

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2020101603

张佩萱, 高丽荣, 宋世杰, 等. 环境中短链和中链氯化石蜡的来源、污染特征及环境行为研究进展[J]. 环境化学 2021, 40(2): 371-383.
ZHANG Peixuan, GAO Lirong, SONG Shijie, et al. Chlorinated paraffins in the environment: A review on their sources, levels and fate [J].
Environmental Chemistry 2021, 40(2): 371-383.

环境中短链和中链氯化石蜡的来源、污染特征及 环境行为研究进展*

张佩萱^{1,2} 高丽荣² 宋世杰¹ 乔林² 徐驰² 黄帝²
王爽² 蒋思静^{2,3} 郑明辉^{2,**}

(1. 西安科技大学地质与环境学院, 西安, 710054; 2. 中国科学院生态环境研究中心, 环境化学与生态毒理学国家重点实验室, 北京, 100085; 3. 江汉大学环境与健康研究院, 武汉, 430056)

摘要 短链氯化石蜡(SCCPs)是持久性有机污染物,已于2017年5月被正式列入《关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约》附件A的受控名单.中链氯化石蜡(MCCPs)具有相似的性质.由于氯化石蜡(CPs)大量生产以及广泛应用,其在环境介质中的含量处于较高水平.本文综述了SCCPs和MCCPs的生产和排放,以及2016年以后文献报道的SCCPs和MCCPs在不同环境介质中的研究进展,包括在大气、水体、土壤和沉积物中的赋存、分布特征,探讨了SCCPs和MCCPs的环境行为,同时指出环境中CPs的溯源、界面过程及区域传输是未来的主要研究方向.

关键词 短链氯化石蜡,中链氯化石蜡,大气,土壤,沉积物.

Chlorinated paraffins in the environment: A review on their sources, levels and fate

ZHANG Peixuan^{1,2} GAO Lirong² SONG Shijie¹ QIAO Lin² XU Chi²
HUANG Di² WANG Shuang² JIANG Sijing^{2,3} ZHENG Minghui^{2,**}

(1. College of Geology and Environment, Xi'an University of Science and Technology, Xi'an, 710054, China;
2. State Key Laboratory of Environmental Chemistry and Ecotoxicology, Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing, 100085, China; 3. Institute of Environment and Health, Jiangnan University, Wuhan, 430056, China)

Abstract: Short-chain chlorinated paraffins (SCCPs) are persistent organic pollutants. In May 2017, they were added to Annex A to the Stockholm Convention. The properties of medium-chain chlorinated paraffins (MCCPs) are similar to those of SCCPs. Because they are produced in large quantities industrially and widely applied, high concentrations of SCCPs and MCCPs have been found in different environmental matrices. This paper reviews the production and emission inventories of SCCPs and MCCPs. Studies on the occurrences, distributions and fates of SCCPs and MCCPs in various environmental matrices, including ambient air, water, soil, and sediments, conducted since 2016 are also summarized. The environmental behaviors of SCCPs and MCCPs are discussed. Future studies should focus on source identification, environmental processes and regional transport of CPs.

Keywords: short-chain chlorinated paraffins, medium-chain chlorinated paraffins, ambient air, soil, sediment.

2020年10月16日收稿(Received: October 16, 2020).

* 国家重点研发计划(2019YFC1804705, 2018YFC1801601)资助.

Supported by the National Key R&D Program of China (2019YFC1804705, 2018YFC1801601).

** 通讯联系人 Corresponding author, E-mail: zhengmh@rcees.ac.cn

氯化石蜡(chlorinated paraffins, CPs),也称多氯代正构烷烃(polychlorinated *n*-alkanes, PCAs),是由链长和氯化程度(质量40%—70%)不同的烷烃组成的工业混合产品^[1]。根据碳链长度不同,氯化石蜡可以分为3种:短链氯化石蜡(short-chain chlorinated paraffins, SCCPs)含有10—13个碳原子,中链氯化石蜡(medium-chain chlorinated paraffins, MCCPs)含有14—17个碳原子和长链氯化石蜡(long-chain chlorinated paraffins, LCCPs)含有18—30个碳原子^[2]。CPs由于具有化学稳定性、阻燃性、黏性、低挥发性和生产成本低的特点,可以作为良好的阻燃剂、增塑剂、冷却剂、润滑剂和密封剂等^[3]。SCCPs因为具有持久性、半挥发性、毒性、生物蓄积性,能够长距离迁移,于2017年5月被正式列入到《关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约》的附件A受控名单,而MCCPs性质与SCCPs相似,近年来也受到广泛关注^[4]。目前美国、加拿大和欧盟等国家陆续出台法令对SCCPs的生产和使用进行一定程度的限制^[5-6]。

我国是CPs生产大国,年产量大约100万吨。我国CPs产品不按照烷烃碳链长短定义,而是按照含氯的百分含量定义^[7],针对SCCPs生产和使用并未加以限制。随着CPs大规模的生产和广泛的应用,SCCPs和MCCPs会在其生产、存储、运输、使用等过程中释放到环境,在很多环境介质中(如空气、水、土壤、沉积物)存在含量较高。近年来,国内外对CPs的关注增多,针对CPs的文献报道也逐年增加,自2010年起近千篇文献报道了氯化石蜡的相关研究。van Mourik等^[5]综述了2010—2015年CPs的生产、法规及其在环境中的污染特征、归趋以及人体暴露。

本文主要综述了2016年以后国内外相关文献报道的SCCPs和MCCPs在大气、土壤、沉积物等环境介质中的赋存水平、同类物分布特征、可能来源及其环境行为等方面的最新信息,以期对环境中的SCCPs和MCCPs污染控制以及健康风险评估提供依据。

1 CPs的主要来源与释放(The main sources and emissions of CPs)

氯化石蜡的生产是为了平衡氯碱企业产生的氯气,20世纪50年代末我国开始生产CPs,自此之后CPs工业品的总产量连续几年不断增长^[8]。到2015年,我国CPs年产量已达100万吨,是世界上最大的CPs生产国和主要出口国^[9-10]。目前全球SCCPs的产量估计至少为每年165000吨,其生产和使用量高于其他POPs,主要来自于我国和印度^[11-12]。

目前尚未发现有关CPs的天然来源,环境中的来源可能来自于CPs的生产、储存、运输、产品制造及使用过程中的释放^[13]。欧盟委员会风险评价技术导则及英国风险评估草案介绍了不同情景下CPs的排放。持久性有机污染物审查委员会(Persistent organic pollutants review committee, POPRC)的风险简介指出“生产过程中的泄露、设备冲洗以及雨水径流可能是CPs进入水体的途径。金属加工/金属切削液中的CPs也可以通过桶处理、搬运和使用废液而释放到水体环境中”^[14]。欧盟技术指导文件指出,CPs生产过程中排放到空气中的量极少,排放到水体的量为0.3%,而在对金属加工液进行任何现场处理之前,会有0.005% CPs排放到空气,0.25%排放到水体^[15]。热塑性塑料在聚合物处理阶段分别有0.1%和0.05% CPs排放到空气和水体,热固性树脂在加工处理阶段排放到空气中的量极少,排放到水体中的量为0.05%^[15]。此外,在橡胶制品的使用期内,SCCPs和MCCPs的挥发率假定为0.05%^[16]。估计工业和家庭使用的含有MCCPs和LCCPs涂料排放到空气中的量极少,排放到水体的量为0.1%^[16]。根据英国风险评估草案,室外用于油漆和密封剂的MCCPs释放到水中的系数假定为0.15%^[16]。

含有CPs的产品主要为聚氯乙烯塑料(PVC)、橡胶、电缆及金属加工液,据现有的这些产品的生产数据估计SCCPs的释放量,1935年到2015年期间,在美国、欧盟、中国、日本等研究地区,共有1650—21900 t、1560—2930 t和9460—11500 t的SCCPs被释放到空气、水体和土壤中,空气、水体和土壤中的SCCPs主要源于聚氯乙烯产品、金属加工业中的密封剂或黏合剂、以及塑料和橡胶产品的生产和使用过程^[11]。Zhang等^[17]依据我国现有的SCCPs生产量和消费量,估算SCCPs的排放清单,2014年我国排放的SCCPs总量为3083.88 t,释放到空气中的总量为894.81 t,释放到水中的总量为2189.07 t。2010年至2014年,中国SCCPs排放总量大幅增长,大气排放从2011年的434.67 t增加到2014年的894.81 t。与此同时,水排在2014年达到2189.07 t,相当于大气排放的245%。从不同排放区域来看,SCCPs排放主要集中在东部较发达地区。

2 多环境介质中 SCCPs、MCCPs 的污染现状 (Contamination of SCCPs and MCCPs in different environmental matrices)

2.1 大气和灰尘

大气通常被认为是大多数 SCCPs 及 MCCPs 的主要传输介质^[18], 且是人体暴露的重要途径。目前, 约有近百篇文献报道了大气中 SCCPs 及 MCCPs 的赋存, 对比发现其在不同国家和地区的污染特征有一定差异。表 1 列出了近年来大气中 SCCPs 及 MCCPs 的含量。结合近年来可获得的数据得出: 我国大气中 SCCPs 的浓度范围约为 13.5—1442 ng·m⁻³^[19-21]。Zhu 等^[19]分别测定了 2010 年和 2016 年大连城市大气中 SCCPs 的含量, 得出 2010 年大气中 SCCPs 的浓度为 15.12—66.44 ng·m⁻³, 平均值为 30.26 ng·m⁻³; 2016 年大气中 SCCPs 的浓度为 65.30—91.00 ng·m⁻³, 平均值为 78.15 ng·m⁻³。Wang 等^[20]研究了山东某 CPs 生产厂区内外大气中 SCCPs 含量, 结果表明厂区内大气中 SCCPs 浓度(129—1442 ng·m⁻³)显著高于厂区外(91—333 ng·m⁻³)。Li 等^[21]报道了 2008 年我国大气中 SCCPs 的浓度为 13.5—517 ng·m⁻³。我国大气中 CPs 水平偏高, 这可能与我国大规模 CPs 的生产和使用有关。Chaemfa 等^[12]研究了印度和巴基斯坦大气中 SCCPs 和 MCCPs 水平, 结果表明印度大气中 SCCPs 浓度范围为 ND—47.4 ng·m⁻³, MCCPs 浓度范围为 ND—38.2 ng·m⁻³, 巴基斯坦大气中 SCCPs 浓度范围为 0.37—14.2 ng·m⁻³, MCCPs 浓度范围为 0.29—9.45 ng·m⁻³。Li 等^[21]2008 年分别在日本和韩国采集了大气样品, 其中日本大气中 SCCPs 含量为 0.28—14.2 ng·m⁻³, 韩国大气中 SCCPs 含量为 0.60—8.96 ng·m⁻³。Diefenbacher 等^[22]研究表明瑞士苏黎世空气中的 SCCPs 浓度范围为 1.8—17 ng·m⁻³(2011 年春季)和 1.1—42 ng·m⁻³(2013 年春季), 中位数分别为 4.3 ng·m⁻³和 2.7 ng·m⁻³。Gillett 等^[23]报道称澳大利亚墨尔本 2013—2014 年的环境大气中, 夏季 SCCPs 浓度为 28.4 ng·m⁻³, 冬季为 1.8 ng·m⁻³。Ma 等^[24]在南极长城站利用 PUF 被动采样器和玻璃纤维过滤器采集大气样品, 分析结果表明该地区大气中 SCCPs 和 MCCPs 的浓度分别为 9.6—20.8 pg·m⁻³和 3.7—5.2 pg·m⁻³。Borgen 等^[25]于 1999 年在挪威斯瓦尔巴德群岛齐伯林山采集的北极空气样本中也检测到 SCCPs, 浓度在 9.0—57 pg·m⁻³。因 CPs 具有远距离大气传输的能力, 故其在北极和南极地区大气中均有检出。

温度和颗粒物粒径的大小可能会影响大气中 SCCPs 和 MCCPs 的分布。Wang 等^[26]利用被动采样器分季节采集了珠江三角洲地区的大气样品, 研究发现夏季大气样品中 SCCPs 的含量(2.01—106 ng·m⁻³, 平均值为 29.2 ng·m⁻³)要高于冬季(0.95—26.5 ng·m⁻³, 平均值为 6.18 ng·m⁻³)。Wang 等^[18]利用大流量采样器采集了北京地区夏季及冬季的大气样品, 研究结果表明, 北京夏季大气中 SCCPs 的浓度水平(112—332 ng·m⁻³, 平均值为 200 ng·m⁻³)远高于冬季(1.90—33.0 ng·m⁻³, 平均值为 7.70 ng·m⁻³)。这与珠三角地区大气中 CPs 的季节分布规律一致, 造成这种现象的原因可能是由于夏天温度较高, 导致 SCCPs 更容易向大气中挥发。同时 Wang 等^[18]对北京地区大气中 CPs 不同季节气-固相分布特征进行了研究, 结果表明, 北京地区冬季样品中, 大气颗粒物上的 SCCPs 浓度占总浓度的 67%, 而夏季样品中颗粒物上 SCCPs 浓度仅占总浓度的 6%, 反映出 SCCPs 在夏季倾向于分配到气相, 而在冬季则倾向于与颗粒相结合, 表现出与其他半挥发性有机化合物类似的温度依赖性气-固分配特征。Zhuo 等^[27]研究了珠江三角洲地区不同粒径下的大气颗粒相中 SCCPs 和 MCCPs 分布特征, 结果发现, SCCPs 和 MCCPs 在 TSP、PM₁₀、PM_{2.5} 中浓度范围分别为 6.8—150 ng·m⁻³(均值: 21.2 ng·m⁻³)、6.7—95.7 ng·m⁻³(均值: 22 ng·m⁻³)、6.2—200 ng·m⁻³(均值: 21.2 ng·m⁻³)。黄慧婷等^[8]研究了北京地区室外大气 PM₁₀/PM_{2.5}/PM_{1.0} 中 CPs 的浓度, 结果表明 CPs 主要分布在粒径小于 2.5 μm 的颗粒物上, 这与珠江三角洲地区大气颗粒相中 CPs 的分布规律类似。

除了对室外空气的关注, 近年来针对室内环境中 CPs 的研究逐渐增多。而且根据迄今所报道的研究, 将室内空气中 CPs 的浓度与室外空气中 CPs 的浓度进行比较时, 室内 CPs 水平通常高于室外, 表明室内排放源目前广泛存在^[28]。国际上 Barber 等利用 PUF 被动采样器^[29]在英国兰开斯特采集了 4 个室内空气样品, 其中 SCCPs 和 MCCPs 的浓度范围分别是 220—17000 ng·sample⁻¹和 450—19000 ng·sample⁻¹, SCCPs 和 MCCPs 的浓度和该地区 PAHs 浓度处在同一个数量级水平。此外, Fridén 等^[30]在瑞典首都斯德哥尔摩收集了 44 个室内空气样品, 研究表明室内空气样品中 SCCPs 和 MCCPs 的总浓度范围是 <5—210 ng·m⁻³, 风险评估结果表明成年人和幼儿 SCCPs 和 MCCPs 总浓度的室内暴露量

约为 $1 \mu\text{g}\cdot\text{d}^{-1}$. Sakhi 等^[31] 2012 年对挪威家庭和学校室内空气 SCCPs 含量的研究表明, 家庭中 SCCPs 水平是学校的 3 倍(分别为 $128 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $43 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$). 国内 Gao 等^[32] 于 2016 年在北京室内采集了 39 个空气样品, 均检测到 SCCPs, 范围为 $9.77\text{--}966 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ (均值: $80.1 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$), 而 MCCPs 在 39 个样本中的 23 个样本中检测到, 范围从 $< \text{LOD}$ 到 $613 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 造成这种现象的原因之一可能是由于蒸气压较低时, MCCPs 更具亲脂性, 不易挥发到大气中.

表 1 不同地区大气中 SCCPs 及 MCCPs 的含量

Table 1 Levels of SCCPs and MCCPs in the atmosphere of different regions

样品类型 Sample type	浓度范围/ ($\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$) Concentrations range	地区或国家 Region or Country	文献 References
城市(2010) (2016)	SCCPs: 15.12—66.44 SCCPs: 65.30—91.00	大连, 中国	Zhu et al. 2017 ^[19]
CPs 生产厂(内) CPs 生产厂(外)	SCCPs: 129—1442 SCCPs: 91—333	山东, 中国	Wang et al. 2018 ^[20]
大气	SCCPs: 13.5—517	中国	Li et al. 2012 ^[21]
大气	SCCPs: ND—47.4 MCCPs: ND—38.2	印度	Chaemfa et al. 2014 ^[12]
大气	SCCPs: 0.37—14.2 MCCPs: 0.29—9.45	巴基斯坦	Chaemfa et al. 2014 ^[12]
大气	SCCPs: 0.28—14.2	日本	Li et al. 2012 ^[21]
大气	SCCPs: 0.60—8.96	韩国	Li et al. 2012 ^[21]
城市(2011 春) (2013 春)	SCCPs: 1.8—17 SCCPs: 1.1—42	苏黎世, 瑞士	Diefenbacher et al. 2015 ^[22]
城市(夏) (冬)	SCCPs: 28.4 SCCPs: 1.8	墨尔本, 澳大利亚	Gillett et al. 2017 ^[23]
长城站	SCCPs: $9.6\text{--}20.8 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$ MCCPs: $3.7\text{--}5.2 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$	南极	Ma et al. 2014 ^[24]
斯瓦尔巴德群岛齐伯林山	SCCPs: $9.0\text{--}57 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$	北极	Borgen et al. 2000 ^[25]
珠江三角洲(夏) (冬)	SCCPs: 2.01—106 SCCPs: 0.95—26.5	珠江三角洲, 中国	Wang et al. 2013 ^[26]
北京地区(夏) (冬)	SCCPs: 112—332 SCCPs: 1.90—33.0	北京, 中国	Wang et al. 2012 ^[18]
城市(室内)	SCCPs: $220\text{--}17000 \text{ ng}\cdot\text{sample}^{-1}$ MCCPs: $450\text{--}19000 \text{ ng}\cdot\text{sample}^{-1}$	兰开斯特, 英国	Barber et al. 2005 ^[29]
城市(室内)	SCCPs+MCCPs: <5—210	斯德哥尔摩, 瑞典	Fridén et al. 2011 ^[30]
家庭(室内) 学校(室内)	SCCPs: 128 SCCPs: 43	挪威	Sakhi et al. 2019 ^[31]
城市(室内)	SCCPs: 9.77—966 MCCPs: < LOD—613	北京, 中国	Gao et al. 2018 ^[32]

为了考察室内空气中 CPs 对健康的影响, 近年来有文献关注了室内不同粒径颗粒物上 SCCPs 和 MCCPs 的分布特征. Zhou 等^[28] 对 SCCPs 和 MCCPs 在广州室内空气颗粒相中粒径分布的研究表明, SCCPs 和 MCCPs 在直径为 $0.56\text{--}1.0 \mu\text{m}$ 的细颗粒中呈单峰分布, 链长或氯化程度较高的同系物相对丰度随着粒径由粗向细的转变而逐渐增加. 蒸气压可能是控制 SCCPs 和 MCCPs 粒度分布的关键因素. Zhuo 等^[27] 对珠江三角洲地区室内空气中 TSP/PM₁₀/PM_{2.5} 结合 SCCPs 和 MCCPs 的研究表明, SCCPs 和 MCCPs 主要分布在 PM_{2.5} 中, 占室内颗粒物上 SCCPs 和 MCCPs 总量的 89.1%. Huang 等^[33] 研究了北京室内空气颗粒物(PM₁₀、PM_{2.5}、PM_{1.0}) 中 SCCPs 和 MCCPs 含量, 结果表明 SCCPs 和 MCCPs 主要分布在粒径小于 $2.5 \mu\text{m}$ 的颗粒物上. 这与广州及珠江三角洲地区室内空气颗粒物中 CPs 的分布规律大致相同. 这些细颗粒物在大气中的停留时间较长, 同时也更容易被吸入人体, 对人体健康产生影响.

灰尘是室内环境中许多有机污染物的汇. 不同室内场所灰尘中 CPs 含量不同. Shang 等^[34] 分析了 2007 年至 2010 年间在加拿大收集的 48 个家庭室内灰尘样品, 得出 SCCPs 和 MCCPs 的浓度范围分别为 $4.0\text{--}57\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (中位值: $6.2\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) 和 $5.9\text{--}901\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (中位值: $19\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$). Kersten 和 Reich^[35] 报道的德国汉堡室内灰尘中 SCCPs 的浓度为 $<10\text{--}340\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (中位值: $26\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$), MCCPs 的浓度为 $<10\text{--}400\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (中位值: $36\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$). Hilger 等^[3] 对德国另一城市——巴伐利亚的室内灰尘研究表明, 收集的 11 个私人家庭灰尘样品中, 有 9 个检测到了 SCCPs, 其浓度范围为 $4\text{--}27\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, 而从一座公共建筑中采集的两个灰尘样品中 SCCPs 浓度高达 $2050\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. He 等^[36] 分析了澳大利亚不同场所室内灰尘中 CPs 含量, 得出 MCCPs 是主要组分, 在所有的样品中都有检测到, 同时交通工具中 ΣCPs ($C_{10}\text{--}C_{21}$) 的中位值浓度 $290\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 高于办公室和住宅的中位值浓度 (分别为 $160\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, $57\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$). 这可能是由于交通工具内聚合物和塑料制品导致的. 国内对不同场所室内灰尘中 CPs 的含量也有相关报道. Chen 等^[37] 在中国南方某大型电子废物回收工业园及附近收集了 96 个灰尘样品, 所有灰尘样品中均检测到 SCCPs 和 MCCPs, 且二者浓度均表现为电子废物回收车间 (SCCPs: $246\text{--}19900\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, MCCPs: $874\text{--}48000\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) > 当地居民住宅 (工业园区 2 km 以内, SCCPs: $34.5\text{--}2030\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, MCCPs: $79.2\text{--}6510\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) > 外部街道表面 (SCCPs: $32.4\text{--}982\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, MCCPs: $55.1\text{--}1570\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) > 对照家庭 (距工业园区 30—40 km, SCCPs: $27.8\text{--}173\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, MCCPs: $74.0\text{--}539\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$). Gao 等^[32] 分析了 115 个分别来自北京住宅、工作场所、宿舍的室内灰尘样品, 结果得出, SCCPs 的浓度排名为住宅 ($201\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) > 宿舍 ($113\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) > 工作场所 ($60\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$), MCCPs 的浓度排名为宿舍 ($84\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) > 住宅 ($82\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) > 工作场所 ($60\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$), 总体而言, 住宅中 CPs 水平较高, 可能是装修中一些塑料制品以及油漆中含有 CPs^[38]. Liu 等^[39] 研究了 68 个来自哈尔滨的室内灰尘样品后发现, 来自商店、住宅、宿舍、办公室和实验室的室内灰尘样品中 SCCPs 的平均浓度分别为 $58.3, 49.0, 55.5, 56.3, 55.0\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. 不同的室内环境之间没有观察到显著差异, 与上述 Gao 的研究结果不同. Shi 等^[40] 测定了中国某商场室内灰尘中 (SCCPs 和 MCCPs) 的含量和分布情况, 结果表明, 某建材市场的粉尘中 SCCPs 和 MCCPs 的浓度分别为 $6.0\text{--}361.4\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $5.0\text{--}285.9\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$; 在某一新开业的购物中心的中央空调过滤器灰尘中发现了更高浓度的 SCCPs 和 MCCPs, 分别为 $114.7\text{--}707.0\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, MCCPs 浓度为 $89.0\text{--}1082.9\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. 不同场所的建筑具有不同的室内装修风格, 而室内装修所用装饰材料以及室内所从事与 CPs 有关的工业活动影响了灰尘中 CPs 的含量.

2.2 水

CPs 是低水溶性疏水化合物, 其在水中浓度通常低于检测限, 所以 CPs 在水中的赋存数据有限, 除非接近特定的点源. 污水处理厂被认为是许多持久性有机污染物的主要污染源. 北京某接收 20% 工业废水的污水厂, 其进水水体中 SCCPs 含量为 $4.2\text{--}4.7\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均值 $4.45\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 经污水处理后出水中 SCCPs 含量显著下降至 $364\text{--}416\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均值 $390\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[41]. 而北京另一处理城市污水的污水厂, 其原始进水中 SCCPs 浓度均值为 $184\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 经三级处理后出水中 SCCPs 浓度均值为 $27.0\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[42]. Iino 等^[43] 研究了日本污水厂进水和出水中 SCCPs 的含量分别为 $220\text{--}356\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ (均值: $279\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$), $16.0\text{--}35.2\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ (均值: $25.5\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$); 西班牙巴塞罗那收集的污水处理厂的进水中的 SCCPs 的平均浓度为 $500\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[44]. 为了更好地了解城市污水处理过程中 SCCPs 含量的变化, 确定进水水体中 SCCPs 的平均水平为 $184\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 经过一级处理、二级处理、二沉池处理以及三级处理后其浓度依次降为 $154, 52.0, 37.0, 27.0\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 处理效率依次达到 16%、72%、80%、85%. 二级处理过程包括厌氧-缺氧-好氧工艺, 在该污水厂去除水相中 SCCPs 发挥了重要的作用^[42]. 尽管污水处理过程可有效去除 CPs, 但是出水中残余的 CPs 仍可能是周围接纳水体中 CPs 的主要来源. Zeng 等^[41] 研究发现北京最大污水处理厂 (高碑店污水处理厂) 出水接纳水体 (高碑店湖水) 中 SCCPs 的平均含量为 $169\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ (范围: $162\text{--}176\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$) 略低于该污水厂出水 (范围: $364\text{--}416\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$), 其单体同系物的分布与污水厂出水口中相似, 均为以 C_{11} 、 C_{12} 和 Cl_7 、 Cl_8 为主要的碳链和氯原子同族体. Iino 等^[43] 也得到类似的结论, 其研究发现日本河水中 SCCPs 的浓度 ($7.60\text{--}31.1\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均值: $17.0\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$) 和同系物分布均与污水处理厂出水相似 (SCCPs 的浓度: $16.0\text{--}35.2\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均值: $25.5\ \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$).

另外, 对于环境水体 (河流、湖泊、海水) 中 SCCPs 和 MCCPs 也有研究报道. Coelhan 等^[45] 的研究表

明 欧洲中部某国河水中 SCCPs 低于检出限 ($<100 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) ,同样法国 Berre lagoon 湖中 SCCPs 也低于检出限 ($<50 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$)^[46] . 日本 3 条入海河流的 SCCPs 含量为 $7.6\text{—}31 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[43] ,而安大略湖中 CPs 则处于更低的水平 (SCCPs: $1.2 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,MCCPs: $0.9 \text{ pg}\cdot\text{L}^{-1}$)^[47] . 在我国 ,Wang 等^[48] 分析了上海黄浦江及其主要支流水样中 SCCPs 和 MCCPs 的赋存情况 ,其中 SCCPs 的浓度范围为 $15.0\text{—}1640 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ (中位值: $278 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) ,MCCPs 的浓度范围为 $40.3\text{—}3870 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ (中位值: $939 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) . 上海黄浦江中 SCCPs 的水平高于北京的河水 (SCCPs 浓度范围为 $77\text{—}652 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均值: $457 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) 和湖水^[49] (SCCPs 浓度范围 $<\text{LOD}\text{—}377 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均值: $124 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) ,但是和珠江口海水中 SCCPs 水平相当^[50] (SCCPs 浓度范围 $180\text{—}460 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均值: $270 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1} \pm 66 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) . 于国龙等^[51] 对普兰店湾海水中 CPs 的研究表明 ,海水中 SCCPs 水平极高 ($494\text{—}1490 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均值: $953 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) ,且其同系物分布与北京污水厂附近接纳水体高碑店湖相似而非与辽东半岛海域中 CPs 同系物^[52] 相似 . Sun 等^[53] 研究的广东某一天然淡水池塘中 SCCPs 含量则处于较低的水平 ($61 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1} \pm 5.5 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) .

2.3 污泥

污水处理厂活性污泥中 CPs 的浓度水平能够指示当地居民生活环境中 CPs 的暴露水平 . 目前关于我国污水厂污泥中 CPs 的赋存数据相对有限 . Zeng 等^[41] 收集了我国 13 个省/直辖市的 25 个城市的污水处理厂的 52 个活性污泥样品 ,SCCPs 的含量在 $0.80\text{—}52.7 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 的范围内变化 ,平均值和中位数分别为 $10.7 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $8.80 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$,其含量远高于其他有机污染物 ,比如 PBDEs、PCBs 和 OCPs 等 . 北京某市政污水处理厂处理过程中 ,原污水(均值 $21.8 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) 和初沉池污泥(均值 $19.8 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) 中 SCCPs 含量最高 ,厌氧阶段、缺氧阶段、好氧阶段和二沉池中污泥分别为 9.80 、 9.60 、 9.50 、 $2.00 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. 初沉污泥与二沉池的剩余污泥混合脱水后其中 SCCPs 含量较高 ,平均值达到 $15.6 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. 质量流分析表明脱水污泥中的 SCCPs 约占初始质量负荷的 72.6% ,废水中只发现 0.8% ,其余 26.6% 通过生物降解而消失^[10] . Wang 等^[54] 研究表明在脱水污泥中 ,SCCPs、MCCPs 和 LCCPs 的初始质量负荷量分别为 50.67% 、 25.64% 、 55.92% . 以上二者的研究表明脱水污泥是 SCCPs 的储存库 . 污泥中的 SCCPs 主要由 C_{10-12} 和 Cl_{7-8} 组成 ,在中国不同城市甚至在整个处理过程的不同阶段都没有显著差异 . 与相应的水相相比 ,固相中含有较高比例的重同系物(较长的碳链和更多的氯原子) 归因于它们更易于与颗粒结合 ,并降低了降解敏感性^[55] .

国外关于污泥中 CPs 赋存情况的报道也相对较少 . Brandsma 等^[56] 采集了澳大利亚 15 家污水处理厂的污泥样品 ,分析结果表明澳大利亚的污泥以 MCCPs 为主 ,其浓度在 $542\text{—}3645 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以干重计) 之间 ,SCCPs 浓度与 LCCPs 浓度相对较低 ,分别为 $<57\text{—}1421 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $116\text{—}960 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以干重计) . Nicholls 等^[57] 研究表明英格兰和威尔士污泥中 SCCPs 和 MCCPs 的浓度范围为 $1.80\text{—}93.0 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. Stevens 等^[58] 调查了英国 14 家污水处理厂 ,结果表明污泥中 SCCPs 和 MCCPs 浓度分别为 $7.00\text{—}200 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $30\text{—}9700 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. Bogdal 等^[59] 采集了瑞士苏黎世 7 个污泥样品 ,分析结果表明其中 SCCPs 含量范围为 $135\text{—}584 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,MCCPs 含量范围为 $1070\text{—}8960 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以干重计) .

2.4 土壤

不同地区土壤中 SCCPs 和 MCCPs 的含量如表 2 所示 . 目前 ,针对 CPs 加工厂、电子垃圾拆解地、污水灌溉区及化工园区等土壤环境中 CPs 含量的研究相对较多 . 大连 CPs 生产工厂内 SCCPs 和 MCCPs 的总含量为 $3093.2\text{—}3870.4 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,工厂外 SCCPs 和 MCCPs 的总含量为 $63.8\text{—}1884.4 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,与生产厂区的距离影响该地区土壤中 CPs 的空间分布^[60] . 台州电子垃圾拆解区土壤中 SCCPs 和 MCCPs 浓度分别为 $68.5\text{—}2.20\times 10^5 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 干重和 $507\text{—}4.40\times 10^6 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 干重 ,可能是由于电器制品的绝缘电缆及绝缘板中所含的 CPs 在拆解过程中随废液废渣进入周围土壤^[61] . 污水灌溉的表层土壤中 SCCPs 浓度 ($305\text{—}1450 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,平均值 $702 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$) 高于污水与地下水混合灌溉的土壤中 SCCPs 浓度 ($160\text{—}292 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,平均值 $229 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$) 高于地下水灌溉的土壤中 SCCPs 浓度 ($200 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$) ,表明污水灌溉对周围土壤中 CPs 水平有影响^[62] . 洋口化工园区土壤中 SCCPs 和 MCCPs 的浓度分别为 $37.5\text{—}995.7 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 干重及 $15.1\text{—}739.6 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 干重 ,CPs 的空间分布可能与工业加工、人类活动和周边环境有关^[63] . 珠江三角洲地区土壤中 SCCPs 和 MCCPs 含量分别为 $1.9\text{—}236 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 和 $2.1\text{—}1530 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,与工业区的距离是影响该地区土壤中 CPs 空间分布的重要因素^[26] . 工业活动较多的地区 ,可能含 CPs 的塑料、橡胶、电缆等产品使用

量较大,其在使用过程中不可避免地释放 CPs 进入周围环境,从而引起附近土壤中 CPs 含量的升高。

表 2 不同地区土壤中 SCCPs 和 MCCPs 含量

Table 2 Concentrations of SCCPs and MCCPs in soil of different regions

样品类型 Sample type	浓度范围/(ng·g ⁻¹) Concentrations range	地区或国家 Region or Country	文献 References
CPs 生产工厂(内)	SCCPs+MCCPs: 3093.2—3870.4	大连, 中国	Xu et al. 2016 ^[60]
CPs 生产工厂(外)	SCCPs+MCCPs: 63.8—1884.4	大连, 中国	Xu et al. 2016 ^[60]
电子垃圾拆解区	SCCPs: 68.5—2.20×10 ⁵ MCCPs: 507—4.40×10 ⁶	台州, 中国	Xu et al. 2019 ^[61]
污水灌溉区	SCCPs: 305—1450	北京, 中国	Zeng et al. 2011 ^[62]
洋口化工园区	SCCPs: 37.5—995.7 MCCPs: 15.1—739.6	江苏, 中国	Huang et al. 2020 ^[63]
珠江三角洲	SCCPs: 1.9—236 MCCPs: 2.1—1530	珠江三角洲, 中国	Wang et al. 2013 ^[26]
远郊	SCCPs: 24±72	英国, 挪威	Halse et al. 2017 ^[64]
不同土地利用类型	SCCPs: 3.0—35	瑞士	Bogdal et al. 2017 ^[65]
农田	SCCPs: 39—1609 MCCPs: 127—1969	31 个省, 中国	Aamir et al. 2019 ^[66]
不同土地利用类型	SCCPs: ND—615 MCCPs: 1.95—188	上海, 中国	Wang et al. 2014 ^[67]
郊区	SCCPs: 7.00—541 C ₉ —CPs: 8—109	广州, 中国	Chen et al. 2013 ^[9]
远郊	SCCPs: 79—948 MCCPs: 20—1206	云南, 中国	Wang et al. 2020 ^[68]
北极	SCCPs: 7.1±0.7	北极	Li et al. 2017 ^[69]
崇明岛	SCCPs: 0.42—420	崇明岛, 中国	Wang et al. 2013 ^[54]

不同地区土壤中 CPs 的污染特征不同,关于非污染地区土壤中 CPs 的研究相对较少.2008 年从英国和挪威收集的土壤样品中检测到了 SCCPs,其浓度为 24 ng·g⁻¹±72 ng·g⁻¹(土壤有机质)^[64].从 1994 年到 2014 年,瑞士土壤中 SCCPs 的浓度由 35 ng·g⁻¹下降至 3.0 ng·g⁻¹^[65],这体现了欧洲 CPs 产量的减少和日益严格的监管带来的积极作用^[6].我国是氯化石蜡生产大国,因此我国土壤中 CPs 含量可能会较之更高.Aamir 等^[66]对我国 31 个省份农田土壤中的 CPs 进行研究,结果显示 SCCPs 和 MCCPs 的含量分别为 39—1609 ng·g⁻¹干重和 127—1969 ng·g⁻¹干重,CPs 加工厂较多的中部及东部地区,其农田土壤中 CPs 含量也较高.上海不同功能区土壤中的 SCCPs 浓度范围为 ND—615 ng·g⁻¹,MCCPs 浓度范围为 1.95—188 ng·g⁻¹,并且绿化带、公园草地以及校园草地土壤中 SCCPs 浓度要高于路边的土壤,这可能是由于活性污泥的利用和废水灌溉导致^[67].广州郊区不同用途的土壤中 SCCPs 的均值分别为森林 59.3 ng·g⁻¹、稻田 113 ng·g⁻¹、蔬菜种植地 104 ng·g⁻¹^[9].此外,由于 SCCPs 具有潜在远距离大气迁移性,导致其在背景区土壤中也有检出^[9].Wang 等^[68]对无明显工业污染源地区——云南地区土壤中 CPs 含量的研究表明 C₉—CPs、SCCPs、MCCPs 的含量分别为 8—109 ng·g⁻¹(平均值 39 ng·g⁻¹)、79—948 ng·g⁻¹(平均值 348 ng·g⁻¹)、20—1206 ng·g⁻¹(平均值 229 ng·g⁻¹),表明人类活动和大气沉积对偏远和高海拔地区 CPs 的浓度和空间分布也有影响.2011 年至 2012 年期间,在北极地区的土壤样本中检测到 SCCPs 的浓度为(7.1±0.7) ng·g⁻¹干重^[69].崇明岛地区(远离城市和工业地带)的土壤中 SCCPs 的含量为 0.42—420 ng·g⁻¹,均值为 62.3 ng·g⁻¹.土气交换和远距离大气传输可能是这些背景区土壤中 SCCPs 分布的重要途径^[54].CPs 除了在土壤中累积、向大气再扩散,还会被土壤中的生物吸收.Li 等^[70]研究发现随着碳链长度和氯化程度的增加,SCCPs 同类物在南瓜和大豆中的生物积累量增加.

2.5 沉积物

自 2010 年以来,对沉积物中 CPs 水平的研究大多来自我国,且主要集中于湖泊、河流、海洋以及柱芯等.Zeng 等^[41]研究发现,在主要接收污水厂废水的湖水沉积物中 SCCPs 的浓度范围为 1.1—8.7 μg·g⁻¹(平均值 5.8 μg·g⁻¹),污水厂上游及两个较远下游处沉积物中 SCCPs 含量较低,其浓度范围

分别为 $1.1 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 及 $3.3\text{—}3.9 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. Chen 等^[71] 研究发现, 某电子废物回收区的池塘沉积物中 SCCPs 含量是珠江三角洲地区沉积物中最高 ($320\text{—}6600 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 平均值 $2800 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$). 大堰河流经下游电子废物回收区, 导致下游河水沉积物中 SCCPs 水平 ($910\text{—}1100 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$) 高于上游 ($600\text{—}690 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)^[71]. 以上研究表明, 湖泊、河流沉积物中 CPs 的含量受当地排放源影响较大. 为了了解 CPs 从陆地到海洋的迁移机制和归宿, 许多研究分析了我国近海岸和远海岸沉积物中 SCCPs 的含量. 近海岸沉积物中 SCCPs 的含量如下: 渤海近岸沉积物 ($97.6\text{—}1760 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)^[52]、辽河河口沉积物^[72] ($64.9\text{—}1680 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)、辽东湾沉积物^[52] ($65.0\text{—}541 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)、莱州湾沉积物^[73] ($1.00\text{—}1200 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)、大辽河入海口沉积物^[74] ($64.9\text{—}407 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)、沿海口岸沉积物^[51] ($242\text{—}1450 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)、大连湾沉积物^[51] ($227\text{—}13800 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 平均值: $4040 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)、锦州湾沉积物^[51] ($\text{ND}\text{—}1680 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 平均值: $667 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$). 远海岸沉积物中 SCCPs 含量相对较低, 如渤海和黄海沉积物^[75] ($14.5\text{—}85.2 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)、东海沉积物^[55] ($5.80\text{—}64.8 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$). 由此可以看出, 远海岸沉积物中 SCCPs 含量比近海岸沉积物约低 1—2 个数量级, 这表明一小部分 CPs 被传输到远岸海域. 同时与河流沉积物和近海岸沉积物相比, 远海沉积物中 C_{10} 丰度的急剧增加, 进一步证明了 SCCPs 由于其高挥发性和溶解度而更易经历远程运输.

对柱芯沉积物的调查, 可以探索 CPs 的时间趋势和潜在的降解. Zeng 等^[41] 对北京高碑店湖中的柱芯沉积物的研究表明, 最大的 SCCPs 浓度在柱芯沉积物的上部检测得到, 这与我国近年来 CPs 产量和使用量的快速增长相吻合. Chen 等^[71] 对东江柱芯沉积物的研究也得到了类似的规律, 进一步说明 CPs 的沉积记录与我国 CPs 的历史应用和来源密切相关. 尤其 MCCPs/SCCPs 的比例从柱芯底层到中间层呈下降趋势, 而中间层到上层急剧上升, 反映了近年来珠江三角洲地区从 SCCPs 到 MCCPs 的使用变化. 而且随着深度的增加, 两地柱芯沉积物中低氯代的同系物含量增加, 表明沉积后有脱氯现象的发生. Zeng 等^[55] 对东海柱芯沉积物的研究表明, 柱芯 SCCPs 浓度从中部到上部急剧上升的趋势, 与我国近年来商业 CPs 产量和使用量的快速增长相吻合, 这与上述的研究一致. 然而, 从中部到底部的 SCCPs 水平总体上呈上升趋势, 可能是由于相应时期较大的沉积通量, 这可能意味着 SCCPs 在海洋厌氧沉积物中至少可以持续几十年. 同时随着深度的增加, CPs 同系物的组成不同, 表明不同时期所使用的 CPs 产品不同. 而且随着深度的增加, 氯含量呈现出下降趋势, 表明沉积后发生了脱氯. 这与此前的研究结果一致. Zeng 还采集了黄海地区的柱芯沉积物, 研究结果说明其 SCCPs 的浓度相对较低 ($11.6\text{—}196 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$), 但其自 1950 年代初以来明显上升, 这与中国 CP 生产和使用的历史相对应. 然而其 CPs 同系物分布并未随着深度的增加而出现大的变化, 这意味着黄海沉积区 SCCPs 的源剖面稳定, SCCPs 的生物降解作用可忽略不计, 这与上述的发现不一致^[75]. CPs 的沉积记录与其历史应用和来源密切相关, 同时同系物的垂直分布反映了厌氧环境下 CPs 的转变.

2.6 生物

研究表明, 生物样品中也检测到 CPs. Xu 等^[60] 研究发现, 我国大连一家氯化石蜡加工工厂内针叶植物叶片中 SCCPs 浓度范围为 $1280.9\text{—}2196.9 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以干重计, 下同), MCCPs 浓度范围为 $1231.5\text{—}4388.4 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$. 厂外针叶植物叶片中 SCCPs 浓度范围为 $218.7\text{—}1441.2 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, MCCPs 浓度范围为 $337.8\text{—}3586.5 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$. 该地区针叶植物叶片中 SCCPs 及 MCCPs 含量高于欧洲阿尔卑斯地区云杉针叶样品中 CPs (包含 SCCPs、MCCPs 和 LCCPs) 的含量 $26\text{—}450 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ ^[76], 与北京地区树皮和松针样品中 SCCPs 含量为 $980\text{—}1090 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 相当^[77], 但低于上海地区大多数马尾松针叶样品中 SCCPs、MCCPs 的含量 (SCCPs 为 $\text{ND}\text{—}13600 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, MCCPs 为 $12.4\text{—}33500 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$)^[78]. Ma 等^[52] 研究了我国华北辽东湾浮游动物、无脊椎动物及鱼生物样品中 SCCPs 浓度水平, 结果表明生物样品中 SCCPs 浓度范围为 $2.3\text{—}76.5 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 平均值为 $20.1 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以脂重计). Huang 等^[79] 研究发现, 辽东湾地区鱼体中 SCCPs 浓度范围为 $376.3\text{—}8956 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, MCCPs 浓度范围为 $22.4\text{—}5097 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以脂重计). Zhou 等^[80] 分析了淀山湖 14 种野生生物样品中 SCCPs 的含量, 结果表明 SCCPs 的浓度范围为 $10\text{—}1300 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (以脂重计, 下同), 其中鲤鱼中 SCCPs 浓度最高 (含量为 $40\text{—}1300 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, 平均值为 $280 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$), 其次是蜗牛 (含量为 $150\text{—}340 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, 平均值为 $250 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) 和鲫鱼 (含量为 $35\text{—}650 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, 平均值为 $220 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$). Du 等^[81] 从青藏高原的 5 个高山湖泊和拉沙河收集了 51 种鱼类样品, 研究结果表明所有鱼类样品中均检测到 SCCPs, 其浓度范围为 $3.9\text{—}107 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$, 平均值为 $26.6 \text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以干重计). Labadie 等^[82] 研究发现法

国罗纳河流域采集的鱼类中 SCCPs 浓度为 63—1492 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$, MCCPs 浓度为 99—11300 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以脂重计). Vorkamp 等^[83] 研究表明格陵兰岛野生生物中 SCCPs 平均浓度为 0.22—2.2 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (以湿重计). Yuan 等^[84] 研究发现斯堪的纳维亚地区的鱼类、海鸟、海洋哺乳动物、陆生鸟类和哺乳动物中均存在 SCCPs、MCCPs 和 LCCPs, 其浓度范围分别为 26—1500 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 、30—1600 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 、6.0—1200 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以脂重计). Casa 等^[85] 在南极洲的座头鲸身上也发现了 SCCPs, 其浓度为 46 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (以脂重计), 远低于此前报道的其他水生生物. 这些数据表明, 即使来自极地地区的生物群也暴露在 SCCPs 污染之下.

2.7 氯化石蜡的环境行为

CPs 的物理化学性质决定了其环境行为. 环境中的 CPs 具有持久性, 化学性质稳定, 在常温条件下, 其水解和可见光或紫外光照下的光解速度都非常缓慢^[86-87], 其在水体中的加氢降解和氧化分解也非常缓慢, 可忽略不计^[88-89]. 水体中的 CPs 会发生氧化和水解, 但氧化或水解反应可能需在催化条件下发生^[90]. Koh 等^[87] 研究发现丙酮水溶液中的 SCCPs 在紫外光照下迅速光解, SCCPs 的半衰期从原来的 12.8 h 左右缩短至 0.7—5.2 h. Atkinson 等^[91] 推出大气中 CPs 的理论半衰期和碳链长度负相关, 大气中 SCCPs、MCCPs 和 LCCPs 的理论半衰期分别为 1.2—1.8 d、0.85—1.1 d、0.5—0.8 d. 好氧沉积物中, 56% 氯化度的 C_{12} —SCCPs 半衰期为 8.4—15.6 d, 氯化度为 69% 时, 半衰期增至 16.4—33.6 d^[14]. 氯化度为 35% 和 69% 的 C_{16} —MCCPs 半衰期相对较长, 分别为 12 d 和 58 d^[92]. CPs 的碳链长度和氯化度升高, 其蒸汽压和亨利常数降低, SCCPs、MCCPs 和 LCCPs 的蒸汽压分别为 2.8×10^{-7} — 6.6×10^{-2} 、 1.7×10^{-8} — $2.5\cdot 6.3\times 10^{-15}$ — 7.9×10^{-7} Pa. SCCPs、MCCPs 和 LCCPs 的亨利常数分别为 0.34—14.7、0.01—51.3、0.003—54.8 $\text{Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{mol}^{-1}$, 表明 CPs 可随大气实现远距离迁移^[2, 92-93]. CPs 的水溶性较低, SCCPs、MCCPs 和 LCCPs 溶解度分别为 0.49—1260、0.029—14.0、 1.6×10^{-6} —0.086 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ^[89, 94], 其辛醇—水分配系数 ($\lg K_{\text{ow}}$) 分别为 4.48—8.69、6.83—8.96、8.70—12.7, CPs 的 $\lg K_{\text{ow}}$ 一般大于 5, 表明 CPs 具有亲脂性、生物富集能力及在食物链中累积放大的特性.

SCCPs 具有很强的环境持久性. Thompson 等^[95] 发现淡水中 65% 氯化度的 $^{14}\text{C}_{10-13}$ —SCCPs 同类物半衰期为 1630 d, 在海洋沉积物中其半衰期为 450 d. 有较长历史的湖泊沉积芯也检测到了 CPs, 在厌氧条件下, 湖泊沉积芯中 SCCPs 的半衰期大于 50 年^[55]. Fisk 等估计在生物体中 CPs 的半衰期为 7—53 d^[92]. 随碳数和氯含量增加, CPs 的生物降解越慢^[2].

SCCPs 具有长距离迁移能力. 在南极、北极的大气^[24-25] 以及云南偏远地区^[68] 的土壤中均发现了 SCCPs. 由于这些地区并没有明显的 SCCPs 排放源, 说明 SCCPs 发生了远距离的环境迁移. 但目前还没有研究探讨洋流对 SCCPs 向极地地区扩散的贡献.

SCCPs 具有生物富集能力. Huang 等^[79] 研究了辽东湾地区不同种鱼类对 SCCPs 的生物累积作用, 结果表明不同种类鱼体中 ΣSCCPs 浓度值的 $\lg\text{BAFs}$ 在 4.69—6.05 范围内, 平均值为 5.24, 表明 SCCPs 在所有鱼体内发生生物蓄积. Fisk 等^[96-98] 研究了成年虹鳟鱼对不同碳链长度 CPs 的累积作用, 发现所有 CPs 吸收效率都较高, 能很快在鱼体内累积, 生物放大因子达到 2.1. 同时, Fisk 等^[92] 研究了寡毛纲蠕虫对沉积物中 CPs 的生物累积, 发现寡毛纲蠕虫对 SCCPs 的 BAFs 大于 1. 另外, Houde 等^[47] 对北美安大略湖和密歇根湖无脊椎动物—草食鱼—鲈鱼食物网的研究发现, SCCPs 的营养级放大系数 (TMF) 在 0.41—2.4 之间. 这些结果证明 SCCPs 在食物链中具有营养级放大的可能性.

3 结论及展望 (Conclusions and perspectives)

由于 CPs 的大量生产和普遍使用已造成广泛的环境污染, 高风险的 SCCPs 和 MCCPs 普遍存在于各种环境介质中, 包括空气、水、土壤和沉积物等, 它们在环境中具有持久性、远距离迁移性、生物富集性等特性, 给生态环境和人类健康带来潜在风险. 目前研究多局限于大气、土壤、沉积物等单一介质中 SCCPs 和 MCCPs 基础数据观测, 对于 SCCPs 和 MCCPs 在不同环境介质中的传输、迁移、降解、界面分配和分布等过程研究较少. 利用逸度模型等研究 SCCPs 和 MCCPs 在大气、土壤和水体等的界面过程, 揭示其传输机理, 进一步开展 SCCPs 和 MCCPs 在环境中的迁移、转化及环境归宿的研究, 可为评估 SCCPs 和 MCCPs 的生态环境风险奠定基础. 针对大气、土壤、水体及沉积物中的 SCCPs 和 MCCPs 进行溯源, 识别其来自于含 CPs 工业产品的使用或者一些生成排放源, 开展大范围的 SCCPs 和 MCCPs 系统监测, 获得不同类

型排放源对区域污染的贡献 探索排放贡献时空差异的过程和机制,揭示 SCCPs 和 MCCPs 在不同区域的大气迁移等传输过程,为源头控制 SCCPs 和 MCCPs 环境污染提供科学依据. 中国是 CPs 的生产和使用大国,需要有更多的中国科学家结合国情提出科学的解决 SCCPs 和 MCCPs 的环境污染之道.

参考文献(References)

- [1] JACOB D B, EI-SAYED A T, FIEDLER H, et al. The handbook of environment chemistry [M]. Berlin: Springer-Verlag Press, 2010.
- [2] TOMY G T, FISK A T, WESTMORE J B, et al. Environmental chemistry and toxicology of polychlorinated n-alkanes [J]. Reviews of Environmental Contamination and Toxicology, 1998, 158: 53-128.
- [3] HILGER B, FROMME H, VöLKEL W, et al. Occurrence of chlorinated paraffins in house dust samples from Bavaria, Germany [J]. Environmental Pollution, 2013, 175: 16-21.
- [4] 王坤然. 氯化石蜡的检测技术及其环境行为研究 [D]. 北京: 中国科学院大学, 2020.
WANG K R. Detection technology and environmental behavior of chlorinated paraffins [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences 2020 (in Chinese).
- [5] VAN MOURIK L M, GAUS C, LEONARDS P E G, et al. Chlorinated paraffins in the environment: A review on their production, fate, levels and trends between 2010 and 2015 [J]. Chemosphere, 2016, 155: 415-428.
- [6] WEI G L, LIANG X L, LI D Q, et al. Occurrence, fate and ecological risk of chlorinated paraffins in Asia: A review [J]. Environment International, 2016, 92/93: 373-387.
- [7] 徐淳, 徐建华, 张剑波. 中国短链氯化石蜡排放清单和预测 [J]. 北京大学学报(自然科学版), 2014, 50(2): 369-378.
XU C, XU J H, ZHANG J B. Emission inventory prediction of short chain chlorinated paraffins (SCCPs) in China [J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Pekinensis, 2014, 50(2): 369-378 (in Chinese).
- [8] 黄慧婷. 短链和中链氯化石蜡的人体外暴露水平研究 [D]. 北京: 中国科学院大学, 2017.
HUANG H T. Human exposure to short-and medium-chain chlorinated paraffins in China [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences 2017 (in Chinese).
- [9] CHEN L, HUANG Y, HAN S, et al. Sample pretreatment optimization for the analysis of short chain chlorinated paraffins in soil with gas chromatography-electron capture negative ion-mass spectrometry [J]. Journal of Chromatography A, 2013, 1274: 36-43.
- [10] ZENG L, WANG T, RUAN T, et al. Levels and distribution patterns of short chain chlorinated paraffins in sewage sludge of wastewater treatment plants in china [J]. Environmental Pollution, 2012, 160: 88-94.
- [11] GLUGE J, WANG Z, BOGDAL C, et al. Global production, use, and emission volumes of short-chain chlorinated paraffins—a minimum scenario [J]. Science of the Total Environment, 2016, 573: 1132-1146.
- [12] CHAEMFA C, XU Y, LI J, et al. Screening of atmospheric short- and medium-chain chlorinated paraffins in India and Pakistan using polyurethane foam based passive air sampler [J]. Environmental Science & Technology, 2014, 48(9): 4799-4808.
- [13] 王亚韡, 王莹, 江桂斌. 短链氯化石蜡的分析方法、污染现状与毒性效应 [J]. 化学进展, 2017, 29(9): 919-929.
WANG Y W, WANG Y, JINAG G B. Analytical methods, environmental pollutions and toxicity of short chain chlorinated paraffins [J]. Progress in Chemistry, 2017, 29(9): 919-929 (in Chinese).
- [14] POPRC. Short-chained chlorinated paraffins revised draft risk profile. Stockholm convention on persistent organic pollutants. [EB/OL]. [2020-8-18]. [Http://www.Pops.Int/theconvention/conferenceoftheparties/meetings/cop7/tabid/4251/mctl/viewdetails/eventmodid/870/eventid/543/xmid/13075/default.aspx](http://www.Pops.Int/theconvention/conferenceoftheparties/meetings/cop7/tabid/4251/mctl/viewdetails/eventmodid/870/eventid/543/xmid/13075/default.aspx).
- [15] EU. Technical guidance document on risk assessment, part II [EB/OL]. [2020-8-18]. [Https://www.Ecdc.Europa.Eu/en/publications-data/technical-guidance-risk-assessment-guidelines-diseases-transmitted-aircraft](https://www.Ecdc.Europa.Eu/en/publications-data/technical-guidance-risk-assessment-guidelines-diseases-transmitted-aircraft)
- [16] EU. Risk assessment of alkanes, C₁₄-C₁₇, chloro [EB/OL]. [2020-8-18]. [Https://echa.Europa.Eu/documents/10162/d317126f-75bc-4ba6-a8be-7ecaa2a96656](https://echa.Europa.Eu/documents/10162/d317126f-75bc-4ba6-a8be-7ecaa2a96656)
- [17] ZHANG B Y, ZHAO B, XU C, et al. Emission inventory and provincial distribution of short-chain chlorinated paraffins in China [J]. Science of the Total Environment, 2017, 581: 582-588.
- [18] WANG T, HAN S, YUAN B, et al. Summer-winter concentrations and gas-particle partitioning of short chain chlorinated paraffins in the atmosphere of an urban setting [J]. Environmental Pollution 2012, 171: 38-45.
- [19] ZHU X, BAI H, GAO Y, et al. Concentrations and inhalation risk assessment of short-chain polychlorinated paraffins in the urban air of Dalian, China [J]. Environmental Science and Pollution Research, 2017, 24(26): 21203-21212.
- [20] WANG P, ZHAO N, CUI Y, et al. Short-chain chlorinated paraffin (SCCP) pollution from a CP production plant in china: Dispersion, congener patterns and health risk assessment [J]. Chemosphere, 2018, 211: 456-464.
- [21] LI Q, LI J, WANG Y. Atmospheric short-chain chlorinated paraffins in China, Japan, and South Korea [J]. Environmental Science & Technology, 2012, 46(21): 11948-11954.
- [22] DIEFENBACHER P S, BOGDAL C, GERECKE A C, et al. Short-chain chlorinated paraffins in Zurich, Switzerland-atmospheric concentrations and emissions [J]. Environmental Science & Technology, 2015, 49(16): 9778-9786.
- [23] GILLET R W, GALBALLY I E, KEYWOOD M D, et al. Atmospheric short-chain-chlorinated paraffins in Melbourne, Australia—first extensive Southern Hemisphere observations [J]. Environmental Chemistry, 2017, 14(2): 106-114.

- [24] MA X D, ZHANG H J, ZHOU H Q, et al. Occurrence and gas/particle partitioning of short- and medium-chain chlorinated paraffins in the atmosphere of Fildes Peninsula of Antarctica [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, 90: 10-15.
- [25] BORGES A R, SCHLABACH M, GUNDERSEN H. Polychlorinated alkanes in arctic air [J]. *Organohalogen Compd*, 2000, 47: 272-274.
- [26] WANG Y, LI J, CHENG Z, et al. Short- and medium-chain chlorinated paraffins in air and soil of subtropical terrestrial environment in the Pearl River Delta, South China: Distribution, composition, atmospheric deposition fluxes, and environmental fate [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(6): 2679-2687.
- [27] ZHUO M H, MA S T, LI G Y, et al. Chlorinated paraffins in the indoor and outdoor atmospheric particles from the Pearl River Delta: Characteristics, sources, and human exposure risks [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 650: 1041-1049.
- [28] ZHOU W, SHEN M, LAM J C W, et al. Size-dependent distribution and inhalation exposure characteristics of particle-bound chlorinated paraffins in indoor air in Guangzhou, China [J]. *Environment International*, 2018, 121: 675-682.
- [29] BARBER J L, SWEETMAN A J, THOMAS G O, et al. Spatial and temporal variability in air concentrations of short-chain (C_{10} - C_{13}) and medium-chain (C_{14} - C_{17}) chlorinated *n*-alkanes measured in the UK atmosphere [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, 39(12): 4407-4415.
- [30] FRIDEN U E, MCLACHLAN M S, BERGER U. Chlorinated paraffins in indoor air and dust: Concentrations, congener patterns, and human exposure [J]. *Environment International*, 2011, 37(7): 1169-1174.
- [31] SAKHI A K, CEQUIER E, BECHER R, et al. Concentrations of selected chemicals in indoor air from Norwegian homes and schools [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 674: 1-8.
- [32] GAO W, CAO D, WANG Y, et al. External exposure to short- and medium-chain chlorinated paraffins for the general population in Beijing, China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52: 32-39.
- [33] HUANG H T, GAO L R, XIA D, et al. Characterization of short- and medium-chain chlorinated paraffins in outdoor/indoor PM_{10} / $PM_{2.5}$ / $PM_{1.0}$ in Beijing, China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 225: 674-680.
- [34] SHANG H, FAN X, KUBWABO C, et al. Short-chain and medium-chain chlorinated paraffins in Canadian house dust and NIST SRM 2585 [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2019, 26(8): 7453-7462.
- [35] KERSTEN W, REICH T. Non-volatile organic substances in Hamburg indoor dust [J]. *Gefahrstoffe Reinhaltung der Luft*, 2003, 63(3): 85-91.
- [36] HE C, BRANDSMA S H, JIANG H, et al. Chlorinated paraffins in indoor dust from Australia: Levels, congener patterns and preliminary assessment of human exposure [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 682: 318-323.
- [37] CHEN H, LAM J C W, ZHU M, et al. Combined effects of dust and dietary exposure of occupational workers and local residents to short- and medium-chain chlorinated paraffins in a mega e-waste recycling industrial park in South China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52(20): 11510-11519.
- [38] CAO Z, XU F, 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.
- [39] LIU L H, MA W L, LIU L Y, et al. Occurrence, sources and human exposure assessment of SCCPs in indoor dust of Northeast China [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 225: 232-243.
- [40] SHI L, GAO Y, ZHANG H, et al. Concentrations of short- and medium-chain chlorinated paraffins in indoor dusts from malls in China: Implications for human exposure [J]. *Chemosphere*, 2017, 172: 103-110.
- [41] ZENG L, WANG T, WANG P, et al. Distribution and trophic transfer of short-chain chlorinated paraffins in an aquatic ecosystem receiving effluents from a sewage treatment plant [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(13): 5529-5535.
- [42] ZENG L X, LI H J, WANG T, et al. Behavior, fate, and mass loading of short chain chlorinated paraffins in an advanced municipal sewage treatment plant [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47: 732-740.
- [43] IINO F, TAKASUGA T, SENTHILKUMAR K, et al. Risk assessment of short-chain chlorinated paraffins in Japan based on the first market basket study and species sensitivity distributions [J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, 39(3): 859-866.
- [44] RUBIROLA A, SANTOS F, BOLEDA M, et al. Routine method for the analysis of short-chain chlorinated paraffins in surface water and wastewater [J]. *Clean-Soil Air Water*, 2018, 46: 1600151.
- [45] COELHAN M. Levels of chlorinated paraffins in water [J]. *Clean-Soil Air Water*, 2010, 38(5/6): 452-456.
- [46] GANDOLFI F, MALLERET L, SERGENT M, et al. Parameters optimization using experimental design for headspace solid phase micro-extraction analysis of short-chain chlorinated paraffins in waters under the European water framework directive [J]. *Journal of Chromatography A*, 2015, 1406: 59-67.
- [47] HOUDE M, MUIR D C G, TOMY G T, et al. Bioaccumulation and trophic magnification of short- and medium-chain chlorinated paraffins in food webs from Lake Ontario and Lake Michigan [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(10): 3893-3899.
- [48] WANG X, XU S, WANG X, et al. Occurrence, homologue patterns and source apportionment of short- and medium-chain chlorinated paraffins in suburban soils of Shanghai, China [J]. *Chemosphere*, 2017, 180: 302-311.
- [49] 王迎军, 王亚韡, 江桂斌. 固相萃取法测定水中短链氯化石蜡 [J]. *分析化学*, 2018, 46(7): 1102-1108.
WANG Y J, WANG Y W, JIANG G B. Solid-phase extraction for analysis of short-chain chlorinated paraffins in water samples [J]. *Chinese Journal of Analytical Chemistry*, 2018, 46(7): 1102-1108 (in Chinese).

- [50] HUANG Y M, CHEN L G, JIANG G, et al. Bioaccumulation and biomagnification of short-chain chlorinated paraffins in marine organisms from the Pearl River Estuary, South China [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 671: 262-269.
- [51] 于国龙. 海洋环境短链氯化石蜡分析方法及应用研究 [D]. 大连: 大连海事大学, 2012.
YU G L. Study on method and application for analysis of short chain chlorinated paraffins in marine environment [D]. Dalian: Dalian Maritime University 2012 (in Chinese).
- [52] MA X, ZHANG H, WANG Z, et al. Bioaccumulation and trophic transfer of short chain chlorinated paraffins in a marine food web from Liaodong Bay, North China [J]. *Environ Sci Technol*, 2014, 48(10): 5964-5971.
- [53] SUN R, LUO X, TANG B, et al. Bioaccumulation of short chain chlorinated paraffins in a typical freshwater food web contaminated by e-waste in South China: Bioaccumulation factors, tissue distribution, and trophic transfer [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 222: 165-174.
- [54] WANG X T, ZHANG Y, MIAO Y, et al. Short-chain chlorinated paraffins (SCCPs) in surface soil from a background area in China: Occurrence, distribution, and congener profiles [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2013, 20(7): 4742-4749.
- [55] ZENG L X, ZHAO Z S, LI H J, et al. Distribution of short chain chlorinated paraffins in marine sediments of the East China Sea: Influencing factors, transport and implications [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, 46(18): 9898-9906.
- [56] BRANDSMA S H, VAN MOURIK L, O'BRIEN J W, et al. Medium-chain chlorinated paraffins (CPs) dominate in Australian sewage sludge [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51(6): 3364-3372.
- [57] NICHOLLS C R, ALLCHIN C R, LAW R J. Levels of short and medium chain length polychlorinated *n*-alkanes in environmental samples from selected industrial areas in England and Wales [J]. *Environmental Pollution*, 2001, 114(3): 415-430.
- [58] STEVENS J L, NORTHCOTT G L, STERN G A, et al. PAHs, PCBs, PCNs, organochlorine pesticides, synthetic musks, and polychlorinated *n*-alkanes in U. K. Sewage sludge: Survey results and implications [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, 37(3): 462-467.
- [59] BOGDAL C, ALSBERG T, DIEFENBACHER P S, et al. Fast quantification of chlorinated paraffins in environmental samples by direct injection high-resolution mass spectrometry with pattern deconvolution [J]. *Analytical Chemistry*, 2015, 87(5): 2852-2860.
- [60] XU J, GAO Y, ZHANG H, et al. Dispersion of short- and medium-chain chlorinated paraffins (CPs) from a CP production plant to the surrounding surface soils and coniferous leaves [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(23): 12759-12766.
- [61] XU C, ZHANG Q, GAO L R, et al. Spatial distributions and transport implications of short- and medium-chain chlorinated paraffins in soils and sediments from an e-waste dismantling area in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 649: 821-828.
- [62] ZENG L X, WANG T, HAN W Y, et al. Spatial and vertical distribution of short chain chlorinated paraffins in soils from wastewater irrigated farmlands [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(6): 2100-2106.
- [63] HUANG D, GAO L R, QIAO L, et al. Concentrations of and risks posed by short-chain and medium-chain chlorinated paraffins in soil at a chemical industrial park on the southeast coast of China [J]. *Environmental Pollution*, 2020, 258: 113704.
- [64] HALSE A K, SCHLABACH M, SCHUSTER J K, et al. Endosulfan, pentachlorobenzene and short-chain chlorinated paraffins in background soils from western Europe [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 220: 1477-1479.
- [65] BOGDAL C, NIGGELER N, GLÜGE J, et al. Temporal trends of chlorinated paraffins and polychlorinated biphenyls in Swiss soils [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 220: 891-899.
- [66] AAMIR M, YIN S, ZHOU Y, et al. Congener-specific C₁₀-C₁₃ and C₁₄-C₁₇ chlorinated paraffins in Chinese agricultural soils: Spatio-vertical distribution, homologue pattern and environmental behavior [J]. *Environmental Pollution*, 2019, 245: 789-798.
- [67] WANG X, WANG X, ZHANG Y, et al. Short- and medium-chain chlorinated paraffins in urban soils of Shanghai: Spatial distribution, homologue group patterns and ecological risk assessment [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 490: 144-152.
- [68] WANG K R, GAO L R, ZHU S, et al. Spatial distributions and homolog profiles of chlorinated nonane paraffins, and short and medium chain chlorinated paraffins in soils from Yunnan, China [J]. *Chemosphere*, 2020, 247: 8.
- [69] LI H J, FU J J, PAN W X, et al. Environmental behaviour of short-chain chlorinated paraffins in aquatic and terrestrial ecosystems of NY-Alesund and London Island, Svalbard, in the Arctic [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 590: 163-170.
- [70] LI Y, HOU X, CHEN W, et al. Carbon chain decomposition of short chain chlorinated paraffins mediated by pumpkin and soybean seedlings [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(12): 6765-6772.
- [71] CHEN M Y, LUO X J, ZHANG X L, et al. Chlorinated paraffins in sediments from the Pearl River Delta, South China: Spatial and temporal distributions and implication for processes [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(23): 9936-9943.
- [72] 陈晨, 马新东, 国文, 等. 辽河口海域短链氯化石蜡污染特征及生物富集 [J]. *科学通报*, 2014, 59(7): 578-585.
CHEN C, MA X D, GUO W, et al. Congener specific distribution and bioaccumulation of short-chain chlorinated paraffins in Liao Estuary [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2014, 59(7): 578-585 (in Chinese).
- [73] 潘晓辉. 莱州湾区域表层沉积物中多氯化萘、多溴联苯醚和氯化石蜡的研究 [D]. 北京: 中国科学院大学, 2010.
PAN X H. Polychlorinated naphthalenes, polybrominated diphenyl ethers and polychlorinated paraffins in surface sediments of rivers and marine environment in the laizhou bay area [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2010(in Chinese).
- [74] 高媛, 王成, 张海军, 等. HRGC/ECNI-LRMS 测定大辽河入海口表层沉积物中短链氯化石蜡 [J]. *环境科学*, 2010, 31(8): 1904-1908.
GAO Y, WANG C, ZHANG H J, et al. Analysis of short-chain chlorinated paraffins in sediment samples from the mouth of the daliao river

- by HRGC/ECNI-LRMS [J]. *Environmental Science*, 2010, 31(8): 1904-1908 (in Chinese).
- [75] ZENG L X, CHEN R, ZHAO Z S, et al. Spatial distributions and deposition chronology of short chain chlorinated paraffins in marine sediments across the Chinese Bohai and Yellow Seas [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(20): 11449-11456.
- [76] IOZZA S, SCHMID P, OEHME M. Development of a comprehensive analytical method for the determination of chlorinated paraffins in spruce needles applied in passive air sampling [J]. *Environmental Pollution*, 2009, 157(12): 3218-3224.
- [77] WANG T, YU J, HAN S, et al. Levels of short chain chlorinated paraffins in pine needles and bark and their vegetation-air partitioning in urban areas [J]. *Environmental Pollution*, 2015, 196: 309-312.
- [78] WANG X T, ZHOU J, LEI B L, et al. Atmospheric occurrence, homologue patterns and source apportionment of short- and medium-chain chlorinated paraffins in Shanghai, China: Biomonitoring with Masson pine (*Pinus massoniana* L.) needles [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 560-561: 92-100.
- [79] HUANG H, GAO L, XIA D, et al. Bioaccumulation and biomagnification of short and medium chain polychlorinated paraffins in different species of fish from Liaodong Bay, North China [J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 10749.
- [80] ZHOU Y, YIN G, DU X, et al. Short-chain chlorinated paraffins (SCCPs) in a freshwater food web from Dianshan Lake: Occurrence level, congener pattern and trophic transfer [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 615: 1010-1018.
- [81] DU B, GE J, YANG R, et al. Altitude-dependent accumulation of short chain chlorinated paraffins in fish from alpine lakes and Lhasa River on the Tibetan Plateau [J]. *Environmental Pollution*, 2019, 250: 594-600.
- [82] LABADIE P, BLASI C, LE MENACH K, et al. Evidence for the widespread occurrence of short- and medium-chain chlorinated paraffins in fish collected from the Rhône River basin (France) [J]. *Chemosphere*, 2019, 223: 232-239.
- [83] VORKAMP K, RIGÉT F F, BOSSI R, et al. Endosulfan, short-chain chlorinated paraffins (SCCPs) and octachlorostyrene in wildlife from Greenland: Levels, trends and methodological challenges [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2017, 73(4): 542-551.
- [84] YUAN B, VORKAMP K, ROOS A M, et al. Accumulation of short-, medium-, and long-chain chlorinated paraffins in marine and terrestrial animals from Scandinavia [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(7): 3526-3537.
- [85] CASÀ M V, VAN MOURIK L M, WEIJS L, et al. First detection of short-chain chlorinated paraffins (SCCPs) in humpback whales (*Megaptera novaeangliae*) foraging in Antarctic waters [J]. *Environmental Pollution*, 2019, 250: 953-959.
- [86] FRIDÉN U, JANSSON B, PARLAR H. Photolytic clean-up of biological samples for gas chromatographic analysis of chlorinated paraffins [J]. *Chemosphere*, 2004, 54(8): 1079-1083.
- [87] KOH I O, THIEMANN W. Study of photochemical oxidation of standard chlorinated paraffins and identification of degradation products [J]. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 2001, 139(2): 205-215.
- [88] MUKHERJEE A B. The use of chlorinated paraffins and their possible effects in the environment [M]. Helsinki: Vesi- ja ympäristöhallitus, 1990.
- [89] WILLIS B, CROOKES M J, DIMENT J. Environmental hazard assessment: Chlorinated paraffins [R]. London: Toxic Substances Division Dept of The Environment, 1994.
- [90] RIEGER R, BALLSCHMITER K. Semivolatile organic compounds—polychlorinated dibenzo-p-dioxins (PCDD), dibenzofurans (PCDF), biphenyls (PCB), hexachlorobenzene (HCB), 4,4'-DDE and chlorinated paraffins (CP)—as markers in sewer films [J]. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry*, 1995, 352(7): 715-724.
- [91] ATKINSON R, L. C W P. Experimental investigation of the atmospheric chemistry of aromatic hydrocarbons and long-chain alkanes [J]. *Abstracts of Papers of the American Chemical Society*, 1986, 192: 1-10.
- [92] FISK A T, WIENS S C, WEBSTER G R B, et al. Accumulation and depuration of sediment-sorbed C₁₂- and C₁₆-polychlorinated alkanes by oligochaetes (*Lumbriculus variegatus*) [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry* 1998, 17(10): 2019-2026.
- [93] SIJM D T H M, SINNIGE T L. Experimental octanol/water partition coefficients of chlorinated paraffins [J]. *Chemosphere*, 1995, 31(11): 4427-4435.
- [94] DROUILLARD K, TOMY G, MUIR D, et al. Volatility of chlorinated n-alkanes (C₁₀-C₁₂): Vapor pressures and Henry's law constants [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 1998, 17(7): 1252-1260.
- [95] THOMPSON R S, MADELEY J R. Toxicity of a chlorinated paraffin (58% chlorination of short chain length n-paraffins) to the marine alga *Skeletonema costatum* [R]. London: Brixham Laboratory, 1983.
- [96] FISK A T, BERGMAN A, CYMBALISTY C D, et al. Dietary accumulation of C₁₂- and C₁₆-chlorinated alkanes by juvenile rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*) [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 1996, 15: 1775-1782.
- [97] FISK A T, CYMBALISTY C D, TOMY G T, et al. Dietary accumulation and depuration of individual C₁₀-, C₁₁- and C₁₄-polychlorinated alkanes by juvenile rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*) [J]. *Aquatic Toxicology*, 1998, 43(2): 209-221.
- [98] FISK A T, TOMY G T, CYMBALISTY C D, et al. Dietary accumulation and quantitative structure activity relationships for depuration and biotransformation of short, medium and long carbon chain polychlorinated alkanes by juvenile rainbow trout (*Oncorhynchus mykiss*) [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2000, 19(6): 1508-1516.