

污染土壤中六六六和 DDT 在温室中的分布特征及动态变化研究

韩宝禄^{1,2}, 薛南冬^{2*}, 李发生², 周玲莉², 杨 兵², 龚道新¹, 燕云仲²

(1.湖南农业大学资源环境学院,长沙 410128; 2.中国环境科学研究院环境基准与风险评估国家重点实验室,北京 100012)

摘要:应用 PUF 材料空气被动采样技术,研究了密闭温室条件下污染土壤中有机氯农药[DDT 和六六六(HCH)]含量的动态变化及其向空气中扩散的规律。结果表明:土壤中 Σ HCHs 和 Σ DDTs 总量随着培养时间的延长而降低;空气中 HCH 和 DDT 浓度在 20 d 时达到峰值,20 d 以后浓度逐渐降低。培养 60 d 后,土壤中 Σ HCHs 的浓度随土层深度增加而增加,0~2 cm 土层中 Σ HCHs 的浓度 (9.4 ± 0.69) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 显著低于 6~8 cm 土层中的浓度 (12.11 ± 0.83) $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; Σ DDTs 在土壤中浓度随土壤层次呈现先升高后降低的变化趋势。在温室条件下有机氯农药的异构体和降解产物的组成也发生一定变化,土壤中 HCHs 和 DDTs 在一定程度上被激活,温室条件也可能促进 HCHs 和 DDTs 的土-气交换过程;温室环境促进了 p,p' -DDT 和 o,p' -DDT 向 p,p' -DDD 和 p,p' -DDE 转化,从而增大 DDT 和 HCH 的环境风险。

关键词:有机氯农药;DDT;六六六;被动采样;温室;分布

中图分类号:X592 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2012)09-1739-06

Spatial Distribution and Dynamic Change of the Organochlorine Pesticides DDTs and HCHs in Contaminated Soils Under Greenhouse Conditions

HAN Bao-lu^{1,2}, XUE Nan-dong^{2*}, LI Fa-sheng², ZHOU Ling-li², YANG Bing², GONG Dao-xin¹, YAN Yun-zhong²

(1. Department of Environment and Recourses, Hunan Agricultural University, Changsha 410128, China; 2. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: The spatial distribution and the dynamic change of the organochlorine pesticides (OCPs) including DDTs and Hexachlorocyclohexanes (HCHs) in greenhouse were studied by laboratory simulation method. Passive air samplers based on polyurethane foam (PUF) was used in the study. Results showed that the total concentration of OCPs decreased during the whole period of two months in plastic greenhouse soils, and that the concentration of HCHs and DDTs attained peak values with mean of $29.05 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ and $78.90 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, respectively, in air at the period of 10~20 d and decreased after 20 d and tend to balance gradually in air of plastic greenhouse. As for the concentrations of DDTs and HCHs in soils, an apparent difference of distribution among different soil layers was observed. After the test of 60 d, the concentrations of HCHs had a more decrease in the layer of 0~2 cm ($9.4 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$) than those of 6~8 cm ($12.11 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$), while the concentrations of DDTs decreased along with the soil depths and the concentrations in the layer of 0~2 cm were significantly lower than those in the other layers of 2~4 cm, 4~6 cm and 6~8 cm. This was partly interpreted by HCHs having a higher volatility than DDTs. The oblivious variation of composition of HCH isomers and DDT degradation products was observed in the different period. The results implied that there was an apparent trend of the activation of aging OCPs and the promotion of air-soil exchange process promoted in soils, therefore, the environmental risk of OCPs in closed conditions should be deserved more attention on plant growth and human health.

Keywords: organochlorine pesticides (OCPs); DDT; HCH; passive air sampler; greenhouse; distribution

收稿日期:2012-02-23

基金项目:国家环保公益性行业科研重大项目(201109017-2);国家高技术研究发展计划(863 计划)(2012AA06A304)

作者简介:韩宝禄(1984—),男,内蒙古包头人,硕士研究生,主要从事土壤中有机污染物环境过程研究。

* 通信作者:薛南冬 E-mail:ndxue@yahoo.com.cn.

有机氯农药(Organochlorine pesticides,OCPs)DDT 和六六六(Hexachlorocyclohexane,HCH)曾作为一类广谱、高效的人工合成杀虫剂,在世界范围内曾被大量使用。中国从 20 世纪 50 年代至 1983 年,共生产 490 万 t HCH、40 万 t DDT^[1],分别占世界生产量的 33% 和 20%^[2]。中国禁止生产和使用 DDT 和 HCH 等 OCPs 已经有 30 年,土壤中残留浓度也因此逐年下降,但由于过去巨大的使用量和 OCPs 的环境持久性,在各地的土壤中仍有一定残留水平,而且存在分布的不均匀性,在局部地区如污灌的农田、菜地和垃圾堆积厂附近土壤中残留量仍较高,在一些地区土壤中的残留量仍达 $1000 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 以上^[3]。这些 OCPs 残留主要存在于土壤矿物颗粒内部和有机质玻璃态部分或者土壤颗粒表面的高能吸附点位,与土壤固相具有较强的结合力或者被其微孔所束缚,从而使污染物长期滞留^[4]。尽管 OCPs 在土壤中残留近 30 年甚至更长时间,但在一定环境条件下可以迁移和释放,导致潜在的人类健康和生态风险^[5-9]。温室大棚是 20 世纪 80 年代初在中国迅速发展起来的一种农业设施,这种温室环境下 OCPs 污染物的迁移、释放和再污染规律尚不清楚。本文运用实验室模拟方法,应用空气被动采样技术,研究温室环境下 DDT 和 HCH 在污染土壤和棚内的空气中的分布,进一步揭示温室条件下有机氯污染物在不同环境界面迁移和形态变化的规律,并为温室大棚土壤中有机氯污染物残留健康风险评价、污染控制提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 土样采集

实验所用土壤样品来自具有多年 DDT 和 HCH 农药生产历史的重庆某化工厂搬迁污染场地,HCH 和 DDT 粉剂是该农药厂在 20 世纪 70 年代至 80 年代初期的主要产品,2009 年该工厂搬迁。2010 年 3 月,在该场地采集的多点混合污染土壤样品约 100 kg 置于不锈钢容器中,携蓝冰 2 d 内运回实验室,保存于 -4°C 冰箱中备用。

1.2 实验材料与实验设计

实验棚由改性聚苯乙烯(ABS)骨架($45 \text{ cm} \times 50 \text{ cm} \times 55 \text{ cm}$,容积约为 110 L)加盖聚氯乙烯(PVC)膜构成,约 50 kg 污染土壤使用交叉混合法(交叉混合法:在平地用木锨将土壤分为 4 份,把对角交叉的两块土壤混合。后再将土壤分为 4 份,把对角交叉的两块相混合,重复混合处理 4 次,使土壤混合均匀^[10]),混匀

的污染土壤铺于实验棚内,厚约 10 cm。污染土壤与地面间改性 ABS 板隔离,实验棚四周外用粘土压实,确保密封。棚内悬挂温度计测量棚内温度。在棚内安装被动空气采样器(PAS-H)3 组,采集空气中 DDT 和 HCH(如图 1),PAS-H 被动采样器外部框架使用 ABS 材料,采样器为上下两个部分,靠连接处旋钮固定,内径为 6.2 cm,高 5.5 cm,内装软性聚氨酯(PUF)泡沫用作为吸附介质,PUF 泡沫为圆柱体直径为 6.2 cm,高 3.5 cm,密度约为 $0.024 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 。PUF 泡沫使用前用索氏提取(Soehxlet extraction,SE)法进行清洗,清洗方法:PUF 泡沫放入 250 mL 索氏提取器内,用 200 mL 丙酮和正己烷($V:V=1:1$)混合溶剂于 70°C 恒温水浴锅上加热回流,回流每小时循环 6 次,持续萃取 24 h。清洗后真空干燥箱干燥,密封避光保存待用。

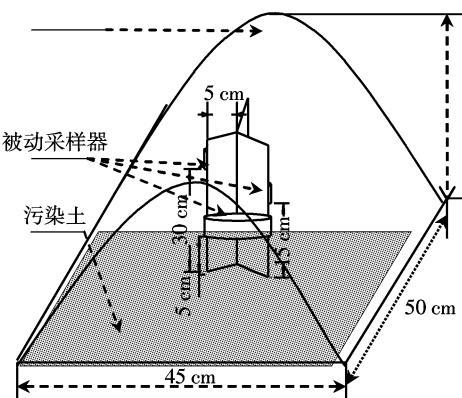


图 1 实验棚与被动采样器
Figure 1 Experimental greenhouse with passive samplers

实验于中国环境科学研究院网室中进行,在实验棚的一端开采样窗口,从 2011 年 8 月 5 日至 10 月 5 日,每隔 10 d 更换 1 次 PUF 泡沫,并采集土壤样品,每次采样后,马上用透明胶封闭好采样窗确保不漏气,并尽量缩短开窗操作时间,共计采样 6 次。取出的 PUF 泡沫,用铝箔密封后存放于棕色样品瓶中, -18°C 保存至分析。土壤样品每次约 30 g,每次取两个平行样最后一次取土样时,分 $0\sim 2$ 、 $2\sim 4$ 、 $4\sim 6$ 、 $6\sim 8 \text{ cm}$ 4 个层次取样,于棕色样品瓶中 -18°C 保存至分析。土样总有机碳(TOC)含量使用 MultiN/C3100TOC/TN 仪测定,pH 值使用 DELA 320 型 pH 计测定,土壤含水率使用 Precisa XM60 型测量仪测定。

1.3 目标污染物的提取和净化

用 SE 法对 PUF 泡沫样品 DDT 和 HCH 进行提取: 将 PUF 泡沫放入 250 mL 索氏提取器内, 用 200 mL 丙酮和正己烷($V:V=1:1$)混合溶剂于 70°C 恒温水

浴锅上加热回流,回流每小时循环6次,持续萃取24 h。萃取结束后,待提取器冷却,收集萃取溶液,萃取液于旋转蒸发器(SENCO,上海申生科技有限公司)上减压浓缩至1 mL左右,转入层析柱净化(弗罗里硅土与中性氧化铝各5 g),用高纯氮气(99.99%)吹扫浓缩至近干,正己烷定容至0.5 mL,待测。

土样中 DDT 和 HCH 采用加速溶剂萃取(Accelerated solvent extraction, ASE)法提取:土壤样品10 g与弗罗里硅土混匀(分散剂)1 g,丙酮和正己烷($V:V=1:1$)用作萃取剂,加速溶剂萃取系统(ASE 300, DIONEX,美国)提取条件:系统压力10 MPa,温度100 °C,加热时间5 min,静态时间5 min,冲洗体积60%,循环2次。收集的提取溶液于旋转蒸发器上浓缩至1 mL左右,然后进行净化和浓缩(方法同上)。用气相色谱仪-质谱检测器(GC-MS)测定样品中HCHs和DDTs。

1.4 分析测试条件

应用GC-MS仪(HP 7890 GC/5975 MSD),弹性石英毛细管柱DB-5MS(30 m \times 0.25 mm I.D \times 0.25 μm)测定样品中DDT和HCH。仪器条件:进样口无分流模式,温度250 °C;柱流量1.0 mL·min $^{-1}$;炉温70 °C保持1 min,以40 °C·min $^{-1}$ 升到180 °C保留2 min,再以2 °C·min $^{-1}$ 升到200 °C保留1 min,再以20 °C·min $^{-1}$ 升到240 °C保留2 min,最后以2 °C·min $^{-1}$ 升到250 °C保留2 min。载气为氦气,流量1 mL·min $^{-1}$,进样体积5 μL。离子化能量为70 eV。离子源(EI源)230 °C,四极杆150 °C,倍增器电压1600 V,接口温度200 °C。

经SE法清洗后的PUF泡沫做空白实验,检测结果显示空白样中无干扰。SE法对空白泡沫及滤膜添加实验回收实验,平均回收率为81%~113%,相对标准偏差值(RSD)在0.51%~3.3%之间;ASE法对空白土样(空白土样为北京潮土,经自然风干后,研磨过2 mm筛并放于棕色瓶中保存)的平均回收率为80%~102%,相对标准偏差值(RSD)在1.0%~2.5%之间。

2 结果与讨论

2.1 土壤性质及温室棚中温度条件

供试污染土壤基本性质和土壤中有机氯农药(HCH和DDT)含量如表1,混合均匀的污染土壤中HCHs和DDTs含量(平均值±标准偏差)分别为(27.11±3.41)mg·kg $^{-1}$ 和(61.37±6.78)mg·kg $^{-1}$ 。HCHs异构体α-HCH、β-HCH、γ-HCH、δ-HCH的含量分别为(9.21±1.27)、(6.87±1.25)、(5.23±0.62)、(5.78±1.24)

mg·kg $^{-1}$;DDT及降解产物p,p'-DDE、o,p'-DDT、p,p'-DDD、p,p'-DDT的含量分别为(18.49±1.26)、(21.02±3.94)、(11.44±0.32)、(10.41±2.4)mg·kg $^{-1}$ 。实验期间棚内日间温度26.3~34.7 °C,夜间温度14.3~25.6 °C。

表1 棚中土壤基本性质和有机氯农药(HCHs and DDTs)含量
(平均值±标准偏差)

Table 1 Soil basic properties and content of HCHs and DDTs in the soil

pH值	总有机碳/%	含水率/%	HCHs/mg·kg $^{-1}$	DDTs/mg·kg $^{-1}$
6.63±0.2	0.67±0.094	10.9±0.003	27.11±3.41	61.37±6.78

2.2 DDT 和 HCH 在温室棚内的分布特征

2.2.1 不同时间土壤中 DDT 和 HCH 的浓度分布

如图2所示,土壤中HCH和DDT的总量及异构体含量都随着培养时间的延长而降低,60 d时土壤中HCH和DDT的含量分别为(17.18±0.705)mg·kg $^{-1}$ 和(40.81±0.916)mg·kg $^{-1}$,相比开始时土壤中HCH和DDT含量[分别为(27.11±3.41)mg·kg $^{-1}$ 和(61.37±6.78)mg·kg $^{-1}$],分别下降了36.6%和33.5%,这可能是由于在封闭的温室环境中土壤中HCH和DDT大量挥发到空气中而导致土壤中浓度迅速降低。0~60 d内土壤中HCH异构体的含量高低顺序没有发生改变,均为α-HCH>β-HCH>δ-HCH>γ-HCH;土壤中DDT异构体含量高低顺序在0~40 d内为o,p'-DDT>p,p'-DDE>p,p'-DDD>p,p'-DDT,50~60 d时为p,p'-DDE>o,p'-DDT>p,p'-DDD>p,p'-DDT,说明o,p'-DDT可能在一定程度上发生了转化。有研究表明,DDT易转化为稳定的、毒性高的p,p'-DDD和p,p'-DDE^[11-12]。

2.2.2 土壤中 DDT 和 HCH 在不同深度的浓度分布

图3是60 d时HCH和DDT在不同深度土壤中的浓度分布。

Σ HCHs随土壤深度增加而增加,在6~8 cm土壤中 Σ HCHs为(12.11±0.83)mg·kg $^{-1}$,显著($P<0.05$)高于0~2 cm的浓度[(9.4±0.69)mg·kg $^{-1}$]。有机污染物在土壤的迁移和分布会受到多种因素的影响,如化合物本身的理化性质、土壤有机质、pH、空气流动性、气候条件等。HCHs异构体间的物理化学特性是存在差异的,α-HCH和γ-HCH相对HCHs其他两种异构体挥发性较强^[11-15],表层土壤中α-HCH和γ-HCH在向棚中空气挥发而使得表土中浓度减少,表现为0~2 cm土层中α-HCH和γ-HCH浓度显著低于其下面各土

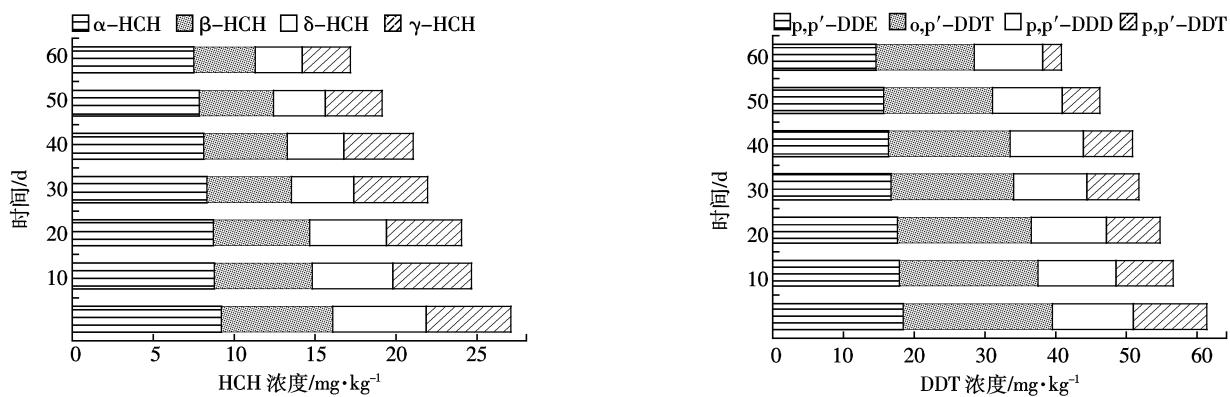


图2 棚内不同时间土壤中HCH和DDT的浓度分布
Figure 2 Concentration distribution of HCH and DDT isomers in soils with different time

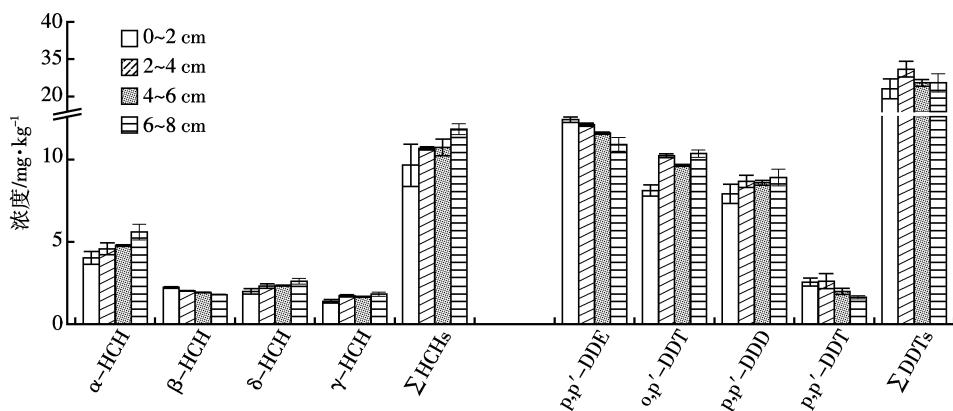


图3 HCH和DDT在棚内不同深度土壤中的浓度分布
Figure 3 Concentration distribution of HCHs and DDTs isomers in different layers of greenhouse soil

层,β-HCH和δ-HCH浓度变化较小(见图3)。

不同层次土壤中DDT的浓度大小顺序为2~4 cm>4~6 cm>6~8 cm>0~2 cm,其中0~2 cm土层的ΣDDTs[(30.58±0.36)mg·kg⁻¹]显著($P<0.05$)低于2~4 cm土层[(33.6±0.83)mg·kg⁻¹],这可能是由于处于表层0~2 cm的DDT相比下层土壤中的DDT,更容易挥发到空气中。p,p'-DDE的浓度随土壤深度增加而递减;p,p'-DDD的浓度变化趋势相反,但差异不显著($P<0.05$),这种现象可能是由于DDT在厌氧条件下通常转化为p,p'-DDD,在好氧条件下转化为p,p'-DDE^[16]造成的。

2.2.3 不同时间棚内空气中DDT和HCH的分布

不同采样时间,棚内空气中HCH和DDT的浓度变化趋势大致相同(图4),20 d时达到最大,分别为(29.05±0.80)μg·m⁻³和(78.90±13.2)μg·m⁻³。随着土壤培养时间的延长,0~20 d内空气中HCH和DDT浓度逐渐升高,20 d以后空气中污染物的浓度逐渐下降,到60 d时,空气中HCH和DDT浓度分别降至(6.08±

0.40)μg·m⁻³和(7.82±0.68)μg·m⁻³。HCH和DDT的这种变化趋势是处于温室棚密闭的环境中的结果,土壤中挥发出来的HCH和DDT只能在较小的空间内进行土气交换。污染土壤放入温室棚初期,空气中污染物浓度远小于土壤,因而土壤中的HCH和DDT大量挥发到空气中,短期内在空气中可能形成较高的浓度积累,表现为在20 d时形成一个峰值逐渐达到平衡。20 d以后,空气中DDT和HCH浓度逐渐降低可能是由于试验过程中环境温度的降低(日均温33 ℃度逐渐降至26 ℃),一方面使得土壤中HCH和DDT的挥发速率在一定程度上会变慢^[17~18],另一方面温度降低改变有机污染物的表面吸附活性,空气中的污染物一部分重新被吸附到土壤中达到新的平衡。

2.2.4 HCH异构体和DDT及降解产物组成变化

一般而言,工业生产的HCH样品中含有60%~70%的α-HCH、5%~12%的β-HCH、10%~15%的γ-HCH以及6%~10%的δ-HCH^[19]。图5为不同样品中有机氯农药异构体百分组成的变化。对比污染土壤中

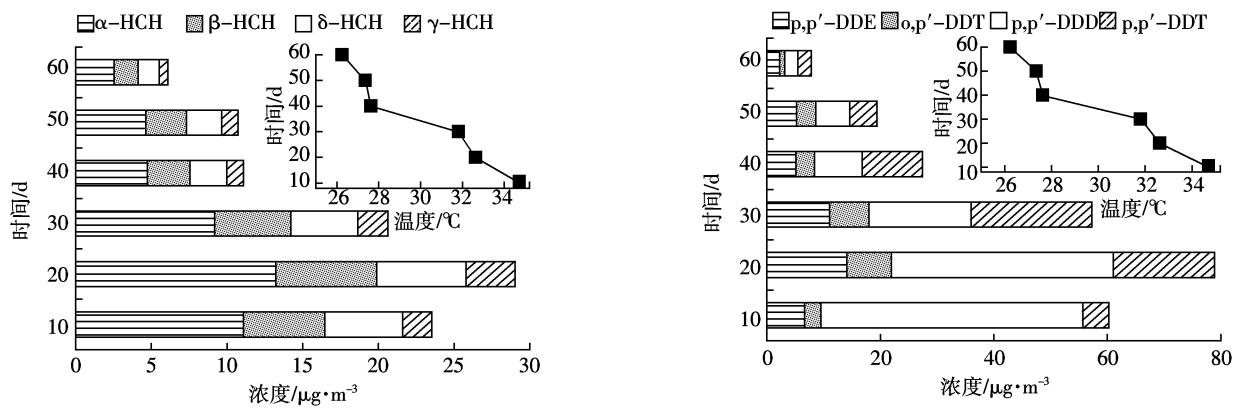
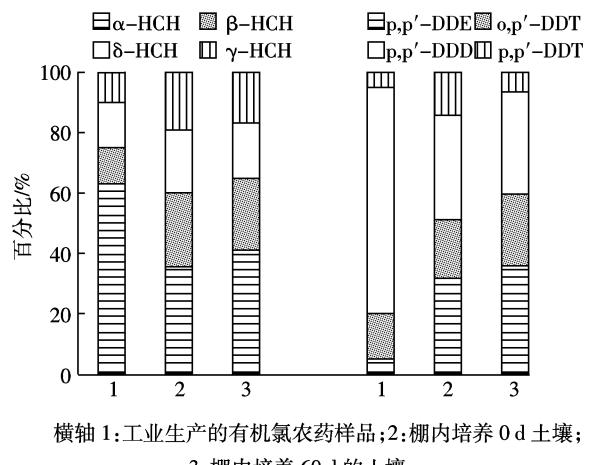


图4 不同时间棚内空气中HCH和DDT的浓度分布

Figure 4 Concentration distribution of HCH and DDT isomers in air with different times

HCHs与工业产品中HCHs各异构体的百分组成,污染土壤中HCHs的异构体组成已经发生了较大的变化,其中 α -HCH降低27.4%, β -HCH和 δ -HCH分别提高12.4%和10.2%,说明原工业样品中占优势的 α -HCH在污染土壤中已经发生了转化或者降解。有研究证实, β -HCH在环境中相对稳定,在环境中其他异构体也可能转型成 β -HCH^[20],随着时间的推移,最终在土壤中占优势的可能是 β -HCH和 δ -HCH^[21]。对温室棚中60 d的污染土壤进行分析,结果显示其异构体百分比含量与开始时污染土壤有较大差异, α -HCH的百分比含量相比开始时提高了5.4%, β -HCH、 γ -HCH和 δ -HCH的百分比含量均有不同程度的降低。这表明在温室棚内,由于温度比环境温度较高,土壤中老化的HCHs在一定程度上被激活,稳定的HCHs可能会转化为相对活跃的 α -HCH,促进HCHs在温室环境中的土-气交换过程,这可能会提高HCH的环境风险。

DDT的工业产品中包含 p,p' -DDT 75%、 o,p' -DDT 15%、 p,p' -DDE 5%,其他<5%^[22]。由此可见,最初进入土壤中的DDT占主要优势的异构体应该是 p,p' -DDT。与工业样品中各异构体的所占比例相比,污染土壤中 p,p' -DDT降低40.4%, p,p' -DDD提高14.4%, o,p' -DDT提高0.701%, p,p' -DDE提高17.6%。说明污染土壤中 p,p' -DDT主要可能转化为 p,p' -DDE,其次转化为 p,p' -DDD。与培养前相比,污染土壤在温室棚中培养60 d后, p,p' -DDD含量提高了4.31%, p,p' -DDE提高4.21%; o,p' -DDT降低了7.82%, p,p' -DDT降低了0.7%。这一结果表明温室中DDT可能同时发生了好氧降解和厌氧降解,其中厌氧降解略占优势,促进了 p,p' -DDT和 o,p' -DDT向



横轴1:工业生产的有机氯农药样品;2:棚内培养0 d土壤;
3:棚内培养60 d的土壤

图5 HCH异构体和DDT及降解产物百分组成变化

Figure 5 The different composition of organochlorine pesticides in percentage with the different samples

毒性更高的 p,p' -DDD和 p,p' -DDE转化,此结果可能是实验棚相对密封环境造成的。

3 结论

(1)DDT和HCH污染土壤在温室大棚条件60 d后,在不同土层中DDT和HCH分布存在明显差异,ΣHCHs的浓度随土层深度增加而增加,在0~2 cm土壤中ΣHCHs浓度显著低于在6~8 cm土壤中ΣHCHs浓度,ΣDDT浓度在土壤中呈现先升高后降低的趋势。

(2)在温室棚内,0~20 d内土壤中DDT和HCH大量挥发到空气中,使20 d时达到浓度峰值,而20 d以后,空气中污染物被吸附到土壤中逐渐趋向平衡。

(3)土壤中HCH异构体和DDT及降解产物的百分组成会发生变化: p,p' -DDT转化为毒性高的 p,p'

-DDD 和 p,p'-DDE; 稳定的 HCHs 转化为相对活跃的 α-HCH; 温室大棚环境促进了 DDT 和 HCH 的土-气交换过程, 可能提高 DDT 和 HCH 的环境风险。

致谢:本研究野外采样和样品分析工作得到中国环境科学研究院房吉敦博士和王世杰博士的大力协助, 在此表示感谢。

参考文献:

- [1] Li J, Gan Z, Qi S, et al. Concentrations, enantiomeric compositions, and sources of HCH, DDT and chlordane in soils from the Pearl River Delta, South China[J]. *Science of the Total Environment*, 2006, 372(1):215–224.
- [2] Fu J, Mai B, Sheng G, et al. Persistent organic pollutants in environment of the Pearl River Delta, China: An overview[J]. *Chemosphere*, 2003, 52(9):1411–1422.
- [3] Zhang G, Qi SH, Parker A, et al. Distribution of organochlorine pesticides and polycyclic aromatic hydrocarbons in soils from the Pearl River Delta, South China[C] //Abstract on the 3rd Asia-Pacific Symposium on Environmental Geochemistry. Guangzhou, China: Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Science, 2001:93.
- [4] 薛南冬, 李发生, 等. 持久性有机污染物(POPs)污染场地风险控制与环境修复[M]. 北京: 科学出版社, 2011:25–34.
XUE Nan-dong, LI Fa-sheng, et al. Persistent organic pollutants (POPs) contaminated sites, risk control and environmental remediation [M]. Beijing: Science Press, 2011:25–34.
- [5] Bosma TNP, Middeldorp PJM, Schraa G, et al. Mass transfer limitation of biotransformation: Quantifying bioavailability[J]. *Environmental Science and Technology*, 1997, 31:248–252.
- [6] Cornelissen G, van der Pal M, van Noort PCM, et al Competitive effects on the slow desorption of organic compounds from sediments[J]. *Chemosphere*, 1999, 39(11):1971–1981.
- [7] Kottler B D, Alexander M. Relationship of properties of polycyclic aromatic hydrocarbons to sequestration in soil[J]. *Environ Pollut*, 2001, 113: 293–298.
- [8] Park J H, Feng Y, Cho S Y, et al. Sorbed atrazine shifts into nondesorbable sites of soil organic matter during aging[J]. *Water Research*, 2004, 38:3881–3892.
- [9] 李晓军, 李培军, 蔺昕, 等. 土壤中有机污染物的老化概念探讨[J]. 应用生态学报, 2007, 18(8):1891–1896.
LI Xiao-jun, LI Pei-jun, LIN Xin, et al. About the conception of "aging" for organic contaminants in soil[J]. *Chinese Journal of Applied Ecology*, 2007, 18(8):1891–1896.
- [10] 毛瑞, 赵锦惠. 湖泊底泥肥料化利用的研究 [J]. 湖北大学学报, 2007, 29(2):207–210.
- MAO Rui, ZHAO Jin-hui. Utilization of lake sediment compost [J]. *Journal of Hubei University*, 2007, 29(2):207–210.
- [11] Kalantzi O I, Alcock R, Johnston P A, et al. The global distribution of PCBs and organochlorine pesticides in butter [J]. *Environmental Science and Technology*, 2001, 35(6):1013–1018.
- [12] Hitch R K, Dayb H R. Unusual persistence of DDT in some Western USA soils[J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 1992, 48(2):259–264.
- [13] 庞绪贵, 张帆, 王红晋, 等. 鲁西南地区土壤中有机氯农药的残留及其分布特征[J]. 地质通报, 2009, 28(5):667–670.
PANG Xu-gui, ZHANG Fan, WANG Hong-jin, et al. Residual of organochlorine pesticides and distribution features of soils in the southwest area of Shandong Province, China [J]. *Geological Bulletin of China*, 2009, 28(5):667–670.
- [14] Ramesh A, Tanabe S, Murase H, et al. Distribution and behaviour of persistent organochlorine insecticides in paddy soil and sediments in the tropical environment: A case study in South India[J]. *Environmental Pollution*, 1991, 74(4):293–307.
- [15] Manz M, Wenzel K.-D, Dietze U, et al. Persistent organic pollutants in agricultural soils of central Germany[J]. *Science of the Total Environment*, 2001, 277(1–3):187–198.
- [16] Hong H, Xu L, Zhang L, et al. Environmental fate and chemistry of organic pollutants in the sediment of Xiamen and Victoria Harbors [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1995, 31:229–236.
- [17] 杨清书, 麦碧娴, 傅家谋, 等. 珠江干流河口水体有机氯农药的时空分布特征[J]. 环境科学, 2004, 25:150–156.
YANG Qing-shu, MAI Bi-xian, FU Jia-mo, et al. Spatial and temporal distribution of organochlorine pesticides (OCPs) in surface water from the Pearl River Artery Estuary[J]. *Environmental Science*, 2004, 25: 150–156.
- [18] Gerard C, Paul C M. Temperature dependence of slow adsorption and desorption kinetics of organic compounds in sediments[J]. *Environmental Science and Technology*, 1997, 31(2):454–460.
- [19] Walker K. Factors influencing the distribution of lindane and other hexachloroclohexanes in the environment[J]. *Environmental Science and Technology*, 1999, 33:4373–4378.
- [20] Yang R Q, Lv AH, Shi JB, et al. The levels and distribution of organochlorine pesticides (OCPs) in sediments from the Haihe River, China[J]. *Chemosphere*, 2005, 61(3):347–354.
- [21] 安琼, 董元华, 王辉, 等. 南京地区土壤中有机氯农药残留及其分布特征[J]. 环境科学学报, 2005, 25(4):470–474.
AN Qiong, DONG Yuan-hua, WANG Hui, et al. Residues and distribution character of organochlorine pesticides in soils in Nanjing area [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2005, 25(4):470–474.
- [22] Heberer T, Dünnbier U. DDT metabolite bis(chlorophenyl) acetic acid: The neglected environmental contaminant[J]. *Environmental Science and Technology*, 1999, 33(14):2346–2351.