡, 钟余, 黄智, 郑鹏, 农志文, 卢宇翔 (4271)  
细菌对城市污水中小球藻生长和油脂积累的影响 ..... 涂仁杰, 金文标, 韩松芳, 陈洪一 (4279)  
污水处理厂消毒技术对抗生素抗性菌的强化去除 ..... 刘亚兰, 马岑鑫, 丁河舟, 邱勇, 李冰, 王硕, 李激 (4286)  
AnMBR-A-MBR 和 A<sup>2</sup>-MBR 工艺处理焦化废水效果与急性毒性物质特征对比 ..... 朱佳迪, 李菲菲, 陈吕军 (4293)  
基于实时控制技术的 CANON 工艺稳定性运行 ..... 孙延芳, 韩晓宇, 张树军, 李星, 曹相生 (4302)  
新型硫铁复合填料强化再生水深度脱氮除磷 ..... 周彦卿, 郝瑞霞, 刘思远, 王丽莎 (4309)  
连续流亚硝化中试反应器的启动及其能力提升 ..... 朱强, 刘凯, 董石语, 顾澄伟, 王凡, 李祥, 黄勇 (4316)  
基于不同接种污泥复合型厌氧氨氧化反应器的快速启动特征 ..... 阎刚, 李田, 徐乐中, 沈耀良, 吴鹏, 张婷, Samwine Thomas (4324)  
两段式曝气对好氧颗粒污泥脱氮性能的影响 ..... 王文啸, 卞伟, 王盟, 阚睿哲, 赵青, 梁东博, 李军 (4332)  
醋糟高效厌氧消化体系构建 ..... 周云龙, 许之扬, 赵明星, 施万胜, 黄振兴, 何迪, 阮文权 (4340)  
基于总量及形态的土壤重金属生态风险评价对比:以龙岩市适中镇为例 ..... 王蕊, 陈明, 陈楠, 刘冠男, 张二喜, 刘晓端, 张佳文 (4348)  
锌冶炼区耕地土壤和农作物重金属污染状况及风险评价 ..... 陈凤, 董泽琴, 王程程, 韦雪花, 胡宇, 张丽娟 (4360)  
三峡库区典型消落带 CH<sub>4</sub> 排放的变化特征及影响因素 ..... 柴雪思, 郝庆菊, 黄哲, 范志伟, 江长胜 (4370)  
地膜覆盖对菜地生态系统 N<sub>2</sub>O 排放的影响 ..... 冯迪, 郝庆菊, 张凯莉, 石将来, 石孝均, 江长胜 (4380)  
不同用量竹炭对污泥堆肥过程温室气体排放的影响 ..... 向秋洁, 杨雨洽, 张成, 相欣奕, 木志坚 (4390)  
半固态培养条件下烟曲霉去除土壤中镉 ..... 陈耀宁, 汪元南, 黎媛萍, 李辉, 陈艳容, 伍艳馨, 苟宇, 朱福造, 张道利, 刘耀, 曾光明 (4398)  
猪粪堆肥过程中金霉素去除及重金属形态变化 ..... 温沁雪, 曹永森, 陈志强 (4405)  
堆肥-生物强化对重度石油污染土壤的修复作用 ..... 吴蔓莉, 陈凯丽, 叶茜琼, 祁燕云, 徐会宁, 王卓, 薛鹏飞, 朱常琳 (4412)  
微生物多样性对土壤碳代谢特征的影响 ..... 安丽芸, 李君剑, 严俊霞, 李洪建 (4420)  
冬小麦田 O<sub>3</sub> 气孔与非气孔沉降及风险评估 ..... 徐静馨, 郑有飞, 赵辉, 储仲芳, 黄积庆, 袁月 (4427)  
中国西南酸雨区降水化学特征研究进展 ..... 周晓得, 徐志方, 刘文景, 武瑶, 赵童, 蒋浩 (4438)  
《环境科学》征稿简则(4261) 《环境科学》征订启事(4270) 信息(4186, 4404, 4446)

# 道路灰尘中有机磷阻燃剂污染特征及人体暴露

李静<sup>1</sup>, 王俊霞<sup>1\*</sup>, 许婉婷<sup>2</sup>, 尚荣双<sup>2</sup>, 顾海东<sup>1</sup>, 温耀进<sup>2</sup>, 张丽君<sup>1\*</sup>

(1. 苏州科技大学环境科学与工程学院, 苏州 215009; 2. 苏州科技大学天平学院, 苏州 215000)

**摘要:** 利用气质联用仪(GC-MS)定量分析了苏州市 25 个道路灰尘样品中 4 种有机磷阻燃剂(organophosphate flame retardants, OPFRs)的含量水平和分布特征,并估算了成人、儿童和环卫工人灰尘摄入和呼吸暴露两种不同途径的日暴露量。结果表明,在灰尘样品中 4 种 OPFRs 均有不同程度检出,总 OPFRs 的含量范围为 ND~8 901.66 ng·g<sup>-1</sup>,中位值为 1 039.21 ng·g<sup>-1</sup>。三(1-氯-2-丙基)磷酸酯[Tris(1-chloro-2-propyl) phosphate, TCPP]、磷酸三(丁氧基乙基)酯[Tris(2-butoxyethyl) phosphate, TBEP]、磷酸三(1,3-二氯-2-丙基)酯[Tris(1,3-dichloro-2-propyl) phosphate, TDCPP]和磷酸三(2-氯乙基)酯[Tris(2-chloroethyl) phosphate, TCEP]含量范围分别为 0~6 931.46、0~2 021.15、0~788.44 和 0~62.16 ng·g<sup>-1</sup>。在高暴露情景下,成人、儿童和环卫工人通过摄入灰尘暴露  $\sum$  OPFRs 的日均暴露量分别是 125.68、915.78 和 6 314.16  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ,儿童的暴露量比普通成人高 6 倍;而成人、儿童和环卫工人通过呼吸途径暴露  $\sum$  OPFRs 的日均暴露量分别为 3.07E-02、1.89E-02 和 1.54E-01  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。因此灰尘中 OPFRs 对于儿童和环卫工人的潜在危害更大。

**关键词:** 有机磷阻燃剂; 室外灰尘; 含量水平; 分布特征; 暴露

中图分类号: X131; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)10-4220-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.201702001

## Contamination Characteristics and Human Exposure to Organophosphate Flame Retardants in Road Dust from Suzhou City

LI Jing<sup>1</sup>, WANG Jun-xia<sup>1\*</sup>, XU Wan-ting<sup>2</sup>, SHANG Rong-shuang<sup>2</sup>, GU Hai-dong<sup>1</sup>, WEN Yao-jin<sup>2</sup>, ZHANG Li-jun<sup>1\*</sup>

(1. School of Environmental Science and Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China; 2. School of Tianping, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215000, China)

**Abstract:** The contamination levels and distribution characteristics of four organophosphate flame retardants (OPFRs) in 25 outdoor dust samples collected in Suzhou were quantitatively analyzed by gas chromatography-mass spectrometry (GC-MS). The exposure to OPFRs via ingestion and inhalation of dust were also estimated for adults, children, and professional street sweepers. Four types of OPFRs were detected in all dust samples at different levels; the total OPFRs concentrations ranged from non-detected (ND) to 8 901.66 ng·g<sup>-1</sup>, with a median of 1 039.21 ng·g<sup>-1</sup>. The concentrations of TCPP, TBEP, TDCPP, and TCEP were in the range of 0-6 931.46, 0-2 021.15, 0-788.44, and 0-62.16 ng·g<sup>-1</sup>, respectively. The daily intake of  $\sum$  OPFRs under a high dust ingestion scenario was 125.68, 915.78, and 6 314.16  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$  for adults, children, and professional street sweepers, respectively. The estimated exposure of children to  $\sum$  OPFRs was six times higher than that of adults. However, the daily intake of OPFRs via dust inhalation was 3.07E-02, 1.89E-02, and 1.54E-01  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$  for adults, children, and professional street sweepers, respectively. These findings indicated that the occurrence of OPFRs in the dust poses a significant risk to children and professional street sweepers.

**Key words:** organophosphorus flame retardants; road dust; contamination level; distribution characteristic; exposure

近年来有机磷阻燃剂(organophosphate flame retardants, OPFRs)作为一类重要的阻燃剂和增塑剂被广泛应用于纺织、装饰、建筑和电子设备中,已成为溴代阻燃剂的主要替代品<sup>[1]</sup>,2010年国内有机磷阻燃剂总产量约 12.5 万 t<sup>[2]</sup>,预计 OPFRs 使用量每年增长约 15%<sup>[3]</sup>。含氯的 OPFRs 常被用作阻燃剂,如三(1-氯-2-丙基)磷酸酯[Tris(1-chloro-2-propyl) phosphate, TCPP]、磷酸三(2-氯乙基)酯[Tris(2-chloroethyl) phosphate, TCEP]和磷酸三(1,3-二氯-2-丙基)酯[Tris(1,3-dichloro-2-propyl)

phosphate, TDCPP]作为阻燃剂添加到刚性和柔性聚氨酯泡沫中,非含氯 OPFRs 常用作增塑剂,如磷酸三(丁氧基乙基)酯[Tris(2-butoxyethyl) phosphate, TBEP]主要作为增塑剂添加到橡胶和塑料中,添加量为聚合材料重的 0.5%~8.0% 之间。

收稿日期: 2017-02-02; 修订日期: 2017-04-28

基金项目: 江苏省高校自然科学重大项目(15KJA610003); 苏州市科技计划项目(SS201612, SNG201612); 江苏省高校大学生创新创业训练计划项目(201613985006Y)

作者简介: 李静(1992~),女,硕士研究生,主要研究方向为新型 POPs 的环境行为, E-mail: 511461448@qq.com

\* 通信作者, E-mail: wjx\_7297@163.com; zhanenzhang@126.com

由于其主要以物理添加的方式与材料结合, 普遍具有较低的蒸气压和半挥发性, 在产品的生产、使用和回收处理过程中易于释放到环境中<sup>[4]</sup>. 目前已在室外环境如大气、大气颗粒物和灰尘<sup>[5]</sup>以及室内空气<sup>[6]</sup>、水和土壤<sup>[7-9]</sup>等介质中均检出 OPFRs, 而且在生物体<sup>[10,11]</sup>、母乳和尿液中也发现了 OPFRs, 这说明 OPFRs 能够被生物和人类吸收代谢. 有关 OPFRs 毒性的研究表明, 多种 OPFRs 具有神经毒性、生殖毒性、致癌性、基因毒性<sup>[12,13]</sup>, 尤其是本研究选择的 4 种 OPFRs.

道路灰尘由沉积在道路上的固体颗粒组成, 被认为是从周围地区积累短期环境物质的储层<sup>[14]</sup>, 而且道路灰尘一般来自路面磨损物质、车辆有关的沉积颗粒、大气和植物沉积颗粒物以及附近土壤腐蚀产物等, 道路灰尘中 POPs 可通过风携带或蒸发再次进入大气, 据报道马路灰尘占城市大气中 PM<sub>2.5</sub> 的 10% 以上<sup>[15]</sup>. 吸入扬尘对人体健康具有严重风险, 尤其对环卫工人、行人、交警等. 灰尘经常被报道含有较高含量的 POPs<sup>[16]</sup>, 人体通过灰尘吸入产生的 OPFRs 的暴露也至关重要. 室外大气中 OPFRs 来源主要是大气传输和干湿沉降, 也可能来自室内大气. 空气中的 OPFRs 主要以分子形态悬浮在空气中或者附着在悬浮颗粒物上, 后者更为重要<sup>[17]</sup>.

2016 年苏州市常住人口超过 1000 万, 成为超大城市之一, 随着城市化和工业化发展, 其阻燃剂的使用量也急剧增加, 而且纺织业和服装业是苏州市的主要产业, 2010 年纺织业从业人员超过 15 万人, 尽管大部分纺织业已迁出苏州市区, 但苏州仍是纺织品出口基地之一. 苏州市区交通拥挤、人口密度大, 加上近年建筑施工频繁, 均可能释放大量有机磷阻燃剂. 因此关于苏州地区 OPFRs 的污染特征和人体暴露应引起广泛关注. 本研究采集了苏州市典型区域 25 个道路灰尘样品, 分析了道路灰尘中多种 OPFRs 的含量及组成, 并初步评估了不同人群通过这一途径的暴露水平.

## 1 材料与方法

### 1.1 研究区域和采样

选择苏州市代表不同功能的 6 个城市化区域为研究区域, 包括工业园区、姑苏区、吴中区、高新区、相城区和吴江区, 松陵位于吴江与苏州市区交界处, 污染源较少, 因此选择作为对照区. 考虑到工业区、商业区和居民区是城市环境中典型的功能

区, 并且路边灰尘能吸附部分污染物, 根据苏州市行政区划范围内的轨道交通路线, 于 2016 年 11 月 3~4 日从不同区域随机采集了 25 个点的室外灰尘样品(见图 1), 采样面积约为 2~8 m<sup>2</sup>, 市中心区域清扫频率一日 2~3 次, 郊区清扫频率一日一次, 每个采样点采样量约为 1.0~15.0 g, 详见表 1.

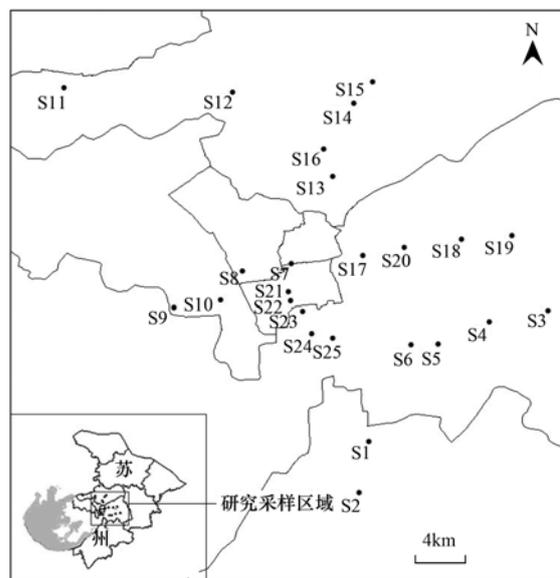


图 1 采样点示意

Fig. 1 Map of sampling sites

灰尘的采集使用软毛刷作为采样工具<sup>[16]</sup>, 采样前将软毛刷用蒸馏水洗净, 烘干后再用乙腈清洗并晾干, 用锡箔纸包裹备用. 采用表面擦拭法收集路面、台阶等区域的灰尘, 每个样品分别用锡箔纸包裹放于干净的塑封袋中, 带回实验室后用不锈钢镊子去除灰尘中的砂石等, 过 100 目不锈钢筛后用锡箔纸包裹, 于 -20℃ 低温避光保存.

### 1.2 仪器与试剂

三重四级杆串联气相色谱-质谱联用仪(德国布鲁克 SCION TQ), SPE 固相萃取装置(12 位, CNW), C-18 SPE 柱(200 mg, 3 mL, CNW). 4 种目标化合物标准品分别为:TDCPP、TBEP、TCEP 和 TCPP. 替代物为氘代磷酸三丁酯(TBP-D27), 内标物为氘代磷酸三苯酯(TPhP-D15).

### 1.3 样品分析

灰尘中 OPFRs 的处理方法参考已报道的固体基质中 OPFRs 的方法<sup>[18]</sup>. 准确称取灰尘样品 0.1 g, 加入 5 mL 甲醇, 于 25℃ 超声萃取 20 min, 以 4 000 r·min<sup>-1</sup> 离心 5 min, 静置片刻后取出上清液, 再加入 5 mL 萃取剂重复上述操作, 合并萃取液, 用氮吹仪氮吹至干, 1 mL 正己烷回溶, 上样到已用

表 1 采样点信息描述

Table 1 Description of sampling sites

编号	地点	周围环境	功能区	采样量
S1	松陵	位于苏州南部吴江区边界, 靠近太湖, 附近有公园、环境优美	对照	6.3
S2	宛平	附近有多小型纺织、塑料公司	工业区	5.0
S3	桑田岛	远离市区, 附近多个电子科技公司	郊区	3.3
S4	松涛街	工业区, 科研教育区、高新技术园区	工业区	2.0
S5	独墅湖南	交通干线, 临近生态公园	交通区	1.4
S6	郭苑路	居民区, 新建公寓	居民区	8.3
S7	广济南路	商业区, 交通干线, 人员密集	商业区	8.5
S8	滨河路	附近有居民区和校园	居民区	12.1
S9	木渎	商业区, 较多新型建筑和公共建筑, 包括纺织品买卖点	商业区	14.5
S10	玉山路	商业区, 公共建筑多	商业区	3.3
S11	望亭	地处郊区, 人口稀疏	郊区	13.7
S12	黄埭	远离市区, 零散商业点	郊区	15.2
S13	元和街道	相城区文化中心, 交通干线, 附近较多停车场, 相对于主城区人口较少	交通区	4.2
S14	高铁北站	交通枢纽, 车流量大, 人员密集	交通区	3.9
S15	骑河	远离市区, 人员稀少	郊区	6.4
S16	蠡口	居民区、文化服务中心	居民区	2.5
S17	东环路	临近校园和居民区, 人员密集	居民区	2.0
S18	星湖街	商业区, 较多公共建筑, 新建大厦	商业区	2.0
S19	钟南街	交通干线, 附近有电器公司	交通区	1.4
S20	东方之门	商业区, 均是新装修建筑, 人员密集, 交通量大	商业区	2.6
S21	胥江路	居民区密集, 新老住宅混合, 南环高架附近	居民区	5.6
S22	桐泾公园	居民区与商业区混合, 临近公园	景区	2.3
S23	友联	居民区, 新建公寓, 配套商业区	居民区	10.6
S24	新家桥	商业区与工业区混合	工业区	2.0
S25	石湖东路	居民区	交通区	8.0

5 mL 甲醇活化好的 C-18 柱. 10 mL 超纯水淋洗小柱以去除杂质, 真空抽 30 min 去除水分. 10 mL 乙酸乙酯进行洗脱, 将洗脱液氮吹至干用 0.5 mL 乙腈回溶后过 0.22  $\mu\text{m}$  有机相滤膜, 置于棕色进样瓶待仪器检测.

使用布鲁克气质联用仪(EI 源)(GC456-SCION TQ, Bruker Daltonics Inc.)对样品中 OPFRs 进行分析, 选择离子检测模式(SIM), 载气为高纯氦气. 选用 DB-5HT(15 m  $\times$  0.25 mm  $\times$  0.1  $\mu\text{m}$ , Agilent Technologies)毛细管柱. 进样口、传输线和离子源温度分别为 270 $^{\circ}\text{C}$ 、300 $^{\circ}\text{C}$  和 250 $^{\circ}\text{C}$ , 不分流进样, 进样体积为 1  $\mu\text{L}$ . 升温程序:60 $^{\circ}\text{C}$  保持 1 min, 以 40  $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$  升温到 150 $^{\circ}\text{C}$ , 保持 1min, 再以 20  $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$  升温到 280 $^{\circ}\text{C}$ , 保持 5min. 载气流速为 1.5 mL $\cdot\text{min}^{-1}$ .

#### 1.4 质量保证与质量控制(QA/QC)

实验中每个样品进行 3 组平行样的测定, 每批实际样品运行 1 个空白样、加标空白控制实验过程中可能引入的污染. 另外用空白基质加标实验控制方法的可行性, 将风景区室外灰尘样品经丙酮:二氯甲烷(1:1, 体积比)混合液浸泡后于 450 $^{\circ}\text{C}$  的烘箱

中烘 12 h 以去除灰尘中有机物作为空白基质, 添加高、中、低浓度的 4 种 OPFRs 标准品制成基质加标样品, 其平均回收率为 69% ~ 135%, 在所有样品萃取前均添加已知量的替代物 TPhP-D15, 其回收率为 89%  $\pm$  15%. 每个待测物的方法检出限(LODs)定义为 3 倍空白值的标准偏差除以每次分析灰尘的量(以 0.1 g 灰尘样品). 灰尘样品中 4 种 OPFRs 的 LODs 为 3 ~ 15 ng $\cdot\text{g}^{-1}$ .

## 2 结果与讨论

### 2.1 OPFRs 的含量水平

表 2 显示 3 种含氯 OPFRs 在 25 个采样点中有不同程度的检出, TCPP 检出率为 88%, TDCPP 的检出率为 44%, TBEP 检出率为 92%, 但 TCEP 多数未检出, 这与其他地区室外大气中含氯 OPFRs 的检出率相似<sup>[19]</sup>. 在苏州市区道路灰尘中 OPFRs 的总含量范围是 ND ~ 8 901.66 ng $\cdot\text{g}^{-1}$ , 平均含量 1 907.88 ng $\cdot\text{g}^{-1}$ , 对照区未检出. 苏州市区灰尘中 4 种 OPFRs 中均值最高的为 TBEP, 均值为 915.46 ng $\cdot\text{g}^{-1}$ , 其次为 TCPP, 均值为 804.07 ng $\cdot\text{g}^{-1}$ , 再次为 TDCPP, 均值为 185.09 ng $\cdot\text{g}^{-1}$ ; TCEP 在大部分

样品中未检出, 含量范围是 ND ~ 62.16 ng·g<sup>-1</sup>, 均值为 3.25 ng·g<sup>-1</sup>. 这可能与 TCEP 相对于其他待测物更易溶于水、更易挥发有关<sup>[20]</sup>, 不易于积累在灰尘上.

表 2 25 个室外灰尘样品中有机磷阻燃剂的含量<sup>1)</sup>/ng·g<sup>-1</sup>

Table 2 Concentrations of OPFRs in 25 outdoor dust samples/ng·g<sup>-1</sup>

编号	TCEP	TCPP	TDCPP	TBEP	∑ OPFRs
S1	ND	ND	ND	ND	—
S2	62.16(53.25 ~ 78.65)	152.49(135.56 ~ 181.09)	ND	738.73(651.63 ~ 872.71)	953.39(840.44 ~ 1 132.45)
S3	3.12(1.12 ~ 6.23)	43.79(37.54 ~ 47.30)	ND	442.35(348.60 ~ 578.48)	489.25(387.26 ~ 632.01)
S4	ND	413.36(383.65 ~ 454.75)	630.48(491.77 ~ 784.61)	1 480.46(1 353.57 ~ 1 701.08)	2 524.30(2 228.99 ~ 2 940.44)
S5	ND	384.95(373.27 ~ 404.13)	430.41(291.70 ~ 591.73)	883.62(839.19 ~ 909.30)	1 698.98(1 504.16 ~ 1 905.16)
S6	ND	591.77(462.42 ~ 721.13)	667.14(463.96 ~ 870.32)	961.69(783.14 ~ 1 140.25)	2 220.61(1 709.52 ~ 2 731.70)
S7	ND	673.13(637.15 ~ 720.78)	788.44(760.10 ~ 805.68)	1 295.97(1 174.66 ~ 1 511.03)	2 757.54(2 571.91 ~ 3 037.49)
S8	ND	884.52(808.30 ~ 1 007.47)	ND	1 675.66(1 432.95 ~ 2 012.12)	2 560.19(2 241.25 ~ 3 019.59)
S9	ND	6 931.46(6 521.53 ~ 7 224.59)	ND	1 970.20(266.35 ~ 3 580.32)	8 901.66(6 787.88 ~ 10 804.91)
S10	ND	725.09(577.30 ~ 978.00)	ND	2 021.15(1 829.93 ~ 2 306.12)	2 746.25(2 407.23 ~ 3 284.12)
S11	ND	ND	ND	ND	—
S12	ND	32.71(35.01 ~ 63.11)	55.24(ND ~ 102.16)	290.89(ND ~ 563.03)	378.84(35.01 ~ 728.30)
S13	ND	86.11(67.49 ~ 112.90)	234.76(193.49 ~ 287.26)	451.53(441.45 ~ 460.89)	772.40(702.43 ~ 861.05)
S14	8.41(ND ~ 15.29)	67.22(61.76 ~ 72.10)	ND	687.93(618.07 ~ 750.58)	763.56(679.83 ~ 837.97)
S15	ND	43.21(42.03 ~ 45.04)	ND	466.39(400.81 ~ 525.41)	509.60(442.84 ~ 570.45)
S16	7.46(ND ~ 13.83)	50.58(46.47 ~ 55.05)	ND	369.12(287.58 ~ 431.91)	427.17(334.05 ~ 500.79)
S17	ND	532.01(491.64 ~ 602.57)	624.71(508.52 ~ 801.96)	2 010.63(1 254.27 ~ 2 512.69)	3 167.35(2 254.43 ~ 3 917.22)
S18	ND	488.25(394.75 ~ 581.74)	420.21(360.57 ~ 479.85)	1 583.56(1 400.54 ~ 1 766.59)	2 492.02(2 155.86 ~ 2 828.18)
S19	ND	391.80(239.85 ~ 543.75)	626.10(516.24 ~ 735.96)	1 876.08(1 476.66 ~ 2 275.51)	2 893.99(2 232.75 ~ 3 555.22)
S20	ND	4 329.39(3 887.86 ~ 4 766.24)	ND	931.97(778.10 ~ 1 080.21)	5 261.36(4 665.96 ~ 5 846.45)
S21	ND	2 656.51(1 561.18 ~ 3 319.23)	ND	1 022.18(707.74 ~ 1 252.97)	3 678.69(2 268.92 ~ 4 572.20)
S22	ND	74.96(ND ~ 118.38)	ND	210.03(ND ~ 412.55)	284.99(ND ~ 530.93)
S23	ND	119.11(113.07 ~ 125.03)	ND	516.44(407.11 ~ 572.69)	635.55(520.18 ~ 697.72)
S24	ND	ND	144.81(14.75 ~ 289.62)	395.17(207.68 ~ 696.60)	539.98(222.43 ~ 986.22)
S25	ND	429.43(369.83 ~ 520.99)	5.02(ND ~ 15.06)	604.76(542.67 ~ 682.10)	1 039.21(912.50 ~ 1 218.15)
均值	3.25(2.17 ~ 4.56)	804.07(689.91 ~ 906.61)	185.09(144.04 ~ 230.57)	915.46(688.11 ~ 1 143.81)	1 907.88(1 524.23 ~ 2 285.55)

1) 括号外表示均值, 括号内表示范围, ND 表示未检出, “—”表示无数据, 下同

OPFRs 在水生、陆生和大气环境中出现主要由于人为活动, 尤其受城市化和工业活动的影响, 工业化和人口密集的地区将会使用更多的 OPFRs, 导致更多的 OPFRs 释放到环境中<sup>[21]</sup>. 在家庭、学校、工作场所和公共场所常见的材料是 OPFRs 的潜在来源, 如家具、纺织品、电缆、建筑材料、绝缘材料、油漆、地板抛光和电子产品等<sup>[22]</sup>. 本文中不同功能区中 ∑ OPFRs 含量从高到低顺序为商业区 > 居民区 > 交通区 > 工业区 > 郊区 > 景区(图 2). 这也说明人类活动是 OPFRs 主要来源. 本文中 OPFRs 总含量最高值出现在 S9、S20 和 S21 这 3 个采样点, 而 S1 和 S11 两地均未检测到 OPFRs, 其原因可能在于不同采样点的功能区不同. S9 近年建设大量建筑物, 导致扬尘较多, 而且分布在其附近的几个纺织品加工厂主要使用高温印染工艺, 由于 OPFRs 作为阻燃剂以物理添加形式加进材料中, 高温更有利于其从产品中释放, 因此该点样品中

OPFRs 总量最高. S20 是苏州集中的商业区, 其交通量更大, 人员集中, 有更多 OPFRs 潜在的释放源. 另外商业区相对于偏远地区其建筑物更多, 使用了含 OPFRs 的建筑材料或家居用品等几率更大,

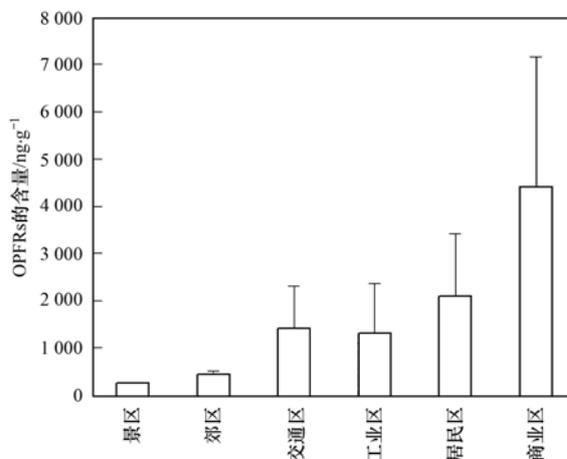


图 2 苏州市不同功能区灰尘样品中 4 种 OPFRs 的含量  
Fig. 2 Concentrations of OPFRs in 25 outdoor dust samples

则散发到外部环境中的 OPFRs 含量越高. S21 附近分布较为集中的居民区, 人口稠密, 更多来自家庭的潜在污染源. 而 S1 和 S11 两地处于苏州市区的西北和东南, 距离市区较远, 人口分布较为稀疏, 建筑物相对较少, 受到人为活动影响较小.

与世界其它地区室内外灰尘中 OPFRs 对比(表 3), 苏州道路灰尘中 OPFRs 的含量低于欧洲、日本等地区室内微环境, 也低于我国电子垃圾拆解地和大城市, 但高于埃及和葡萄牙等地区, 与上海相当. 苏州灰尘中 OPFRs 组成与西班牙纺织品商店相

似, 均是 TCEP 和 TCPP 相对含量较高, 而与广东电子垃圾拆解地中 OPFRs 组成不同, 因为电子拆解地主要以 TCPP 为主, 而且苏州地区 TCPP 的含量稍高于北京、上海和新西兰等大城市, 远低于广东电子拆解地、西班牙纺织品商店和沙特汽车等. 苏州地区 OPFRs 的主要原因可能是城市化和工业化发展, 可能主要来自纺织品和家庭日用品, 而非电子垃圾拆解业; 不同地区 OPFRs 的含量范围不尽相同, 与灰尘类型、采样时间和各地区 OPFRs 的生产、使用过程均有关.

表 3 国内外灰尘中 OPFRs 含量<sup>1)</sup>/ng·g<sup>-1</sup>

Table 3 Concentrations of OPFRs in dust from different regions/ng·g<sup>-1</sup>

国家或地区	采样时间	灰尘类型	TCEP	TCPP	TDCPP	TBEP	文献
新西兰	2006-07, 2007-06	家庭	110	350	230	4 020	[23]
埃及	2012-09 ~ 2013-01	汽车	127	291	61	190	[24]
西班牙	2003	纺织品商店	370	1 400	200	31 000	[25]
沙特阿拉伯	2014	汽车	1 200	1 650	2 700	50	[26]
葡萄牙	2010-02 ~ 2011-11	家庭	17	—	22	—	[27]
日本	2009-08 ~ 2010	家庭	2 700	1 700	2 200	ND	[6]
北京	2012 ~ 2013	托儿所地板	1 997	218	411	631	[28]
清远	2013-09 ~ 2014-03	电子垃圾拆解地	930	4 770	410	240	[29]
上海	2013-09	办公室	972	340	ND	ND	[30]
苏州	2016-11	道路	ND	384, 95	ND	738, 73	本研究

1) 表中数据均表示中位值

## 2.2 OPFRs 的组成

图 3 显示了不同环境功能区的 25 个室外灰尘样品中 4 种 OPFRs 的相对贡献率, 各目标物在各采样点样品中的所占质量分数各不相同, 但组成大体一致, TCPP 和 TBEP 是灰尘中最主要的成分, 而 TCEP 占比较小. OPFRs 含量较高的 S9、S20 和 S21 这 3 个采样点均是 TCPP 占比较高, 而工业区、居民区以及受交通影响地区均是 TBEP 占比较高. 各地区灰尘中 OPFRs 的组成模式不仅受当地的生产、使用阻燃剂的种类和数量不同的影响, 复杂的环境条件如地形和降雨量等也至关重要.

## 2.3 OPFRs 的日暴露量

人体对灰尘中 OPFRs 暴露可通过皮肤接触、口部直接摄入和口鼻呼吸再悬浮颗粒等途径<sup>[31]</sup>. 室外灰尘经呼吸途径暴露主要是被认为由风力作用导致的长期暴露. 但由于缺少大气中 OPFRs 的浓度数据, 引入 EPA 推荐的颗粒物释放因子 PEF, 但灰尘中部分微小颗粒能够通过空气流动迁移到大气, 成为可吸入颗粒物, 本文灰尘过 100 目筛 (150 μm) 可全部进入大气并长期停留. 儿童的许多行为特点 (如吮吸手指和爬行) 将导致他们高暴露, 而且儿童体重小, 身体发育不完全, 对有毒有害物质耐受性

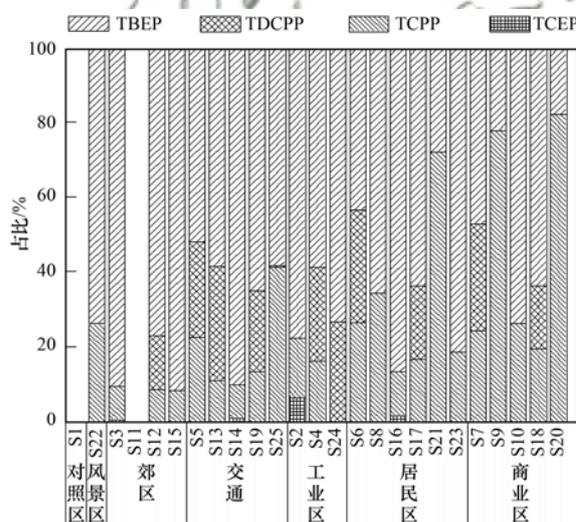


图 3 不同环境功能区灰尘样品中 4 种 OPFRs 的占比

Fig. 3 Percent contributions of four OPFRs in the dust samples from different environmental function areas

低<sup>[32]</sup>, 另外长期在道路上工作的环卫工人可能有更高的暴露风险. 因此有必要针对儿童和环卫工人暴露 OPFRs 进行研究分析. 本研究采用 US EPA 人体暴露量估算公式, 灰尘中污染物通过手口摄食途径的日暴露量 ( $ADD_{ing}$ ) 和通过吸入途径的日暴露量 ( $ADD_{inh}$ ) 的计算公式为:

$$ADD_{ing} = \frac{c \times I_{ng} R \times EDF}{BW}$$

$$ADD_{inh} = \frac{c \times I_{nh} R \times EDF}{BW \times PEF}$$

式中,  $c$  表示室外灰尘样品中每种 OPFRs 和  $\sum$  OPFRs 的平均含量; 中暴露情况下, 成人、儿童和环卫工人对灰尘的摄入量 ( $I_{ng} R$ ) 分别为 20、50 和 200  $mg \cdot d^{-1}$ , 高暴露情况下, 成人、儿童和环卫工人的灰尘摄入量分别为 50、200 和 500  $mg \cdot d^{-1}$ [33]; 由于缺少人体吸收 OPFRs 的效率数据, 假设 100% 吸收, 为吸收上限; 灰尘释放因子 (PEF) 为  $1.36 \times 10^9 m^3 \cdot kg^{-1}$ [34]; 我国成年人的呼吸速率 ( $I_{nh} R$ ) 为  $16.5 m^3 \cdot d^{-1}$ , 儿童呼吸速率为  $5.6 m^3 \cdot d^{-1}$ ; 成年和幼儿 (3~6 岁) 平均体重分别为 63 kg 和 17.5 kg[35]; 根据苏州地区不同人群的活动情景, 儿童接触道路灰尘主要发生在儿童乘坐公共交通或私家车等上下幼儿园过程, 约为  $1 h \cdot d^{-1}$ , 一般成人主要发生在乘公共交通或私家车上下班过程中, 平均约为  $2 h \cdot d^{-1}$ , 而环卫工人工作活动时间和上下班过程可能接触道路灰尘, 平均约为  $10 h \cdot d^{-1}$ , 暴露持续时间 (EDF) 表示普通居民在室外 1 d 花费的时间占总时间的百分比, 所以儿童、成人和环卫工人的 EDF 分别为  $1/24 d$ 、 $1/12 d$  和  $5/12 d$ [36], 根据本文灰尘中 OPFRs 的含量和已报道数据, 计算不同年龄段人群对灰尘中 OPFRs 摄入量见

表 4.

成人和儿童灰尘摄入  $\sum$  OPFRs 的日均暴露量分别为  $50.27 pg \cdot kg^{-1}$  和  $228.95 pg \cdot kg^{-1}$ , 与其他城市区域人群暴露量相当, 低于电子拆解区[29]. 考虑到人们对灰尘防范意识不强, 导致较高灰尘摄入量, 假设在高暴露情景下, 成人和儿童摄入途径的日均暴露量分别为  $125.68 pg \cdot kg^{-1}$  和  $915.78 pg \cdot kg^{-1}$ , 儿童经过摄入途径暴露  $\sum$  OPFRs 的日均暴露量约为成人的 7 倍. 灰尘由于大气流通作用可能部分再悬浮到空气中, 人们通过口鼻呼吸进入人体, 成人和儿童通过呼吸途径暴露  $\sum$  OPFRs 的日均暴露量差异不大, 但环卫工人通过呼吸途径暴露  $\sum$  OPFRs 的日均暴露量为  $1.54E-01 pg \cdot kg^{-1}$ , 是普通成人的 5 倍. 儿童的高暴露量可能与其日摄入率高有关, 他们暴露在室外的时间、方式和地点与成人不同, 且对灰尘的敏感度不高, 容易将自己暴露于灰尘中, 所以灰尘中 OPFRs 对儿童潜在威胁更大.

目前关于人体饮食摄入 OPFRs 的暴露途径报道较少, 仅有 Zhang 等[37] 报道了男性和女性通过饮食摄入 OPFRs 的日均暴露量分别为  $539 ng \cdot kg^{-1}$  和  $601 ng \cdot kg^{-1}$ , 可能 OPFRs 与传统持久性有机物相似, 人体对 OPFRs 的暴露主要通过饮食摄入, 但还需要考虑地域和饮食习惯等不同.

表 4 成人和儿童通过灰尘摄入和吸入 OPFRs 的日均暴露量/ $pg \cdot kg^{-1}$

Table 4 Estimated daily intake of OPFRs via ingestion and inhalation of dust for adults and children/ $pg \cdot kg^{-1}$

OPFRs	灰尘摄入暴露						呼吸暴露		
	成人		儿童		环卫工人		成人	儿童	环卫工人
	中暴露	高暴露	中暴露	高暴露	中暴露	高暴露			
TCEP	0.09	0.21	0.39	1.56	4.30	10.75	5.22E-05	3.21E-05	2.62E-04
TCPP	21.19	52.97	96.49	385.96	1064.44	2661.10	1.29E-02	7.95E-03	6.50E-02
TDCPP	4.88	12.19	22.21	88.84	245.03	612.57	2.98E-03	1.83E-03	1.50E-02
TBEP	24.12	60.30	109.86	439.42	1211.90	3029.74	1.47E-02	9.05E-03	7.40E-02
$\sum$ OPFRs	50.27	125.68	228.95	915.78	2525.66	6314.16	3.07E-02	1.89E-02	1.54E-01

### 3 结论

(1) OPFRs 在苏州典型区域室外灰尘中普遍存在, 其 OPFRs 含量与上海、北京等大城市含量相当. 苏州道路灰尘中 OPFRs 组成以 TBEP 为主, 其次为 TCPP.

(2) 人为活动对当地环境中的 OPFRs 影响较大, 城市化和工业化程度较高地区的 OPFRs 含量较高, 而位于郊区、人类活动较少地区则相反. 不同功能区灰尘中 OPFRs 组成模式不同, TBEP 可能来

自室内消费品和家用品.

(3) 灰尘是当地人群尤其是儿童暴露 OPFRs 的重要途径之一, 在高暴露情景下, 儿童通过灰尘摄入途径的 OPFRs 日均暴露量约为成人的 7 倍, 儿童通过口鼻呼吸再悬浮颗粒物暴露 OPFRs 的日均暴露量与普通成人相差不大, 但儿童身体耐受性低, 因此儿童通过灰尘摄入 OPFRs 的风险更大. 环卫工人等室外工作群体在没有防护措施的情形下通过灰尘摄入和口鼻呼吸均会导致较高 OPFRs 暴露量, 存在较大健康风险.

## 参考文献:

- [ 1 ] 王晓伟, 刘景富, 阴永光. 有机磷酸酯阻燃剂污染现状与研究进展[J]. 化学进展, 2010, **22**(10): 1983-1992.  
Wang X W, Liu J F, Yin Y G. The pollution status and research progress on organophosphate ester flame retardants[J]. Progress in Chemistry, 2010, **22**(10): 1983-1992.
- [ 2 ] 中国聚合物网. 聚氨酯等使全球有机磷阻燃剂增速达 20% [EB/OL]. (2010-10-19). [http://www.polymer.cn/polymernews/2010-10-19/\\_20101019161904168.htm](http://www.polymer.cn/polymernews/2010-10-19/_20101019161904168.htm).
- [ 3 ] 欧育湘. 我国有机磷阻燃剂产业的分析与展望[J]. 化工进展, 2011, **30**(1): 210-215.  
Ou Y X. Developments of organic phosphorus flame retardant industry in China [J]. Chemical Industry and Engineering Progress, 2011, **30**(1): 210-215.
- [ 4 ] Wei G L, Li D Q, Zhuo M N, *et al.* Organophosphorus flame retardants and plasticizers: sources, occurrence, toxicity and human exposure[J]. Environmental Pollution, 2015, **196**: 29-46.
- [ 5 ] Liu R R, Lin Y F, Liu R Z, *et al.* Evaluation of two passive samplers for the analysis of organophosphate esters in the ambient air[J]. Talanta, 2016, **147**: 69-75.
- [ 6 ] Mizouchi S, Ichiba M, Takigami H, *et al.* Exposure assessment of organophosphorus and organobromine flame retardants via indoor dust from elementary schools and domestic houses[J]. Chemosphere, 2015, **123**: 17-25.
- [ 7 ] Marklund A, Andersson B, Haglund P. Organophosphorus flame retardants and plasticizers in Swedish sewage treatment plants [J]. Environmental Science & Technology, 2005, **39**(19): 7423-7429.
- [ 8 ] Hu M Y, Li J, Zhang B B, *et al.* Regional distribution of halogenated organophosphate flame retardants in seawater samples from three coastal cities in China[J]. Marine Pollution Bulletin, 2014, **86**(1-2): 569-574.
- [ 9 ] Wan W N, Zhang S Z, Huang H L, *et al.* Occurrence and distribution of organophosphorus esters in soils and wheat plants in a plastic waste treatment area in China [J]. Environmental Pollution, 2016, **214**: 349-353.
- [ 10 ] Jonsson O B, Dyremark E, Nilsson U L. Development of a microporous membrane liquid-liquid extractor for organophosphate esters in human blood plasma: identification of triphenyl phosphate and octyl diphenyl phosphate in donor plasma[J]. Journal of Chromatography B: Biomedical Sciences and Applications, 2001, **755**(1-2): 157-164.
- [ 11 ] Liu L Y, Salamova A, He K, *et al.* Analysis of polybrominated diphenyl ethers and emerging halogenated and organophosphate flame retardants in human hair and nails [J]. Journal of Chromatography A, 2015, **1406**: 251-257.
- [ 12 ] 王伟, 耿存珍. 室内环境中的有机磷酸酯及环境毒理研究[J]. 环境科学与管理, 2015, **40**(10): 85-88.  
Wang W, Geng C Z. Organophosphate esters in indoor environment and its environmental toxicology[J]. Environmental Science and Management, 2015, **40**(10): 85-88.
- [ 13 ] Chen G L, Jin Y X, Wu Y, *et al.* Exposure of male mice to two kinds of organophosphate flame retardants (OPFRs) induced oxidative stress and endocrine disruption [J]. Environmental Toxicology and Pharmacology, 2015, **40**(1): 310-318.
- [ 14 ] Tang R L, Ma K M, Zhang Y X, *et al.* The spatial characteristics and pollution levels of metals in urban street dust of Beijing, China [J]. Applied Geochemistry, 2013, **35**: 88-98.
- [ 15 ] Yu L D, Wang G F, Zhang R J, *et al.* Characterization and source apportionment of PM<sub>2.5</sub> in an urban environment in Beijing [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2013, **13**(2): 574-583.
- [ 16 ] Xu F, Liu Y C, Wang J X, *et al.* Characterization of heavy metals and brominated flame retardants in the indoor and outdoor dust of e-waste workshops: implication for on-site human exposure [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2015, **22**(7): 5469-5480.
- [ 17 ] Cao Z G, Xu F C, Covaci A, *et al.* Distribution patterns of brominated, chlorinated, and phosphorus flame retardants with particle size in indoor and outdoor dust and implications for human exposure [J]. Environmental Science & Technology, 2014, **48**(15): 8839-8846.
- [ 18 ] van den Eede N, Dirtu A C, Ali N, *et al.* Multi-residue method for the determination of brominated and organophosphate flame retardants in indoor dust [J]. Talanta, 2012, **89**: 292-300.
- [ 19 ] Zhou L L, Hiltcher M, Gruber D, *et al.* Organophosphate flame retardants (OPFRs) in indoor and outdoor air in the Rhine/Main area, Germany: comparison of concentrations and distribution profiles in different microenvironments [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2017, **24**(12): 10992-11005.
- [ 20 ] van den Veen I, De Boer J. Phosphorus flame retardants: properties, production, environmental occurrence, toxicity and analysis[J]. Chemosphere, 2012, **88**(10): 1119-1153.
- [ 21 ] Regnery J, Püttmann W. Occurrence and fate of organophosphorus flame retardants and plasticizers in urban and remote surface waters in Germany [J]. Water Research, 2010, **44**(14): 4097-4104.
- [ 22 ] Cristale J, Hurtado A, Gómez-Canela C, *et al.* Occurrence and sources of brominated and organophosphorus flame retardants in dust from different indoor environments in Barcelona, Spain [J]. Environmental Research, 2016, **149**: 66-76.
- [ 23 ] Ali N, Dirtu A C, Eede N V D, *et al.* Occurrence of alternative flame retardants in indoor dust from New Zealand: indoor sources and human exposure assessment [J]. Chemosphere, 2012, **88**(11): 1276-1282.
- [ 24 ] Abdallah M A E, Covaci A. Organophosphate flame retardants in indoor dust from Egypt: implications for human exposure [J]. Environmental Science & Technology, 2014, **48**(9): 4782-4789.
- [ 25 ] Marklund A, Andersson B, Haglund P. Screening of organophosphorus compounds and their distribution in various indoor environments [J]. Chemosphere, 2003, **53**(9): 1137-1146.
- [ 26 ] Ali N, Eqani S A M A S, Ismail I M I, *et al.* Brominated and organophosphate flame retardants in indoor dust of Jeddah, Kingdom of Saudi Arabia; implications for human exposure [J]. Science of the Total Environment, 2016, **569-570**: 269-277.
- [ 27 ] Coelho S D, Sousa A C, Isobe T, *et al.* Brominated, chlorinated and phosphate organic contaminants in house dust from Portugal [J]. Science of the Total Environment, 2016, **569-570**: 442-449.
- [ 28 ] Wu M, Yu G, Cao Z G, *et al.* Characterization and human

- exposure assessment of organophosphate flame retardants in indoor dust from several microenvironments of Beijing, China [J]. *Chemosphere*, 2016, **150**: 465-471.
- [29] He C T, Zheng J, Qiao L, *et al.* Occurrence of organophosphorus flame retardants in indoor dust in multiple microenvironments of southern China and implications for human exposure[J]. *Chemosphere*, 2015, **133**: 47-52.
- [30] 鹿建霞, 季雯, 马盛韬, 等. 气相色谱/质谱法检测灰尘、土壤和沉积物中有机磷酸酯[J]. *分析化学*, 2014, **42**(6): 859-865.
- Lu J X, Ji W, Ma S T, *et al.* Analysis of organophosphate esters in dust, soil and sediment samples using gas chromatography coupled with mass spectrometry [J]. *Chinese Journal of Analytical Chemistry*, 2014, **42**(6): 859-865.
- [31] 丁锦建. 典型有机磷阻燃剂人体暴露途径与蓄积特征研究 [D]. 杭州: 浙江大学, 2016.
- Ding J J. Study on human exposure pathways and accumulation characteristics of typical organophosphate flame retardants [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2016.
- [32] 王璟, 陈社军, 田密, 等. 电子废弃物处理地室内外灰尘中多溴联苯醚的污染及其人群暴露水平[J]. *环境科学*, 2010, **31**(1): 173-178.
- Wang J, Chen S J, Tian M, *et al.* Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in indoor and outdoor dust from an electronic waste (e-waste) recycling area in south China: contamination and human exposure [J]. *Environmental Science*, 2010, **31**(1): 173-178.
- [33] Van den Eede N, Dirtu A C, Neels H, *et al.* Analytical developments and preliminary assessment of human exposure to organophosphate flame retardants from indoor dust [J]. *Environment International*, 2011, **37**(2): 454-461.
- [34] US EPA. Supplemental guidance for developing soil screening levels for superfund sites [R]. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, 2002.
- [35] 王宗爽, 段小丽, 刘平, 等. 环境健康风险评估中我国居民暴露参数探讨[J]. *环境科学研究*, 2009, **22**(10): 1164-1170.
- Wang Z S, Duan X L, Liu P, *et al.* Human exposure factors of Chinese people in environmental health risk assessment [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2009, **22**(10): 1164-1170.
- [36] Cao Z G, Zhao L C, Kuang J M, *et al.* Vehicles as outdoor BFR sources: evidence from an investigation of BFR occurrence in road dust[J]. *Chemosphere*, 2017, **179**: 29-36.
- [37] Zhang X L, Zou W, Mu L, *et al.* Rice ingestion is a major pathway for human exposure to organophosphate flame retardants (OPFRs) in China[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2016, **318**: 686-693.



## CONTENTS

Correlation Analysis of the Urban Heat Island Effect and Its Impact Factors in China .....	CAO Chang, LI Xu-hui, ZHANG Mi, <i>et al.</i> (3987)
Application of Satellite Remote Sensing in NO <sub>x</sub> Emission Control .....	WU Wei-ling, XUE Wen-bo, WANG Yan-li, <i>et al.</i> (3998)
Control Models and Effect Evaluation of Air Pollution in Jing-Jin-Ji Urban Agglomeration .....	WANG Zhen-bo, LIANG Long-wu, LIN Xiong-bin, <i>et al.</i> (4005)
Pollution Characteristics of Aerosol Number Concentration in Winter and Spring in a Northern Suburb of Nanjing .....	WU Dan, ZHANG Fan, LIU Gang, <i>et al.</i> (4015)
Source Apportionment and Size Distribution of Aerosols at Lin'an Atmosphere Regional Background Station During Winter .....	SHI Shuang-shuang, WANG Hong-lei, ZHU Bin, <i>et al.</i> (4024)
Seasonal Variations in Particle Size Distribution and Water-soluble Ion Composition of Atmospheric Particles in Chengdu .....	TAO Yue-le, LI Qin-kai, ZHANG Jun, <i>et al.</i> (4034)
Seasonal Variation and Source Apportionment of Water-Soluble Ions in PM <sub>2.5</sub> in Quanzhou City .....	ZHANG Yun-feng, YU Rui-lian, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (4044)
Chemical Characteristics and Sources of Heavy Metals in Fine Particles in Beijing in 2011-2012 .....	ZHOU Xue-ming, ZHENG Nai-jia, LI Ying-hong, <i>et al.</i> (4054)
Pollution Assessment and Source Analysis of Metals in PM <sub>2.5</sub> in Haicang District, Xiamen City, China .....	ZHAO Li-si, YU Rui-lian, XU Ling-ling, <i>et al.</i> (4061)
Characteristics and Health Risk Assessment of Metallic Elements in PM <sub>2.5</sub> Fraction of Road Dust .....	ZHANG Jing, ZHANG Yan-jie, FANG Xiao-zhen, <i>et al.</i> (4071)
Seasonal Variations in PM <sub>10</sub> and Associated Chemical Species in Jiuxian Mountain in Fujian Province .....	WEI Ya, LIN Chang-cheng, HU Qiong-hua, <i>et al.</i> (4077)
Characteristics of C2-C6 Hydrocarbons During the Winter Air Pollution Period in Beijing Urban Area .....	LI Yue, WEI Wei, YANG Gan, <i>et al.</i> (4084)
Analysis of Atmospheric Particulate Matter Pollution Characteristics by LIDAR in Beijing During Spring Festival, 2016 .....	SHI Lin-lin, LI Ling-jun, LI Qian, <i>et al.</i> (4092)
Influence Factors and Sensitivity of Ozone Formation in Langfang in the Summer .....	LI Lei, ZHAO Yu-mei, WANG Xu-guang, <i>et al.</i> (4100)
Impact of Human Activities on Water-Rock Interactions in Surface Water of Lijiang River .....	ZHAO Hai-juan, XIAO Qiong, WU Xia, <i>et al.</i> (4108)
Distinguishing the Properties and Sources of the Dissolved Organic Matter in Karst Reservoir Water During Winter Using Three-Dimensional Fluorescence Spectrum Technology: A Case Study in Wulixia Reservoir of Guangxi Province .....	LU Xiao-xuan, PENG Wen-jie, LI Qiang, <i>et al.</i> (4120)
Analysis of Temporal and Spatial Variations in Trace Element Migration in Karst Critical Zone: An Example of Jiguan Cave, Henan .....	LIANG Sha, YANG Yan, ZHANG Na, <i>et al.</i> (4130)
Eutrophication and Characteristics of Cyanobacteria Bloom in the Summer in Guishi Reservoir .....	GOU Ting, MA Qian-li, WANG Zhen-xing, <i>et al.</i> (4141)
Spatial and Temporal Distribution of Chlorophyll a and Its Relationship to Algae and Environmental Factors in Aha Reservoir .....	LUO Yi-fu, LI Lei, LI Qiu-hua, <i>et al.</i> (4151)
Spatio-temporal Variations in Phytoplankton Community in Shahe Reservoir, Tianmuhu, China .....	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, YANG Wen-bin, <i>et al.</i> (4160)
Spatio-temporal Variations, Contamination and Potential Ecological Risk of Heavy Metals in the Sediments of Chenghai Lake .....	YU Zhen-zhen, LIU En-feng, ZHANG En-lou, <i>et al.</i> (4169)
Characteristics of Phosphorus Output Through Runoff on a Red Soil Slope Under Natural Rainfall Conditions .....	ZUO Ji-chao, ZHENG Hai-jin, XI Tong-hang, <i>et al.</i> (4178)
Occurrence, Distribution and Health Risk of the Phthalate Esters in Riparian Soil in the Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir .....	YANG Ting, HE Ming-jing, YANG Zhi-hao, <i>et al.</i> (4187)
Seasonal Distribution, Composition, and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Organochlorine Pesticides in the Main Stream of the Luanhe River .....	WANG Yi-zhen, ZHANG Shi-lu, KONG Fan-qing, <i>et al.</i> (4194)
Occurrence and Human Exposure Risk Assessment of Organophosphate Esters in Drinking Water in the Weifang Binhai Economic-Technological Development Area .....	DONG Zheng, MA Yu-long, LI Jun-qi, <i>et al.</i> (4212)
Contamination Characteristics and Human Exposure to Organophosphate Flame Retardants in Road Dust from Suzhou City .....	LI Jing, WANG Jun-xia, XU Wan-ting, <i>et al.</i> (4220)
Cancer Risk of Human Intake of PAH-Contaminated Particles Based on Hand-to-Mouth Activities .....	TONG Rui-peng, YANG Xiao-yi, ZHANG Lei, <i>et al.</i> (4228)
Spatio-temporal Evolution of Groundwater Vulnerability Based on Spatial Autocorrelation .....	LIU Yu, LAN Shuang-shuang, ZHANG Yong-xiang, <i>et al.</i> (4236)
Preparation of Ag-AgI/CN/MA Composites and Their Visible-light Photocatalytic Performance .....	ZHANG Sai, ZHANG Li-li, HU Chun (4245)
Effect of <i>Eichhornia crassipes</i> on Ammonification and Denitrification Microorganisms in Eutrophic Freshwaters .....	LI Jie, JIANG Li-juan, WANG Xiao-lin, <i>et al.</i> (4253)
Utilization of Copper ( II ) Wastewater for Enhancing the Treatment of Chromium ( VI ) Wastewater in Microbial Fuel Cells .....	XIONG Xiao-min, WU Xia-yuan, JIA Hong-hua, <i>et al.</i> (4262)
Efficiency and Microecology of a Soil Infiltration System with High Hydraulic Loading for the Treatment of Swine Wastewater .....	SU Cheng-yuan, LIU Fan-fan, ZHONG Yu, <i>et al.</i> (4271)
Effects of Bacteria on the Growth of and Lipid Accumulation in <i>Chlorella pyrenoidosa</i> Cultivated in Municipal Wastewater .....	TU Ren-jie, JIN Wen-biao, HAN Song-fang, <i>et al.</i> (4279)
Enhanced Antibiotic Resistant Bacteria Removal from Wastewater Treatment Plant by Different Disinfection Technologies .....	LIU Ya-lan, MA Cen-xin, DING He-zhou, <i>et al.</i> (4286)
Coking Wastewater Treatment Efficiency and Comparison of Acute Toxicity Characteristics of the AnMBR-A-MBR and A <sup>2</sup> -MBR Processes .....	ZHU Jia-di, LI Fei-fei, CHEN Li-jun (4293)
Stability of the CANON Process Based on Real-Time Control Technologies .....	SUN Yan-fang, HAN Xiao-yu, ZHANG Shun-jun, <i>et al.</i> (4302)
Improving Nitrogen and Phosphorus Removal from Reclaimed Water Using a Novel Sulfur/Iron Composite Filler .....	ZHOU Yan-qing, HAO Rui-xia, LIU Si-yuan, <i>et al.</i> (4309)
Start-up and Capacity Enhancement of a Partial Nitrification Pilot Reactor in Continuous Flow .....	ZHU Qiang, LIU Kai, DONG Shi-yu, <i>et al.</i> (4316)
Quick Start-up Performance of Combined ANAMMOX Reactor Based on Different Inoculated Sludge Types .....	LÜ Gang, LI Tian, XU Le-zhong, <i>et al.</i> (4324)
Effect of Two-Stage Aeration on Nitrogen Removal Performance of Aerobic Granular Sludge .....	WANG Wen-xiao, BIAN Wei, WANG Meng, <i>et al.</i> (4332)
Construction of a High Efficiency Anaerobic Digestion System for Vinegar Residue .....	ZHOU Yun-long, XU Zhi-yang, ZHAO Ming-xing, <i>et al.</i> (4340)
Comparison of Ecological Risk Assessment Based on the Total Amount and Speciation Distribution of Heavy Metals in Soil: A Case Study for Longyan City, Fujian Province .....	WANG Rui, CHEN Ming, CHEN Nan, <i>et al.</i> (4348)
Heavy Metal Contamination of Soils and Crops near a Zinc Smelter .....	CHEN Feng, DONG Ze-qin, WANG Cheng-cheng, <i>et al.</i> (4360)
Characteristics and Influencing Factors of CH <sub>4</sub> Emissions from the Drawdown Area of the Three Gorges Reservoir .....	CHAI Xue-si, HAO Qing-ju, HUANG Zhe, <i>et al.</i> (4370)
Effects of Plastic Film Mulching on Nitrous Oxide Emissions from a Vegetable Field .....	FENG Di, HAO Qing-ju, ZHANG Kai-li, <i>et al.</i> (4380)
Effects of Bamboo Biochar on Greenhouse Gas Emissions During the Municipal Sludge Composting Process .....	XIANG Qiu-jie, YANG Yu-han, ZHANG Cheng, <i>et al.</i> (4390)
Removal of Cd from Soil by <i>Aspergillus fumigatus</i> in a Semi-solid Culture .....	CHEN Yao-ning, WANG Yuan-nan, LI Yuan-ping, <i>et al.</i> (4398)
Removal of Chlortetracycline and Morphological Changes in Heavy Metals in Swine Manure Using the Composting Process .....	WEN Qin-xue, CAO Yong-sen, CHEN Zhi-qiang (4405)
Remediation of Petroleum-Contaminated Soil Using a Bioaugmented Compost Technique .....	WU Man-li, CHEN Kai-li, YE Xi-qiong, <i>et al.</i> (4412)
Effects of Microbial Diversity on Soil Carbon Mineralization .....	AN Li-yun, LI Jun-jian, YAN Jun-xia, <i>et al.</i> (4420)
Ozone Deposition and Risk Assessment for a Winter Wheat Field; Partitioning Between Stomatal and Non-stomatal Pathways .....	XU Jing-xin, ZHENG You-fei, ZHAO Hui, <i>et al.</i> (4427)
Progress in the Studies of Precipitation Chemistry in Acid Rain Areas of Southwest China .....	ZHOU Xiao-de, XU Zhi-fang, LIU Wen-jing, <i>et al.</i> (4438)