

# 中国东海水体中多氯联苯的浓度及其组成特征

李敏桥<sup>1,2</sup>, 林田<sup>1</sup>, 李圆圆<sup>3</sup>, 郭志刚<sup>3</sup>

(1. 中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵州 贵阳 550081; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 复旦大学 环境科学与工程系, 上海 200433)

**摘要:** 东海由于受到长江和闽浙沿岸工业污水输入以及电子垃圾处理场排放的影响, 被认为是多氯联苯重污染区域。本研究利用“科学三号”科学考察船, 于 2012 年 10 月执行的东海航次期间, 从中国东海不同区域采集到 11 个表层水样, 测定其中溶解态多氯联苯的浓度。中国东海水体中多氯联苯浓度为 (0.59 ~ 1.68) ng/L, 相比国内外海域, 属于中低水平。研究结果表明, 海水多氯联苯浓度和盐度之间存在显著负相关性, 说明沿岸河流冲淡水搬运的多氯联苯是东海水体中多氯联苯的重要来源; 此外其组成以三氯、四氯和五氯为主, 这与我国历史上多氯联苯的使用情况吻合。通过水体中不同氯代化合物浓度和对应  $K_{ow}$  理论浓度值的比较发现, 两者之间整体吻合较好, 表明化合物的物理化学属性是控制其在水体中浓度的重要因素。然而, 东海近岸水体中六氯联苯污染程度略高于理论浓度值, 这一潜在的污染来源可能和东海沿岸省市电子垃圾处理场有关。

**关键词:** 多氯联苯; 水体; 东海

中图分类号: P734 文献标识码: A 文章编号: 1007-6336(2019)04-0589-05

DOI:10.13634/j.cnki.mes.2019.04.016

## Concentration and composition of polychlorinated biphenyls in the water of the East China Sea

LI Min-qiao<sup>1,2</sup>, LIN Tian<sup>1</sup>, LI Yuan-yuan<sup>3</sup>, GUO Zhi-gang<sup>3</sup>

(1. The State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550081, China; 2. Chinese Academy of Sciences University, Beijing 100049, China; 3. Department of Environmental Science and Engineering, Fudan University, Shanghai 200433, China)

**Abstract:** The East China Sea (ECS) is considered a heavily polluted area of polychlorinated biphenyls (PCBs) due to the input of industrial wastewater from the Yangtze River, Fujian and Zhejiang coastal runoff and emissions from adjacent e-waste disposal sites. In this study, eleven surface water samples were collected from the ECS to determine the occurrence of PCBs in the seawater by the "Science III" scientific research ship during October 2012. The PCB concentrations of the water from ECS ranged from 0.59 to 1.68 ng/L, and the values were at a middle-low level compared with other studying areas. There was a significant negative correlation between concentration of PCBs and salinity, indicating that the coastal runoff was an important way for PCBs transport in the ECS. The profile of PCB homologues was dominated by less chlorinated compounds, i. e. tri-PCBs, tetra-PCBs and penta-PCBs, which related to the historical production and usage of PCBs in China. The concentrations of different PCB congeners were consistent with the theoretical ones which obtained from the  $K_{ow}$  values, indicating the physicochemical properties was an important factor affecting the occurrence of PCBs in the water. Besides, a relatively higher abundance of hexa-PCBs was observed in the sea-

收稿日期: 2017-11-22, 修订日期: 2018-02-26

基金项目: 国家自然科学基金(41573134)

作者简介: 李敏桥(1990-), 女, 贵州遵义人, 硕士研究生, 主要从事环境地球化学, E-mail: 1427726835@qq.com

通讯作者: 林田, E-mail: lintian@vip.gyg.ac.cn

water from the ECS hinting that the e-wastes treatment emissions from coastal areas might be a potential source.

**Key words:** PCBs; seawater; the East China Sea

多氯联苯 ( polychlorinated biphenyl ,PCBs) 具有高毒、难降解、强溶脂和生物累积等特性,被联合国列为第一批持久性有机污染物。尽管我国从20世纪70年代至80年代已经禁止使用,但资料表明,迄今为止,PCBs在环境介质中还是大量存在,特别是在特定区域内浓度水平仍非常高。其主要来源包括:(1)20世纪70年代生产的含PCBs的变压器、电容器封存和地下掩埋后的渗漏和挥发;(2)作为含氯溶剂、油漆、墨水、塑料、泡沫和防水化合物绝缘绝热固体材料胶等工业产品生产时的副产品;(3)含PCBs的工业废物、电子垃圾和城市垃圾焚烧。

PCBs主要通过大气沉降和随工业、城市废水排放等方式进入水体。由于PCBs是一种疏水性化合物,从而决定了其在水中的主要存在方式,除部分溶解外,大部分的PCBs都是附着在悬浮颗粒物上,沉降到底泥中。因此,水体中的PCBs是多途径污染源,是目前环境中PCBs污染状况的综合结果。已有的研究显示我国水体已经普遍受到PCBs污染,其中河口、海湾和港口污染较严重,其浓度甚至高于国外,间接反映了目前我国环境PCBs污染状况不容乐观<sup>[1]</sup>。

东海近海海域水体中持久性有机污染物 ( persistent organic pollutants ,POPs) 主要来自入海河流 ( 主要是长江) 和分布于沿岸大大小小的排污口。随着传统 POPs ( PCBs、有机氯农药) 在全国范围内禁用,这些有机污染物逐渐从一次排放来源转为从环境介质 ( 尤其是土壤) 中的二次搬运来源。人口聚集的大河、沿江地带一直以来都是 POPs 使用的主要区域,土壤中残留了大量历史使用的 POPs,因此,流域内降水和径流冲刷作用使得地表残留 POPs 仍不间断汇入受纳水体,成为目前近海水体中 POPs 的主要来源<sup>[2]</sup>。本文立足于我国长江口和近海 PCBs 调查,揭示 PCBs 在水体中浓度水平和组成特征,研究结果有助于了解 ( 在长期禁用的背景下) 我国东海 PCBs 的污染状况。

## 1 材料与方法

### 1.1 采样

海水样品采集于“科学三号”科学考察船,于

2012年10月执行的东海调查航次期间采样 ( 见图1)。停船作业时,在前甲板用钢桶采集表层水 ( 50 L)。在船上的湿处理实验室对采集水体立即处理。

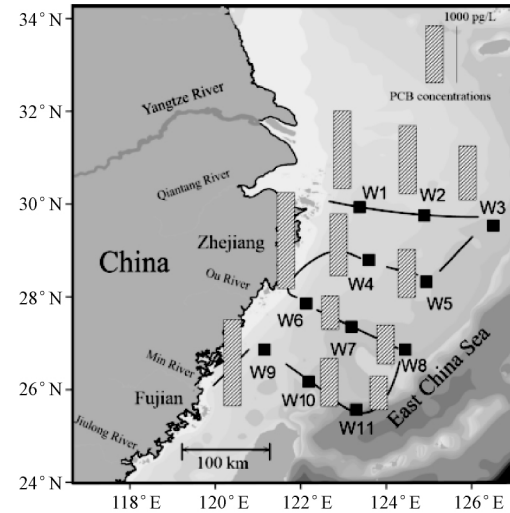


图1 东海水体采样点位置和 PCBs 浓度

Fig. 1 Locations of the sampling sites for water and concentrations of dissolved PCBs in the East China Sea

### 1.2 样品处理

水样首先通过 0.45 μm 玻璃纤维滤膜过滤 ( Pall ,USA) ,去除悬浮颗粒物以及胶体物质。过滤后的水样采用固相萃取法 ( XAD 树脂) 进行浓缩富集,具体实施方法可参阅文献<sup>[3]</sup>。固相萃取柱 ( 15 cm × 1.5 cm) 填料为 XAD-2 以及 XAD-4 混合物 ( 质量比为 1:1, 约 12 g) 。固相萃取柱先用 20 mL 正己烷 ( 液相色谱纯) 淋洗。过滤后的水样以 0.5 L/min 的流速过柱。萃取完毕后,放置车载冰箱保存,船靠岸后带回实验室。在实验室,将萃取柱置于冷冻干燥机中进行冷冻干燥,去除萃取柱中残留的水分。干燥后的萃取柱用 100 mL 二氯甲烷 ( 液相色谱纯) 洗脱。洗脱液用旋转蒸发仪 ( BUCHI) 旋蒸至 5 mL,分3次加入 15 mL 正己烷进行溶剂转换,浓缩至 5 mL,转移至 15 mL 样品瓶,在柔和的氮气下浓缩至 0.5 mL,再转移至 1.5 mL 细胞瓶中,待测。

### 1.3 测定分析

PCBs 采用安捷伦 ( Agilent) 气相色谱-质谱联用仪 ( GC-MS) 进行分析,仪器型号为 GC6890 串联 5975C 质谱检测器 ( MSD) 。色谱柱为 DB5-MS

(美国)毛细管柱,柱长:30 m,内径:0.25 mm,膜厚:0.25  $\mu\text{m}$ ;载气为99.999%的氦气;流速为1.0 mL/min;进样口温度为280 $^{\circ}\text{C}$ ;升温程序为90 $^{\circ}\text{C}$ 保持15 min,以6 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升温到180 $^{\circ}\text{C}$ ,以1 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升到240 $^{\circ}\text{C}$ ,再以6 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 升到290 $^{\circ}\text{C}$ ,保持10 min;后运行时间5 min。离子源为电子轰击源(EI);离子源温度230 $^{\circ}\text{C}$ ,四级杆温度150 $^{\circ}\text{C}$ ,接口温度280 $^{\circ}\text{C}$ ;电离电压70 eV;定性分析通过全扫描方式;定量分析选择离子检测。测定的目标化合物有:PCBs 18,31/28,52,49,44,74,70,95,101,87,110,118,132/153,138/158,187,128,177,156,180,201,205。本研究中测定的PCBs浓度指水体中溶解态PCBs浓度,在后面结果和讨论以及结论部分都统一用PCBs浓度表述。

实验过程中监测目标化合物的回收率来对整个实验进行质量控制和质量保证(QA/QC),同时增加1个方法空白,1个加标空白,PCB209回收率为85%~97%。所有监测结果均满足PCBs分析要求。

表1 国内外水域水体中PCBs浓度水平

Tab.1 Concentrations of PCBs in waters of China and other countries

水域	采样时间	浓度/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	化合物数量	参考文献	
国内	桑沟湾	2009	19.64~43.79	7	[3]
	长江三角洲	2009	1.23~16.6	38	[4]
	莱州湾	2004	4.5~27.7	7	[5]
	九龙江口	1999	0.36~1505	12	[6]
	大连 老虎滩	2009	33.55	6	[7]
	连云港 东连岛	2009	65.43	6	[7]
	福州 平潭	2009	416.80	6	[7]
	莆田 湄洲岛	2009	98.84	6	[7]
	东海	2012	0.59~1.68	11	本研究
国外	Hudson River Estuary,USA	1999~2001	0.86~6.0	90	[8]
	Mississippi River,USA	2004	22.2~163	28	[9]
	Houston ShipChannel,USA	2002~2003	0.49~12.5	209	[10]
	North Western Mediterranean	2001	2.42~70.5	41	[11]
开放大洋	The equatorial Indian Ocean	2006~2007	2.7~25( $\text{pg}/\text{L}$ )	21	[12]
	The Open Pacific	2011	0.2~15( $\text{pg}/\text{L}$ )	15	[13]

## 2.2 东海水体中PCBs浓度空间分布和组成特征

本研究,东海水体中PCBs浓度最高值出现W6点,最低值出现在w11点。整体上看,PCBs浓度空间分布具有以下两个特征:1)距离岸边越

## 2 结果与讨论

### 2.1 东海水体中PCBs浓度以及国内外已有研究比较

本研究,中国东海水体中PCBs浓度为(0.59~1.68)  $\text{ng}/\text{L}$ ,显著低于表1罗列的我国沿海城市周边水域中PCBs浓度调查结果,这表明研究区域水体中PCBs可能来自沿海径流输入和排放污水。欧美地区水体中PCBs浓度仍处在较高的水平,尽管早在上世纪70年代PCBs就被全球禁用,由于欧美地区历史上曾大量生产和使用过含PCBs的产品,目前其环境水体中高浓度水平残留说明PCBs造成的污染会长期存在。总体而言,相比较内陆湖泊和河口,研究区域水体中PCBs浓度较低,主要因为开放海域中洋流对污染物有稀释的作用,同时洋流的快速流动也会导致污染物加快扩散;然后,与全球背景区域的开放大洋相比,东海水体中PCBs浓度仍高出1~2个数量级,表明东海近海水体中仍存在PCBs潜在污染源。

近污染物浓度越高,离岸50 km以内PCBs浓度下降较快,随着离岸距离进一步增加,稳定在(580~680)  $\text{pg}/\text{L}$ 的浓度水平;2)北部区域水体浓度水平显著高于南部区域,尤其远离岸边的区域。从东海水体、沉积物的研究结果显示,区域环境中

POPs 主要来自入海河流(主要是长江,以及钱塘江、甌江和闽江)和分布于沿岸大大小小的排污口<sup>[14-15]</sup>。因此,沿岸区域往往是高浓度区,向外海逐步扩散造成浓度下降。长江冲淡水带来的 PCBs 是东海水体中 PCBs 的重要来源。长江冲淡水源于长江入海径流,枯水季节,在强大的冬季北风作用下,长江径流入海不久,便是一条狭窄带内向南输送;在洪水季节的夏季,认为长江冲淡水出口门后首先向东南方向运动,随后转向东北济州岛方向。采样期间属于长江洪水季节,长江冲淡水主要向东南方向运动,采样点 W1 和 W2 主要受到长江冲淡水的控制,表现为海水盐度较低(图 2),因此,尽管远离河口,其水体中 PCBs 浓度下降的趋势并不显著。同时,采样点 W11 和 W8 主要受台湾暖流影响,台湾暖流以高温、高盐、水体洁净为特征,夏季强冬季弱,因此,该区域水体浓度显著低于近岸采样点 W6 和 W9 以及长江冲淡水控制的北部区域(图 2)。

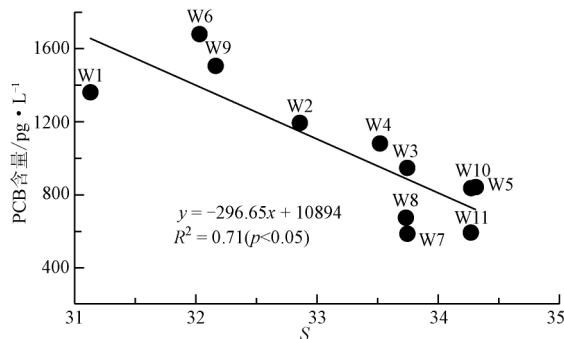


图 2 东海水体中 PCBs 浓度和盐度的关系

Fig. 2 Relationship between PCBs concentration and salinity of the seawater from East China Sea

东海水体中 PCBs 组成主要以三氯联苯为主,随着氯原子取代个数的递增,多氯联苯的比重递减(从四氯联苯到六氯联苯),水体中七氯联苯浓度均值只有 6 pg/L,占总浓度比重 < 2% (图 3)。低氯取代 PCBs 较高氯取代 PCBs 有较高的挥发性和水溶性,因此前者更容易受到河流冲刷和搬运过程进入远离源区的河口和近海,并在水体中持续存在。

### 2.3 东海近海水体中 PCBs 来源探讨

PCBs 是疏水性有机污染物,在天然水体中的溶解度很低,一般不超过 2 ng/L。PCBs 在水体中的半衰期为 2~6 a,很难从自然水体中降解去除,因此自然水体一旦受到 PCBs 污染,就会产生长远影响。已有研究结果显示,目前我国环境中的

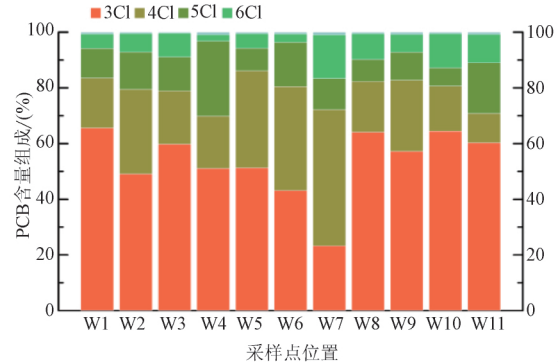


图 3 东海水体中 PCBs 组成分布

Fig. 3 Composition of PCB homologues in the seawater from East China Sea

PCBs 主要来自于变压器油等 PCBs 制品以及焚烧炉和有氯化氧化的工艺过程(如造纸漂白或脱油墨工艺)<sup>[16]</sup>。造纸漂白过程和焚烧炉排放所产生的 PCBs 以低氯取代物为主,而变压器油污染物中的高氯取代物较多,不容易发生长距离迁移,就近残留在周边的土壤和湖泊沉积环境中,因而近源区和远离源区水体中 PCBs 的组成特征会有所差异。

已有的研究表明,当水体中 PCBs 浓度降低时,沉积物中的 PCBs 将重新释放到水体中,继而使得水体中 PCBs 浓度在相当长的时期内保持一种平衡状态。本研究中,利用水体中 PCBs 浓度和理论正辛醇/水分配系数( $\log K_{ow}$ )比较来评估其是否达到(颗粒相)水相分配平衡(图 4,  $K_{ow}$  数据参考文献<sup>[17]</sup>)。结果显示,三氯联苯和五氯联苯水体浓度和基于  $\log K_{ow}$  值的理论浓度接近(整体偏差 < 20%),表明处于水-颗粒物分配平衡;四氯联苯水体浓度远低于对应的理论浓度值,而六氯联苯水体浓度高于后者。

通过对长江口和近海环境中传统 POPs 有机氯农药(HCHs 和 DDTs)的调查显示: HCHs 由于长期的禁用, HCHs ( $\alpha$ -HCH 和  $\gamma$ -HCH) 的含量基本代表着环境背景值,其在大气-水-沉积物界面关系(气-粒分配、水-气交换和水-沉积物分配)基本处于相对平衡状态,即使在长江汛期(6月~9月),河水流量增加携带了更多的 HCHs 进入长江口,使得这一阶段的水-气交换方向有短暂的改变,但是对近海水-沉积物分配平衡影响有限<sup>[18]</sup>。类似的结果还包括 DDTs 的降解产物( $p, p'$ -DDE 和  $p, p'$ -DDD)<sup>[18]</sup>。因此,认为当水体中传统 POPs 来源逐渐从一次排放来源转为从环境

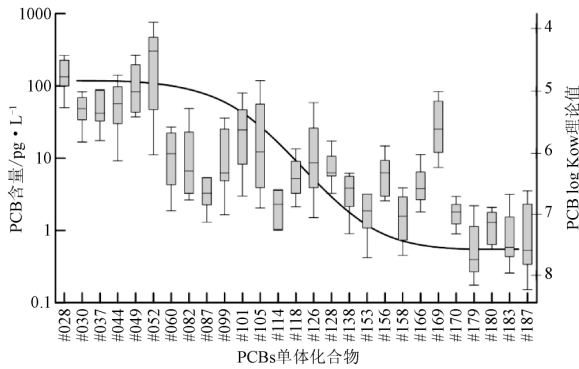


图4 东海水体中PCBs浓度和化合物 $\log K_{ow}$ 理论值的对应关系

Fig. 4 The relationship between the concentration of PCBs and the theoretical value of compound  $\log K_{ow}$  in the water of the East China Sea

介质(尤其是土壤)中的河流二次搬运来源,在近海水体中往往表现出水-沉积物分配平衡;而仍以一次排放来源为主的化合物( $p,p'$ -DDT),其在大气-水-沉积物界面关系往往表现出非平衡状态,而且易受长江径流、气团来源、环境温度等季节参数影响而显著变化<sup>[19]</sup>。基于以上分析,我们认为东海水体中三氯联苯和五氯联苯处于水-沉积物分配平衡,正是表明该化合物主要来自河流二次搬运贡献为主。历史上三氯联苯和五氯联苯是我国主要生产和使用的多氯联苯类型,其中三氯联苯主要用于电力电容器的浸渍剂,五氯联苯主要用于油漆的添加剂,因此,水体PCBs的调查结果与我国多氯联苯历史使用情况吻合。近海水体中四氯联苯浓度低于理论值,表明目前环境中一次排放或者二次搬运的四氯联苯污染源贡献相对较低,对水体污染程度较低。与之对比的是,水体中六氯联苯浓度高于理论值1~2个数量级,换言之,东海近岸水体中六氯联苯污染程度较高,有潜在的污染源。这一潜在的污染源可能和东海沿岸省市电子垃圾处理场有关。李英明等<sup>[20]</sup>在对台州电子垃圾拆解地区的研究表明该地区大气中PCBs的浓度达到了(4.23~11.35) ng/m<sup>3</sup>,远高于其他地区,且随着氯原子数的增加,污染物在颗粒物上的比例增大。杨彦等<sup>[21]</sup>分析浙江某电子垃圾拆解区不同环境介质中15种PCBs同系物浓度,结果显示研究区大气、土壤和饮用水样品中PCBs浓度均高于国际已有报道的同介质中PCBs污染水平,其中PCB-047和PCB-171污染最为严重。

### 3 结论

(1) 中国东海水体中PCBs浓度为(0.59~1.68) ng/L,相比国内外海域,东海水体中PCBs浓度属于中等水平。

(2) 研究区域内空间分布结果显示,水体中PCBs浓度离岸越近越高,沿岸区域往往是高浓度区,向外海逐步扩散造成浓度下降;长江冲淡水控制的水体PCBs浓度相对较高,受台湾暖流影响水体浓度下降尤为显著。

(3) 研究区域内组成结果显示,PCBs组成以三氯、四氯和五氯为主(比重合计超过90%),这与我国历史上多氯联苯的使用情况吻合。另一方面,三氯联苯平均比重占54%,随着氯原子取代个数的递增,四氯到六氯联苯的比重递减,表明PCBs的物理化学属性是控制其在水体中浓度组成的重要因素。

(4) 东海近岸水体中六氯联苯污染程度较高,存在潜在的污染源。这一潜在的污染源可能和东海沿岸省市电子垃圾处理场有关。

### 参考文献:

- [1] BAO L J, MARUYA K A, SNYDER S A, et al. China's water pollution by persistent organic pollutants [J]. *Environmental Pollution* 2012, 163: 100-108.
- [2] 刘敏霞, 杨玉义, 李庆孝, 等. 中国近海海洋环境多氯联苯(PCBs)污染现状及影响因素[J]. *环境科学* 2013, 34(8): 3309-3315.
- [3] 白红妍, 韩彬, 孙丕喜, 等. 桑沟湾水体中多氯联苯的时空分布特征[J]. *环境化学* 2013, 32(4): 557-563.
- [4] ZHANG L F, SHI S X, DONG L, et al. Concentrations and possible sources of polychlorinated biphenyls in the surface water of the Yangtze River Delta, China [J]. *Chemosphere* 2011, 85(3): 399-405.
- [5] 谭培功, 赵仕兰, 曾宪杰, 等. 莱州湾海域水体中有机氯农药和多氯联苯的浓度水平和分布特征[J]. *中国海洋大学学报: 自然科学版* 2006, 36(3): 439-446.
- [6] 张祖麟, 陈伟琪, 哈里德, 等. 九龙江口水体中多氯联苯的研究[J]. *云南环境科学* 2000, 19(S1): 124-126, 129.
- [7] 罗慧, 王新红, 汤丽, 等. 中国部分沿海海域水体中溶解态有机氯农药和多氯联苯的残留分布特征[J]. *海洋环境科学*, 2010, 29(1): 115-120.
- [8] YAN S, RODENBURG L A, DACHS J, et al. Seasonal air-water exchange fluxes of polychlorinated biphenyls in the Hudson River Estuary [J]. *Environmental Pollution* 2008, 152(2): 443-451.

(下转第601页)

- [J]. *Advances in Water Resources* 2011, 34(9): 1195-1206.
- [14] WEI G, KIRBY J T. Time-dependent numerical code for extended Boussinesq equations [J]. *Journal of Waterway Port Coastal & Ocean Engineering*, 1995, 121(5): 251-261.
- [15] OISHI Y, JMAMURA F, SUGAWARA D. Near field tsunami inundation forecast using the parallel TUNAMI N2 model: Application to the 2011 Tohoku Oki earthquake combined with source inversions [J]. *Geophysical Research Letters* 2015, 42(4): 1083-1091.
- [16] INAZU D, WASEDA T, HIBIYA T, et al. Assessment of GNSS-based height data of multiple ships for measuring and forecasting great tsunamis [J]. *Geoscience Letters* 2016, 3: 25.
- [17] HANKS T C, KANAMORI H. A moment magnitude scale [J]. *Journal of Geophysical Research* 1979, 84(B5): 2348-2350.
- [18] OKADA Y. Surface deformation due to shear and tensile faults in a half-space [J]. *Bulletin of the Seismological Society of America* 1985, 75(4): 1135-1154.
- [19] 陈萍, 郑彦鹏. 琉球海沟南段的俯冲作用探讨 [C]//中国地球物理 2013—第二十八分会场专题论文集. 昆明: 中国地球物理学会, 2013.
- [20] CHLIEH M, AVOUAC J P, HJORLEIFSDOTTIR V, et al. Co-seismic slip and afterslip of the great Mw 9.15 Sumatra-Andaman earthquake of 2004 [J]. *Bulletin of the Seismological Society of America* 2007, 97(1A): S152-S173.
- [21] 吴时国, 喻普之. 海底构造学导论 [M]. 北京: 科学出版社, 2006.
- [22] MEGAWATI K, SHAW F, SIEH K, et al. Tsunami hazard from the subduction megathrust of the South China Sea: Part I. Source characterization and the resulting tsunamis [J]. *Journal of Asian Earth Sciences* 2009, 36(1): 13-20.
- [23] 洪明理, 霍振香, 任鲁川. 1934年马尼拉海沟中部7.5级地震复发周期的估计及引发海啸的数值模拟研究 [J]. *南京师大学报(自然科学版)* 2016, 39(4): 8-13.
- [24] 魏柏林, 康英, 陈玉桃, 等. 南海地震与海啸 [J]. *华南地震*, 2006, 26(1): 47-60.
- [25] 赵联大, 于福江, 王培涛. 我国的海啸风险与预警 [M]//国家减灾委办公室, 国家减灾委专家委员. 国家综合防灾减灾与可持续发展论坛文集. 北京: 气象出版社, 2012: 370-376.
- [26] RUANGRASSAMEEE A, SAELEM N. Effect of tsunamis generated in the Manila trench on the Gulf of Thailand [J]. *Journal of Asian Earth Sciences* 2009, 36(1): 56-66.
- (上接第593页)
- [9] ZHANG S Y, ZHANG Q, DARISAW S, et al. Simultaneous quantification of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), polychlorinated biphenyls (PCBs), and pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in Mississippi river water in New Orleans, Louisiana, USA [J]. *Chemosphere*, 2007, 66(6): 1057-1069.
- [10] HOWELL N L, SUAREZ M P, RIFAI H S, et al. Concentrations of polychlorinated biphenyls (PCBs) in water, sediment, and aquatic biota in the Houston Ship Channel, Texas [J]. *Chemosphere* 2008, 70(4): 593-606.
- [11] GARCÍA-FLOR N, GUITART C, BODINEAU L, et al. Comparison of sampling devices for the determination of polychlorinated biphenyls in the sea surface microlayer [J]. *Marine Environmental Research* 2005, 59(3): 255-275.
- [12] HUANG Y M, LI J, XU Y, et al. Polychlorinated biphenyls (PCBs) and hexachlorobenzene (HCB) in the equatorial Indian Ocean: Temporal trend, continental outflow and air-water exchange [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, 80(1/2): 194-199.
- [13] ZHANG L, LOHMANN R. Cycling of PCBs and HCB in the surface ocean-lower atmosphere of the open Pacific [J]. *Environmental Science & Technology* 2010, 44(10): 3832-3838.
- [14] LIN T, HU L M, SHI X F, et al. Distribution and sources of organochlorine pesticides in sediments of the coastal East China Sea [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2012, 64(8): 1549-1555.
- [15] LI Y Y, LIN T, CHEN Y J, et al. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in sediments of the coastal East China Sea: Occurrence, distribution and mass inventory [J]. *Environmental Pollution* 2012, 171: 155-161.
- [16] HAN D M, CURRELL M J. Persistent organic pollutants in China's surface water systems [J]. *Science of the Total Environment* 2017, 580: 602-625.
- [17] YUAN J T, YU S L, ZHANG T, et al. QSPR models for predicting generator-column-derived octanol/water and octanol/air partition coefficients of polychlorinated biphenyls [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety* 2016, 128: 171-180.
- [18] LI Z X, LIN T, LI Y Y, et al. Atmospheric deposition and air-sea gas exchange fluxes of DDT and HCH in the Yangtze River Estuary, East China Sea [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 2017, 122(14): 7664-7677.
- [19] 林田, 马传良, 王丽芳, 等. 滇池沉积物中多氯联苯和有机氯农药的残留特征与风险评估 [J]. *地球与环境* 2014, 42(5): 625-630.
- [20] 李英明, 江桂斌, 王亚韡, 等. 电子垃圾拆解地大气中二噁英、多氯联苯、多溴联苯醚的污染水平及相分配规律 [J]. *科学通报* 2008, 53(2): 165-171.
- [21] 杨彦, 王宗庆, 王琼, 等. 电子垃圾拆解场多环境介质多氯联苯 (PCBs) 污染特征及风险评估 [J]. *生态毒理学报*, 2014, 9(1): 133-144.