

兰州地区 PCBs 的长距离传输潜力及其总持久性模拟研究

马子龙, 高 宏*, 方利江, 丁中原, 吴有方, 柳 敏, 吴军年

(兰州大学资源环境学院, 兰州 730000)

摘 要:运用 TaPL3(version 3.00)模型计算了 7 种 PCBs 同系物在兰州地区通过大气和水体的特征迁移距离(CTD)及其总持久性(P_{ov}),讨论了其长距离传输潜力(LRTP)和 P_{ov} 之间的关系,并以 PCB28 为例,应用灵敏度分析方法对模型的不确定性进行了研究。结果显示,兰州地区 PCB28、PCB52、PCB77、PCB101、PCB138、PCB153 和 PCB180 通过大气的 CTD_{air} 在 250~2 500 km 之间, P_{ov} 在 500~33 000 d 之间,PCB138、PCB153 和 PCB180 对源区影响较大;通过水体的 CTD_{water} 在 6 500~61 000 km 之间, P_{ov} 在 850~36 000 d 之间,PCB28、PCB52、PCB77 和 PCB101 对源区影响较大。7 种 PCBs 的同系物 LRTP 和 P_{ov} 之间没有直接的联系,就排放到大气中的 PCBs 而言,对 P_{ov} 和 CTD 影响最大的参数都是理化参数;就排放到水体中的 PCBs 而言, P_{ov} 比 CTD 更依赖于 PCBs 的理化性质,而 CTD 比 P_{ov} 更依赖于环境条件。同国外的研究相比,兰州地区 PCB28 通过大气的 CTD_{air} 偏低,通过水体的 CTD_{water} 偏高,PCB28 通过大气和水体的 P_{ov} 都偏高。

关键词:PCBs;TaPL3;持久性有机物;长距离传输潜力;总持久性

中图分类号:X592 **文献标志码:**A **文章编号:**1672-2043(2012)01-0060-07

Simulation of Long-Range Transport Potential and Overall Persistence of Polychlorinated Biphenyls(PCBs) in Lanzhou Area, China

MA Zi-long, GAO Hong, FANG Li-jiang, DING Zhong-yuan, WU You-fang, LIU Min, WU Jun-nian

(College of Resource and Environment, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China)

Abstract: Polychlorinated Biphenyls(PCBs) are a group of persistent organic pollutants(POPs),which can be away from the source area and distribute on a global scale because of its long-range transport, bioaccumulation and persistence characteristic. So they already become a threat to human health and ecosystems. Therefore, it is very significant to estimate the long-range transport potential(LRTP) and the overall persistence(P_{ov}) of PCBs, in which that the PCBs environmental risk to the ecological system and human health of local and remote areas can be assessed and also it is available to manage and authorized controlled specified chemicals. In this paper, the characteristic travel distance(CTD) and P_{ov} of 7 congeners of PCBs through air and water in Lanzhou area were calculated by TaPL3 model. Furthermore, the relationships between the LRTP and P_{ov} were also discussed. In addition, the uncertainty of the model was identified by sensitivity analysis method taking PCB28 as an example. Modeling results indicated that CTD_{air} of 7 PCB congeners through the atmosphere were between 250~2 500 km, while P_{ov} were between 500~33 000 d, in which we can deduced that congeners of PCB138, PCB153 and PCB180 had the greater impact on the source region because of their smaller CTD_{air} , otherwise, congeners of PCB28, PCB52, PCB77, PCB101 with larger CTD_{air} tend to transport to remote area by air. Meanwhile the CTD_{water} of 7 PCB congeners were between 6 500~61 000 km and P_{ov} were between 850~36 000 d in water, in which PCB28, PCB52, PCB77 and PCB101 had the greater impact on the water environment of source region because of their smaller CTD_{water} in water otherwise, PCB138, PCB153, PCB180 tend to away from water body of local area and flow to other regions by water. In addition, the study results also showed that there were no direct relationships between the LRTP and P_{ov} of 7 PCBs congeners. Furthermore, the physical and chemical parameter ($\lg K_{ow}$) is the most influential parameters for P_{ov} and CTD_{air} when PCBs were emitted into the atmosphere.

收稿日期:2011-07-09

基金项目:国家自然科学基金资助项目(40971267/D010903);“春晖计划”国际合作科研项目(Z2008-1-62025)

作者简介:马子龙(1984—),男,甘肃临夏人,硕士研究生,主要从事干旱区环境有机污染机制研究。E-mail:mazl10@lzu.cn

* 通讯作者:高 宏 E-mail:honggao@lzu.edu.cn

Moreover, P_{ov} were more dependent on physical and chemical properties of PCBs than the CTD_{water} when PCBs were discharged into the water, while the CTD_{water} were more dependent on environmental conditions than P_{ov} . Compared to the similar foreign research, the CTD_{air} of PCB28 through atmosphere in Lanzhou was obviously lower, and the CTD_{water} of it through water was significantly higher, however, P_{ov} are significantly higher through both water and atmosphere.

Keywords: PCBs; TaPL3; persistent organic pollutants (POPs); long-range transport potential (LRTP); overall persistence (P_{ov})

多氯联苯 (Polychlorinated Biphenyls, PCBs) 是一类典型的持久性有机物 (Persistent Organic Pollutants, POPs), 由于其具有长距离迁移、生物蓄积性和持久性等特性, 可远离源区, 进行全球循环, 成为威胁生态系统和人类健康的巨大隐患。自 1965 年到 1974 年 (1974 年多氯联苯被禁止生产) 的 10 年间, 中国有接近 10 000 t 的 PCBs 被用于生产和使用, 其中, 9 000 t 三氯联苯主要用于电力电容器, 而 1 000 t 五氯联苯主要作为涂料添加剂^[1]。斯德哥尔摩公约 (2001 年 5 月 22 日) 将 PCBs 列为首批受控 POPs 之一^[2]。

20 世纪 80 年代, 国外学者已经发现 PCBs 通过长距离迁移、生物蓄积等作用可以迁移到北极和南极等边远地区, 对北极和南极的生态系统, 特别是当地土著居民的健康, 产生了极大威胁^[3-5]。蒋煜峰等^[6]在上海市农村及郊区土样中共检出 62 种 PCB, 总浓度最高 $2\,530\text{ ng}\cdot\text{kg}^{-1}$, 最低 $71.7\text{ ng}\cdot\text{kg}^{-1}$, 平均含量 $534\text{ ng}\cdot\text{kg}^{-1}$, 从整体采样区域来看, 可能主要来源于城区污染导致的区域大气沉降或是全球大气传输。国内学者对天津^[7]等城市做过其他典型 POPs (如六六六) 的长距离传输潜力 (The Long-range Transport Potential, LRTP) 和总持久性 (Overall Persistence, P_{ov}) 的模拟研究, 但国内关于 PCBs 的 LRTP 和 P_{ov} 的模拟未见有公开报道。虽然 1974 年 PCBs 即已停产, 但此前地球上生产的 PCBs 还有 2/3 仍在被使用或者被填埋, 这些残留物由于其污染特性作为一个潜在的 PCBs 污染源, 将可能给几代人带来不良影响, 同时 PCBs 同类物和异构体的数目繁多, 结构类似, 其在结构上的微小差别有时却能造成它们迁移行为的巨大差异^[8]。

联合国 GEMS/Food (Global Environmental Monitoring System/food, 全球环境监测规划/食品污染监测与评估项目) 中规定了 PCB28、PCB52、PCB101、PCB138、PCB153、PCB180 作为 PCBs 污染状况的指示性单体 (indicator PCB), 用以衡量 PCB 的污染状况^[9]。同时 PCB77 作为一种类二恶英结构的非邻位取代共面结构的 PCB, 其毒性远高于其他同系物, 其 TEF (Toxic Equivalency Factors, 毒性当量因子) 值为 0.000 5, 在人体含量较高, 是极易危害人体的 PCBs

之一^[10]。因此, 研究 PCBs (28、52、77、101、138、153、180) 的 LRTP 和 P_{ov} 对评估 PCBs 对生态系统和人类健康影响具有一定的现实意义, 同时对中国筛选 POPs 优先控制的高低, 决定如何管理具体的化学品的使用限制或授权程序也有一定的理论指导意义^[11-12]。

1 材料与方法

1.1 研究区简介

本论文研究区域兰州地区, 处在 $102^{\circ}30'E\sim104^{\circ}30'E$ 、 $35^{\circ}5'N\sim38^{\circ}N$ 之间, 位于中国陆域版图的几何中心, 是古丝绸之路上的重镇。属温带大陆性气候, 特点是降水少、日照多、光能潜力大、气候干燥、昼夜温差大, 年日照时数为 2 600 h, 无霜期为 180 d, 年平均降水量 250~350 mm, 并集中分布在 6—9 月, 年平均气温 9.3°C 。兰州市域内水资源低于全国平均水平, 黄河穿城而过, 黄河兰州段全长 358.6 km^[13]。兰州市辖 5 区 (城关、七里河、西固、安宁、红古)、3 县 (永登、皋兰、榆中)。全市土地面积为 135.3 万 hm^2 , 其中耕地 21.9 万 hm^2 , 林地 7.6 万 hm^2 , 牧草地 76.5 万 hm^2 , 未利用的荒草地、盐碱地、沙地等近 23.5 万 hm^2 。兰州是黄河上游最大的工业城市和西部重要的原材料工业基地。

1.2 概念介绍

LRTP 可以用特征迁移距离 (Characteristic Travel Distance, CTD) 来描述^[14], 即一个携带化学物质的空气单元在以土壤、植被和水体代表的固定相上流动。该空气单元和土壤表面的化学物质的浓度随着离开排放源的距离和时间的增加而降低。在该化学物质的 CTD 上, 其浓度降低到初始浓度的 $1/e$, 这是由于其在大气中的降解和向固定相的永久转移所致。CTD 可根据基于逸度概念的多介质迁移归趋模型计算得出^[15], 也可用平均“跳跃”次数 (H) 表征^[16], 即单个分子在大气环境中从释放到被降解的过程中平均经历的“跳跃”次数。

1.3 模型框架

三级稳态多介质模型 TaPL3^[17] (Version 3.00) 是基于逸度理论而建立的。该模型假设污染源连续稳定

地向大气或水体中排放强度为 $1\,000\text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$ 的 PCBs, PCBs 值减少量 (主要是环境降解和各相中残留量变化)与排放量保持相等。研究区域包括大气、水体、土壤、沉积物和植被 5 个主相。模型只需输入化合物的理化参数和环境参数,且 3.00 版本在计算时已根据温度对模型参数进行了校对,使用简单。

1.4 模型参数

TaPL3 模型共需输入 18 个物理化学参数和 46 个环境参数。模型参数取值主要来源于国外相关的数据手册和相关文献,部分参数取值见表 1、表 2。

2 结果与讨论

2.1 模型模拟结果

模型模拟出的结果包括通过大气和水体的 CTD (L_A/L_W)及 $P_{ow}(\tau_{RA}/\tau_{RW})$,平均“跳跃”次数(H)及其在大

气、水体、土壤、沉积物和植被中的质量分数(W_A 、 W_W 、 W_S 、 W_{SE} 和 W_V)。

2.1.1 PCBs 排放到大气中模型模拟结果

表 3 为 PCB28、PCB52、PCB77、PCB101、PCB138、PCB153 和 PCB180 排放到大气中时模型的计算结果。PCB138、PCB153 和 PCB180 的 L_A 较其他 4 种物质小,而在水体中的总持久性(τ_{RA})要比另外 4 种同系物大得多,因而主要是通过大气对距污染源较近的区域产生影响,这是由于其较低的挥发性以及较小的辛醇水分配系数所导致的。这 3 种物质排放到大气并且系统达到稳定状态后, W_A 分别为 0.03%、0.06% 和 0.01%。PCB28、PCB52、PCB77 和 PCB101 由于挥发性较高,可迁移到较远的区域,排放到大气中并且系统达到稳定状态后, W_A 分别为 5.08%、2.22%、0.62% 和 0.58%。

表 1 PCBs 的物理化学性质参数
Table 1 Physical-chemical parameters for pollutants

参数	PCB28	PCB52	PCB77	PCB101	PCB138	PCB153	PCB180
氯取代位置	2,4,4'	2,2',5,5'	3,3',4,4'	2,2',4,5,5'	2,2',3,4,4',5'	2,2',4,4',5,5'	2,2',3,4,4',5,5'
摩尔质量/ $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	257.543 ^[18]	291.988 ^[18]	292 ^[18]	326.4 ^[18]	360.878 ^[18]	360.878 ^[18]	395 ^[18]
熔点/ $^{\circ}\text{C}$	57.5 ^[18]	88 ^[18]	180 ^[18]	78.5 ^[18]	80.5 ^[18]	103.5 ^[18]	110 ^[18]
水溶解度/ $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	0.117 ^[18]	0.140 ^[18]	0.002 7 ^[18]	0.006 74 ^[18]	0.007 2 ^[18]	0.011 1 ^[18]	0.005 22 ^[18]
固体饱和蒸汽压/Pa	0.014 9 ^[18]	0.012 0 ^[18]	0.000 646 ^[18]	0.002 45 ^[18]	0.000 514 ^[18]	0.000 603 ^[18]	0.000 107 2 ^[18]
辛醇-水分配系数的对数	5.55 ^[19]	5.79 ^[19]	6.48 ^[19]	6.33 ^[19]	7.22 ^[19]	6.80 ^[19]	7.16 ^[19]
辛醇-水分配的焓变/ $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$	-28.39 ^[19]	-37.56 ^[19]	-14.33 ^[19]	-8.81 ^[19]	-17.38 ^[19]	-17.48 ^[19]	-8.27 ^[19]
气-水分配的焓变/ $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$	47.23 ^[19]	48.44 ^[19]	58.96 ^[19]	70.96 ^[19]	69.50 ^[19]	70.97 ^[19]	74.14 ^[19]
水中的半衰期/h	24 000 ^[19]	30 000 ^[19]	30 000 ^[19]	60 000 ^[19]	120 000 ^[19]	123 000 ^[19]	240 000 ^[19]
土壤中的半衰期/h	26 000 ^[19]	87 600 ^[19]	87 600 ^[19]	55 000 ^a	165 000 ^[19]	165 000 ^[19]	333 000 ^[19]
植被中的半衰期/h	300 ^b	300 ^b	750 ^b	1 200 ^b	3 000 ^b	3 000 ^b	6 000 ^b
沉积物中的半衰期/h	26 000 ^[19]	87 600 ^[19]	87 600 ^[19]	87 600 ^[19]	165 000 ^[19]	165 000 ^[19]	330 000 ^[19]
大气中的半衰期/h	600 ^[19]	600 ^[19]	1 500 ^[19]	2 400 ^[19]	6 000 ^[19]	6 000 ^[19]	12 000 ^[19]

注:a:默认值;b:默认为大气中半衰期的一半。

表 2 研究区域的主要环境参数
Table 2 Environmental parameters of the study area

参数	取值	参数	取值
环境温度/ $^{\circ}\text{C}$	9.8 ^[20]	气溶胶密度/ $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	1 500 ^[21]
大气面积/ m^2	1.11E+09 ^[22]	悬浮颗粒物密度/ $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	2 563 ^[23]
大气高度/m	2 000 ^[24]	水相中鱼类的密度/ $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	1 000 ^[21]
水体面积/ m^2	1.00E+07 ^[22]	土壤中固相的密度/ $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	2 563 ^[23]
水体深度/m	2.5 ^[25]	沉积物中固相的密度/ $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$	2 563 ^[23]
土壤深度/m	0.1 ^[26]	土壤中固体有机碳含量/ $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$	0.018 7 ^[24]
风速/ $\text{km}\cdot\text{h}^{-1}$	2.88 ^[20]	沉积物中固体有机碳含量/ $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$	0.002 6 ^[21]
水流速度/ $\text{km}\cdot\text{h}^{-1}$	6.12 ^[27]	悬浮物中固体有机碳含量/ $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$	0.002 6 ^[21]
沉积物厚度/m	0.1	鱼类中脂肪含量/ $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$	0.05 ^[21]

PCB 的 7 种同系物的 L_A 排序为 PCB180<PCB138<PCB153<PCB52<PCB28<PCB77<PCB101; 这 7 种同系物的平均“跳跃”次数(H)的排序为 PCB180<PCB138<PCB52<PCB153<PCB28<PCB77<PCB101。其中, PCB180 的 L_A 和 H 值都是最小, PCB101 的 L_A 和 H 值都是最大, 其排序相同。而对于 PCB138、PCB153、PCB52、PCB28、PCB77, L_A 和 H 值处于中等, 但排序不同, 这主要是 PCBs 的理化性质不同, 加上兰州处于黄河河谷地带, 大气污染严重, 污染物迁移条件复杂等原因所造成。

2.1.2 PCBs 排放到水体中模型模拟结果

表 4 为 PCB28、PCB52、PCB77、PCB101、PCB138、PCB153 和 PCB180 排放到水体中时模型的模拟结果。PCB28 和 PCB52 在水中的 CTD 较小, 对源区影响较大, 然而由于这两种物质具有较高的水溶解度, 当其排入水体中并且系统达到平衡后, W_w 分别为 5.11% 和 2.28%。PCB77、PCB101、PCB138、PCB153 和 PCB180 在水中的 W_w 相似, 分别为 1.76%、1.85%、1.29%、1.35% 和 1.15%。与 L_A 恰好相反, PCB138、PCB153、PCB180 相比另外 4 种同系物 (PCB28、PCB52、PCB77、PCB101) 辛醇-水分配系数的对数值较大, L_w 也要大, 其中 PCB28 在水体中的 L_w 最小, PCB180 在水体中的 L_w 最大, 约为 PCB28 在水体中的 10 倍左右。

表 3 PCBs 排放到大气中时模型的输出结果

Table 3 Model output for exposure of PCBs in air

参数	PCB28	PCB52	PCB77	PCB101	PCB138	PCB153	PCB180
L_A/km	1 771	1 317	1 713	2 476	352	561	281
τ_{RA}/d	504	857	4 022	6 178	15 345	14 597	32 491
H	1.80	1.09	2.29	6.37	0.66	1.30	0.52
$W_A/\%$	5.08	2.22	0.62	0.58	0.03	0.06	0.01
$W_w/\%$	4.48	2.15	1.72	1.83	1.28	1.34	1.14
$W_d/\%$	15.40	4.47	2.60	5.45	0.77	0.92	0.38
$W_{st}/\%$	73.9	89.9	94.5	91.9	97.7	97.4	98.3
$W_v/\%$	1.18	1.27	0.51	0.23	0.25	0.32	0.18

表 4 PCBs 排放到水体中时模型的输出结果

Table 4 Model output for exposure of PCBs to water

参数	PCB28	PCB52	PCB77	PCB101	PCB138	PCB153	PCB180
L_w/km	6 614	8 549	14 348	18 111	33 172	32 808	60 488
τ_{RW}/d	881	2 547	5 562	6 658	17 530	16 582	35 933
$W_A/\%$	2.46	0.603	0.324	0.469	0.010 4	0.025 5	0.003 55
$W_w/\%$	5.11	2.28	1.76	1.85	1.29	1.35	1.15
$W_d/\%$	7.45	1.21	1.37	4.4	0.239	0.423	0.108
$W_{st}/\%$	84.4	95.6	96.3	93.1	98.4	98.1	98.7
$W_v/\%$	0.492	0.344	0.268	0.189	0.078 4	0.145	2.51

兰州是典型的半干旱大陆性季风气候区, 同时由于 PCBs 理化性质稳定, 半衰期较长, 导致该地区 PCBs 滞留时间增加。PCBs 的 7 种同系物在大气中的总持久性(τ_{RA})都比在水体中的总持久性(τ_{RW})短, 由此可见, PCBs 进入环境的方式对 P_{ow} 有重要影响。

2.2 模型参数的灵敏度分析

为确定模型参数对模拟结果的相对贡献, 从而识别出对模拟结果有重要影响的参数, 以 PCB28 为例, 按照 Mongan 等^[28]提出的灵敏度系数的算法, 得出参数对模型结果的灵敏度。各参数代码见表 5。

表 5 灵敏度分析中参数代码

Table 5 Parameters code in model sensitivity study

参数	代码	参数	代码
辛醇-水分配系数的对数	X1	水中的半衰期	Y2
熔点	X2	沉积物中的半衰期	Y3
大气中的半衰期	X3	水中降解的活化能	Y4
土壤中的半衰期	X4	沉积物中降解的活化能	Y5
土壤中降解的活化能	X5	环境温度	Y6
环境温度	X6	水体深度	Y7
大气高度	X7	沉积物深度	Y8
植被占土壤总面积的比例	X8	水体流速	Y9
风速	X9	水相中固体的体积分数	Y10
气溶胶干沉降速率	X10	沉积物中水子相的体积分数	Y11
清洗速率	X11	沉积物沉降速率	Y12
辛醇-水分配系数的对数	Y1	沉积物再悬浮速率	Y13

注: X 代表 PCBs 排放到大气的相关参数, Y 代表 PCBs 排放到水体的相关参数。

由图 1 可知, 11 个参数中有 9 个参数 (3 个理化参数, 6 个环境参数) 对通过大气中的 L_A 的灵敏度较大。其中, 对 L_A 影响最大的参数是辛醇-水分配系数的对数(X1), 并且是负影响参数, 达到了 -391.3%, 其次是风速、大气中的半衰期和大气高度, 皆为正影响参数, 分别达到了 99.94%、61.26% 和 45.74%。这些关键参数中辛醇-水分配系数的对数属于理化参数, 风速和大气高度属于环境参数, 由于兰州地区常年风速小、静风频率高, 加之地理位置特殊, 导致了 PCBs 的地区生态污染风险增大。对于通过大气中 PCBs 的总持久性 τ_{RA} , 11 个参数中有 10 个参数 (3 个理化参数, 7 个环境参数) 灵敏度较大。其中对 τ_{RA} 影响最大的参数为辛醇-水分配系数的对数, 并且是正影响参数, 达到了 285.71%, 其次是熔点、大气高度、温度, 都是负影响参数。

由图 2 可以看出, 有 13 个参数 (3 个理化参数,

10 个环境参数)对通过水体的 L_w 灵敏度较大。其中水体流速、水体深度、辛醇-水分配系数的对数等参数对通过水体的 L_w 的影响较大,皆为正影响参数。有 9 个参数(2 个理化参数,7 个环境参数)对通过水体的

τ_{RW} 的灵敏度较大,其中,对 τ_{RW} 影响最大的参数是辛醇-水分配系数的对数,达到了 515.891%,其次是温度、沉积物中的半衰期和沉积物沉降速率,均接近 100%,这 4 个参数皆为正影响参数。这些参数在很大

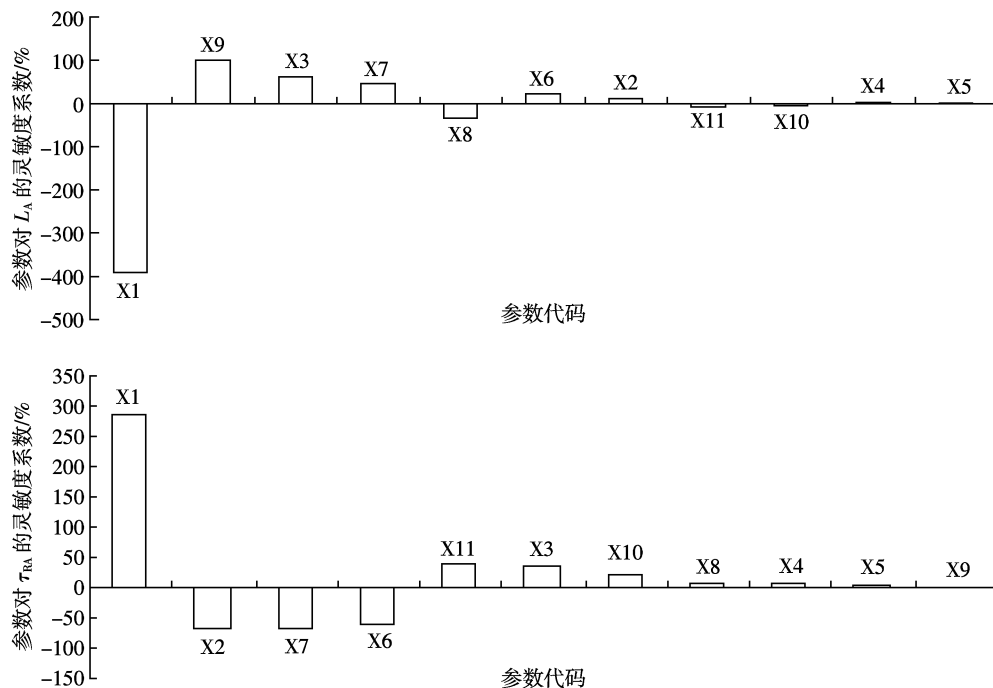


图 1 参数对通过大气的 CTD(L_A)及其对应的总持久性 $P_{ov}(\tau_{RA})$ 的灵敏度

Figure 1 The sensitivity of parameters of CTD(L_A) and its corresponding overall persistent $P_{ov}(\tau_{RA})$ in atmosphere

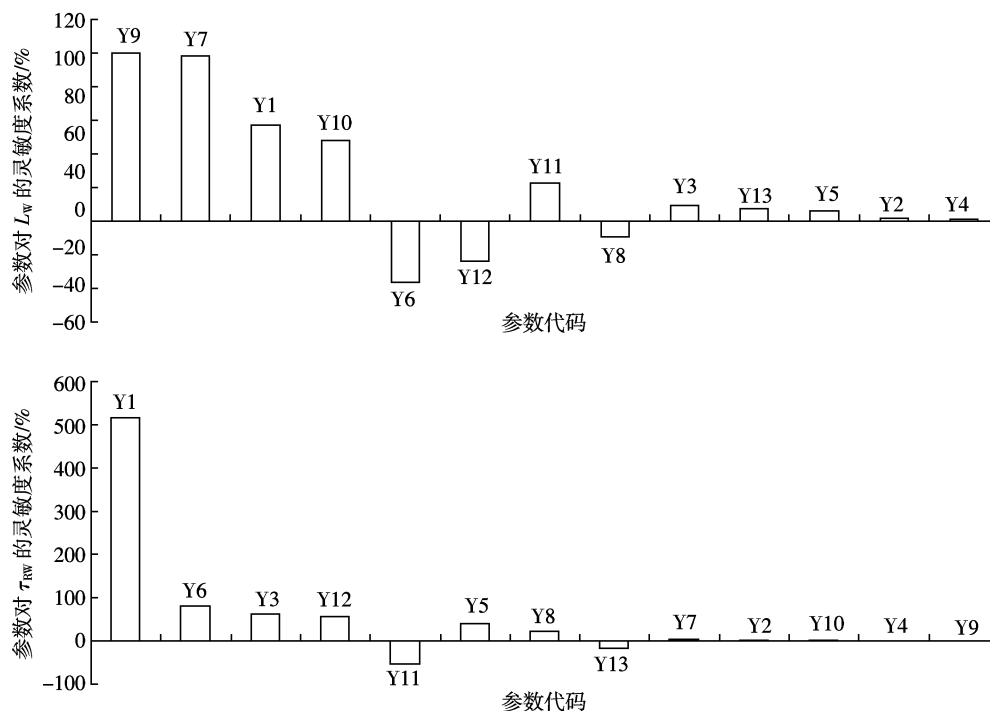


图 2 参数对通过水体的 CTD(L_w)及其对应的总持久性 $P_{ov}(\tau_{RW})$ 的灵敏度

Figure 2 The sensitivity of parameters of CTD(L_w) and its corresponding overall persistent $P_{ov}(\tau_{RW})$ in water

程度上影响 PCBs 的迁移和降解,决定其在环境中的停留时间。

需要指出的是,本研究是基于兰州地区的环境条件,通过 TaPL3 (Version 3.00) 模型计算了通过大气和水体的 CTD 以及 P_{ow} 。研究结果只是一个可与同等环境下其他 POPs 或同类 POPs 在不同地区的 CTD 和 P_{ow} 比较的“相对值”,而不是一个“绝对值”。实际情况尚需监测等方面工作验证其可靠性。

2.3 LRTP 和 P_{ow} 的关系

按照 CTD 值和 P_{ow} 对 PCBs 的排序发现,其相对的顺序并不一致,由各自的定义和计算方法以及排放介质的不同可知,当 PCBs 排放到大气中时,挥发度较高且水溶解性较低的 PCBs (PCB28、PCB52、PCB77、PCB101) 的 CTD 一般都较大,而挥发度较低的 PCBs (PCB138、PCB153、PCB180) 的 CTD 一般都较小;当 PCBs 排放到水体时,沉积物和水体中半衰期较长的 PCBs (PCB138、PCB153、PCB180) 的 CTD 一般都较大,而在沉积物和水体中半衰期较短的 PCBs (PCB28、PCB52、PCB77、PCB101) 的 CTD 一般都较小。对于排放到大气中的 PCBs 而言,对 P_{ow} 和 CTD 影响最大的参数都是辛醇-水分配系数的对数 ($\lg K_{ow}$); 对排放到水体中的 PCBs 而言, P_{ow} 比 CTD 更依赖于 PCBs 的理化性质,而 CTD 比 P_{ow} 更依赖于环境条件。CTD 和 P_{ow} 由于迁移介质 (主要是大气) 可能并不是 PCBs 在其中持久性最长的介质 (一般是沉积物),因而在本研究中 PCB138、PCB153、PCB180 在大气中的 L_A 较小,而大气中的总持久性 (τ_{RA}) 却比另外 4 种 PCBs 要大得多; PCB138、PCB153、PCB180 在水体中的 L_W 较大,其总持久性 (τ_{RW}) 也较大。

2.4 与国外相关研究的比较

利用 TaPL3 (Version 3.00) 模型计算时,若将环境参数由兰州地区替换为包括植被在内的 EQC (Environmental Quality Council, 美国环境改善委员会) 环境参数^[1],而物理化学参数不变,模型计算的 PCB28 的 L_A 和 L_W 分别为 4 996 km 和 5 597 km, τ_{RA} 和 τ_{RW} 分别为 722 d 和 1 675 d。其中 L_A 比兰州地区的要高,其原因在于,对通过大气的 L_A 而言,灵敏度最高且为正值的环境参数为风速, EQC 环境的取值为 $14.4 \text{ km} \cdot \text{h}^{-1}$, 是兰州地区取值 $2.88 \text{ km} \cdot \text{h}^{-1}$ 的 5 倍多,而灵敏度为正值且仅次于风速的参数大气高度, EQC 环境的取值为 1 000 m, 是兰州地区取值 2 000 m 的一半,相比风速而言,影响要小得多,故 EQC 环境下的 L_A 较高。 L_W 比兰州地区的偏低,其原因是河流特征不同,参数

取值差异较大。EQC 环境下 τ_{RA} 和 τ_{RW} 下的结果较高,主要是由于灵敏度为正值的环境参数 EQC 环境的取值为 $20 \text{ }^{\circ}\text{C}$, 是兰州地区取值 $10 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 的两倍。

Andreas Beyer 等^[14]运用 TaPL3 (Version 2.0) 模型计算的 Tetra-CB 的 L_A 和 L_W 分别为 8 900 km 和 2 900 km, τ_{RA} 和 τ_{RW} 分别为 2 500 d 和 2 900 d, 该结果在计算时,环境相并未包括植被在内,同时未考虑环境温度对结果的影响,因此与本研所得结果难以直接比较,与包括植被在内的 EQC 环境条件下所得结果也有明显差异。

3 结论

(1) 兰州地区 PCB28、PCB52、PCB77、PCB101、PCB138、PCB153 和 PCB180 的 L_A 在 250~2 500 km 之间, τ_{RA} 在 500~33 000 d 之间。其中, PCB138、PCB153 和 PCB180 的 L_A 较其他 4 种物质小,而总持久性 (τ_{RA}) 要大得多,因而对源区影响更大。而 PCB28、PCB52、PCB77、PCB101 由于其较大的 L_A , 更容易在大气中进行远距离的迁移。灵敏度分析表明,影响 PCB28 L_A 的关键参数主要是辛醇-水分配系数的对数等 3 个物理化学参数和风速等 6 个环境参数,影响 PCB28 τ_{RA} 的关键参数主要是辛醇-水分配系数的对数等 3 个物理化学参数和大气高度等 7 个环境参数。

(2) 兰州地区 PCB28、PCB52、PCB77、PCB101、PCB138、PCB153 和 PCB180 的 L_W 在 6 500~61 000 km 之间, τ_{RW} 在 850~36 000 d 之间。其中, PCB28、PCB52、PCB77 和 PCB101 的 L_W 较小,因而对源区影响较大; PCB138、PCB153 和 PCB180 的 L_W 和总持久性 τ_{RW} 较大,更容易在水体中进行远距离的迁移。影响 PCB28 L_W 的关键参数主要是辛醇-水分配系数的对数等 3 个物理化学参数和水体流速等 10 个环境参数,影响 PCB28 τ_{RW} 的关键参数主要是辛醇-水分配系数的对数等 2 个物理化学参数和温度等 7 个环境参数。

(3) PCBs 的 LRTP 和 P_{ow} 之间没有直接的联系。对排放到大气中的 PCBs 而言,对 P_{ow} 和 CTD 影响最大的参数都是理化性质参数。对排放到水体中的 PCBs 而言, P_{ow} 比 CTD 更依赖于 PCBs 的理化性质,而 CTD 比 P_{ow} 更依赖于环境条件。

参考文献:

- [1] 金重阳, 郑玉峰, 黄相国, 等. 国内持久性有机污染物的污染现状与对策建议[J]. 环境保护科学, 2002, 28(111): 30-31.
JING Chong-yang, ZHENG Yu-feng, HUANG Xiang-guo, et al. POPs pollution status and countermeasure in China[J]. *Environment Protection*

- Science*, 2002, 28(111):30-31.
- [2] XING Ying, LU Yong-long, Dawson R W, et al. A spatial temporal assessment of pollution from PCBs in China[J]. *Chemosphere*, 2005, 60(6):731-739.
- [3] Goldberg E D. Synthetic organohalides in the sea[J]. *Proc Royal Soc*, 1975, 189:277-289.
- [4] Clausen J, Berg O. The content of polychlorinated hydrocarbons in Arctic ecosystems[J]. *Pure Appl Chem*, 1975, 42:223-232.
- [5] Ballschmiter K, Zell M. Baseline studies of the global pollution. I: Occurrence of organohalogens in pristine European and Antarctic aquatic ecosystems[J]. *Int J Environ Anal Chem*, 1980, 8:15-35.
- [6] 蒋煜峰, 王学彤, 吴明红, 等. 上海农村及郊区土壤中 PCBs 污染特征及来源研究[J]. 农业环境科学学报, 2010, 29(5):899-903.
- JIANG Yu-feng, WANG Xue-tong, WU Ming-hong, et al. Characteristics and source of polychlorinated biphenyls in agricultural soil of Shanghai, China[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2010, 29(5):899-903.
- [7] 王宣同, 唐孝炎, 胡建信. 利用 TaPL3 模型计算 p, p'-DDT 在天津地区的长距离传输潜力[J]. 环境科学学报, 2005, 25(4):491-496.
- WANG Xuan-tong, TANG Xiao-yan, HU Jian-xin. Calculation of long-range transport potential of p, p'-DDT in Tianjin using TaPL3 model[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2005, 25(4):491-496.
- [8] 毕新慧, 徐晓白. 多氯联苯的环境行为[J]. 化学进展, 2000, 12(5):152-160.
- BI Xin-hui, XU Xiao-bai. Behaviors of PCBs in environment[J]. *Progress in Chemistry*, 2000, 12(5):152-160.
- [9] 王姝婷, 金 铨, 栾丽娃, 等. 气相色谱-质谱法测定土壤中指示性多氯联苯[J]. 中国卫生检验杂志, 2011, 20(11):2722-2723.
- WANG Shu-ting, JIN Quan, LUAN Li-wa, et al. Study on determination of indicator PCBs in soil by GC-MS[J]. *Chinese Journal of Health Laboratory Technology*, 2011, 20(11):2722-2723.
- [10] 司雄元, 司友斌, 陈 涛, 等. 纳米 Fe、Si 体系对 3, 3', 4, 4'-四氯联苯的脱氯降解[J]. 中国环境科学, 2011, 31(5):761-767.
- SI Xiong-yuan, SI You-bin, CHEN Tao, et al. Dechlorinative degradation of 3, 3', 4, 4'-tetrachlorobiphenyl by nanometer-sized Fe and Si[J]. *China Environmental Science*, 2011, 31(5):761-767.
- [11] Fenner K, Scheringer M, Hungerbühler K. Prediction of overall persistence and long-range transport potential with multimedia fate models: Robustness and sensitivity of results[J]. *Environmental Pollution*, 2004, 128(1):189-204.
- [12] Klasmeier J, Matthies M, Macleod M, et al. Application of multimedia models for screening assessment of long-range transport potential and overall persistence[J]. *Environ Sci Technol*, 2006, 40(1):53-60.
- [13] 王有乐, 张建奎, 孙苑蓓, 等. 黄河兰州市区段泥沙特性及水质预测研究[J]. 甘肃科技, 2006, 22(7):69-71.
- WANG You-le, ZHANG Jian-kui, SUN Yuan-han, et al. Study of character of suspend and in Lanzhou[J]. *Gansu Science and Technology*, 2006, 22(7):69-71.
- [14] Beyer A, Mackay D, Matthies M, et al. Assessing long-range transport potential of persistent organic pollutants[J]. *Environ Sci Technol*, 2000, 34(4):699-703.
- [15] Wania, Dugani C B. Assessing the long-range transport potential of polybrominated diphenyl ethers: A comparison of four multimedia models[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2003, 22(6):1252-1261.
- [16] Webster E, Mackay D, Hubbarde J. Development of tools to improve exposure estimation for use in ecological risk assessment, the TaPL3 upgrade[R]. Peterborough, Ontario, Trent University, 2003:127.
- [17] Centre for Environmental Modelling and Chemistry:TaPL3, Long-Range transport and persistence level III[DB]. Peterborough, Ontario, Canada:Trent University[2003-09]. <http://www.trentu.ca/cemc>.
- [18] Beyer A, Wania F, Gouin T, et al. Selecting internally consistent physicochemical properties of organic compounds[J]. *Environ Toxicol Chem*, 2002, 21(5):941-953.
- [19] Mackay D, Shiu W Y, Ma K C. Illustrated handbook of physical-chemical properties and environmental fate for organic chemicals[M]. Boca Raton, FL: Lewis Publishers, 1997:804-2111.
- [20] 中国气象局. 中国气象科学数据共享服务网: 中国气候标准值[DB]. 北京: 国家气象信息中心[2009-04-05]. <http://cdc.cma.gov.cn/shishi/climate.jsp?stprovid=甘肃&station=52889>. China Meteorological Administration. Met. Data Services: Standard climate data in China[DB]. Beijing: The National Meteorological Information Center[2009-04-05]. <http://cdc.cma.gov.cn/shishi/climate.jsp?stprovid=甘肃&station=52889>.
- [21] 姚焕炬. 基于逸度模型的持久性有机污染物多介质环境行为与生态风险研究: 以半干旱的兰州地区研究为例[D]. 兰州: 兰州大学, 2010.
- YAO Huan-ju. Modelling multimedia environment behavior and ecological risk of persistent organic pollutants using fugacity models: Take the study of semi-arid Lanzhou area as an example[D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2010.
- [22] 兰州市统计局. 兰州年鉴 2005[M]. 北京: 中国统计出版社, 2005.
- Statistical Bureau of Lanzhou. Yearbook of Lanzhou in 2005[M]. Beijing: China Statistical Press, 2005.
- [23] Mackay D, Papadopoulos D, Taylor N J. Cyclopentadienone oxime dimers as precursors to cyclone equivalents[J]. *J Chem Soc, Chem Commun*, 1992:325-327.
- [24] CAO Hong-ying, TAO shu, XU Fu-liu, et al. Multimedia fate model for hexachlorocyclohexane in Tianjin, China[J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, 38(7):2126-2132.
- [25] 张 丽, 戴树桂. 多介质环境逸度模型研究进展[J]. 环境科学与技术, 2005, 28(1):97-99.
- ZHANG Li, DAI Shu-gui. Reviews of multimedia environmental fugacity models[J]. *Environmental Science and Technology*, 2005, 28(1):97-99.
- [26] 高 宏, 董继元, 吴军年. 兰州地区 HCHs 的跨界面迁移与归趋[J]. 中国环境科学, 2008, 28(5):407-411.
- GAO Hong, DONG Ji-yuan, WU Jun-nian. Transfer and fate of HCHs in Lanzhou region[J]. *China Environmental Science*, 2008, 28(5):407-411.
- [27] 兰州市环境保护局. 2001—2005 年兰州市环境质量报告书[R]. 兰州: 兰州市环境保护局, 2005.
- Lanzhou Environmental Protection Agency. Environmental Quality Report of Lanzhou City in the Years of 2001—2005[R]. Lanzhou: Lanzhou Environmental Protection Agency, 2005.
- [28] Mnogan M G, Henrion M. Uncertainty a guide to dealing with uncertainty in quantitative risk and policy analysis[M]. Cambridge, United Kingdom: Cambridge University Press, 1990.