

杭州市西湖区域茶叶和桂花叶中 OCPs 污染特征

杨洪达^{1,2,3}, 王祥云¹, 赵长山², 徐 浩¹, 章 虎¹, 齐沛沛¹, 王新全^{1*}

(1.浙江省农业科学院农产品质量标准研究所, 农业部农药残留检测重点实验室, 省部共建国家重点实验室培育基地“浙江省植物有害生物防控重点实验室”, 杭州 310021; 2.东北农业大学农学院, 哈尔滨 150030; 3.浙江省化工研究院, 杭州 310023)

摘要:利用气相色谱串联质谱(GC-MS/MS)内标法对夏、冬季杭州西湖区域8个点位的茶叶和桂花叶中10种有机氯农药的含量进行了分析测定。结果表明:杭州西湖区域夏季茶叶ΣOCPs含量范围为0.80~1.21 μg·kg⁻¹,平均值为1.01 μg·kg⁻¹;冬季ΣOCPs含量范围为1.37~2.85 μg·kg⁻¹,平均值为1.99 μg·kg⁻¹。夏季桂花叶ΣOCPs含量范围为1.45~13.34 μg·kg⁻¹,平均值为5.97 μg·kg⁻¹;冬季ΣOCPs含量范围为2.08~8.69 μg·kg⁻¹,平均值为4.58 μg·kg⁻¹。茶叶和桂花叶中OCPs污染主要来源于环境中早期的残留。OCPs的含量随着季节变化,茶叶中冬季OCPs的含量高于夏季的含量,而桂花叶中夏季高于冬季,表明茶叶中OCPs的变化可用于监测西湖区域大气中OCPs的季节变化规律,而桂花叶片适用于监测连续数年该区域大气中OCPs的污染情况。

关键词:OCPs; 茶叶; 桂花叶; 污染特征

中图分类号:X835 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2012)12-2328-07

The Pollution Character of OCPs in Tea and Osmanthus Leaves in the West Lake of Hangzhou Area, China

YANG Hong-da^{1,2,3}, WANG Xiang-yun¹, ZHAO Chang-shan², XU Hao¹, ZHANG Hu¹, QI Pei-pei¹, WANG Xin-quan^{1*}

(1.State Key Lab Breeding Base for Zhejiang Sustainable Plant Pest Control; MOA Key Lab for Pesticide Residue Detection; Institute of Quality and Standard for Agro-Products, Zhejiang Academy of Agricultural Sciences, Hangzhou 310021, China; 2.Agricultural College, Northeast Agricultural University, Harbin 150030, China; 3.Zhejiang Research Institute of Chemical Industry, LTD, Hangzhou 310023, China)

Abstract: The concentrations of ten OCPs in the samples were determined by GC-MS/MS with the internal standard method. The eight sites of tea and osmanthus leaves samples were collected from the West Lake of Hangzhou area in summer and winter. The results showed that the total concentrations of OCPs in tea from the West Lake of Hangzhou area were in the ranges of 0.80~1.21 μg·kg⁻¹ (with a mean 1.01 μg·kg⁻¹) in summer and 1.37~2.85 μg·kg⁻¹ (with a mean 1.99 μg·kg⁻¹) in winter. The total concentrations of OCPs in osmanthus leaves from the West Lake of Hangzhou area were in the ranges of 1.45~13.34 μg·kg⁻¹ (with a mean 5.97 μg·kg⁻¹) in summer and 2.08~8.69 μg·kg⁻¹ (with a mean 4.58 μg·kg⁻¹) in winter. OCPs in tea and osmanthus leaves were mainly the early residue in the environment. The concentration of OCPs was seasonal, and the concentration of OCPs in tea in summer was much higher than that of OCPs in winter, but osmanthus leaves was different from tea. The tea was used to monitor the seasonal variation of OCPs in the West Lake of Hangzhou area, and the osmanthus leaves was used to monitor the annual variation of OCPs in this region.

Keywords: organochlorine pesticides; tea; osmanthus leaves; pollution character

有机氯农药(Organochlorine pesticides, OCPs)作为持久性有机污染物(POPs)是目前公认的环境优先控制污染物,具有持久性强、半挥发性和高毒性,易在生物体内富集和沿着食物链累积放大^[1-2],对处于食物

收稿日期:2012-05-14

基金项目:国家自然科学基金(20807038)

作者简介:杨洪达(1986—),男,黑龙江哈尔滨人,硕士研究生,主要从事农药残留分析与环境安全评价研究。

E-mail:yhdmir@163.com

*通信作者:王新全 E-mail:wangxq@zaas.org

链高端的生物体乃至人类产生影响,成为世界公认的全球性环境公害,已被《关于持久性有机污染物的斯德哥尔摩公约》列为首批控制的12种化合物中的主要化合物^[3]。大量的研究还表明,有机氯农药能随着气流、水流等扩散到全球各地,因此了解它们在环境中的分布趋势与残留水平具有重要意义。

茶叶和桂花树均为杭州的代表性多年生植物,分布范围广泛,城市、乡村均有大密度的种植。茶叶和桂花树叶表面覆盖有蜡质层,可以减少水分的蒸腾,并

可富集气相和颗粒相的持久性有机污染物^[4],且茶叶和桂花叶中脂溶性有机污染物由根部吸入的贡献极微,因为绝大多数的有机氯化合物只能进入根的外表皮,不能深入到根的内部和木质部^[5],所以通过对茶叶和桂花叶中有机氯农药的定量分析,可以评估周围大气中OCPs的污染状况。过去我国关于OCPs的研究主要集中在水体、沉积物、底泥、土壤和大气等方面^[6-14],在植物中的污染研究相对较少,对它们在茶叶和桂花树叶中的富集研究,在我国还未见报道。本文对杭州市西湖区附近茶叶和桂花树叶中有机氯农药残留水平及生物富集规律进行分析,以期为杭州西湖风景区环境治理提供理论依据。

1 材料与方法

1.1 样品采集与处理

于2010年7月和12月在杭州西湖采集8个点位茶叶和桂花叶(GPS定位),采样点位如表1所示。茶叶样品分别采集于杭州茶叶博物馆、西湖龙井村、西湖龙坞茶村和杭州梅家坞,桂花叶样品采集于茶叶博物馆、杭州植物园、西湖满觉陇路和西湖杨公堤。植被样品为当年生叶片(当年新茶或顶端叶片)和色泽鲜艳的叶片(桂花叶片),每份样品至少采自5棵不同的植株。样品采集后封装在聚乙烯密实袋中带回实验室,将所有样品冷冻干燥后,经粉碎机粉碎,放入-18℃冷藏室保存直至分析。

1.2 试剂与仪器

SHB-Ⅲ型循环水式多用真空泵(郑州长城科工贸有限公司);旋转蒸发仪(瑞士BUCHI);MTN-2800D型氮吹仪(天津AUTOSCIENCE);UC-6200B型超声波清洗机(美国AMERITECH);索式提取器(杭州汇尔仪器设备有限公司,型号SCT-02)。

10种有机氯农药标准样品: α -HCH、 β -HCH、 γ -HCH、 δ -HCH、 o,p' -DDT、 p,p' -DDT、 o,p' -DDD、

表1 茶叶和桂花叶采样点情况

Table 1 The location of tea and osmanthus leaves sampling sites

样品类型	采样地点	纬度/经度
茶叶/桂花叶片	杭州茶叶博物馆	N30°14'04.8"/ E120°07'02.2"
茶叶	西湖龙井村	N30°22'69.7"/ E120°11'51.9"
茶叶	西湖龙坞茶村	N30°18'08.0"/ E120°04'54.3"
茶叶	杭州梅家坞	N30°11'22.2"/ E120°05'02.2"
桂花叶片	杭州植物园	N30°15'23.4"/ E120°16'17.5"
桂花叶片	西湖满觉陇路	N30°30'21.9"/ E120°12'77.4"
桂花叶片	西湖杨公堤	N29°30'24.5"/ E120°13'08.9"

p,p' -DDD、 o,p' -DDE、 p,p' -DDE。内标物为2,4,5,6-四氯间二甲苯(TCXM),回收率指示物为十氯联苯(PCB209),购自上海安谱科学仪器有限公司。正己烷(国药集团化学试剂有限公司);二氯甲烷(国药集团化学试剂有限公司);乙酸乙酯(杭州双林化工试剂厂);硫酸(杭州化学试剂有限公司);无水硫酸钠(兰溪市屹达化工试剂有限公司);氯化钠(兰溪市屹达化工试剂有限公司)。

1.3 试验方法

分别称取10 g茶叶和桂花叶样品,与适量无水硫酸钠充分研磨,放入预先经索氏提取过的滤纸筒中,加入回收率指示物十氯联苯(PCB209),提取溶剂正己烷-二氯甲烷(1+1,V/V)100 mL。设定萃取参数,提取温度60℃,提取时间24 h。萃取完毕后将萃取液转入圆底烧瓶浓缩至1 mL,转移至刻度管并定容到4 mL,加入1 mL硫酸,振荡摇匀,2000 r·min⁻¹离心3 min。取上层有机相,用5%氯化钠水溶液清洗3次,经无水硫酸钠干燥后,取2 mL准备上柱。

磺化后的样品用弗罗里硅柱净化,层析柱从下到上依次是1 g无水硫酸钠、4 g弗罗里硅土、1 g无水硫酸钠。用10 mL正己烷预淋洗,将2 mL样品转移到层析柱内,用40 mL正己烷-乙酸乙酯(99+1,V/V)洗脱。洗脱液收集于平底烧瓶中,氮吹浓缩后转移至刻度管中定容至0.6 mL,待上机测定。

1.4 气相色谱仪分析

采用Thermo Fisher公司Trace GC ultra配TSQ Quantum GC气相色谱-串联质谱仪在SRM模式下进行定性以及定量分析。色谱条件:色谱柱为TR-Pesticide II毛细管柱(30 m×0.25 mm×0.25 μm),进样口温度230℃,升温程序:初始温度60℃,保持1 min,以30℃·min⁻¹速率升至210℃,最后以10℃·min⁻¹速率升至280℃,保持8 min。质谱条件:传输线温度230℃,离子源温度250℃,灯丝电流为100 mA。电离方式为电子轰击源(EI),电子能量100 eV,扫描方式为SRM。载气为高纯氦气,载气流速1.0 mL·min⁻¹。碰撞气为高纯氩,压力为1.0 m Torr,进样体积1.0 μL,不分流进样。10种有机氯农药、内标物和回收率指示物的定性和定量离子及碰撞能量(eV)见表2。

1.5 质量保证与控制(QA/QC)

采用美国环境保护局(USEPA)检测有机氯农药的标准方法——内标定量法^[15]。所有的样品分析测试均实行质量保证和质量控制,即用溶剂空白、基质空白、基质加标、样品平行控制样品的前处理质量,并用

表2 有机氯农药定量和定性离子及碰撞能量

Table 2 Precursorion, production and CE of ten of organochlorine pesticides, internal standard substance and recoveries indicator

Compound	Precursorion (<i>m/z</i>)	Production 1(<i>m/z</i>)	CE 1/ eV	Production 2(<i>m/z</i>)	CE 2/ eV
α-HCH	181	145	15	108	25
β-HCH	181	145	15	108	25
γ-HCH	181	145	15	108	25
δ-HCH	181	145	15	108	25
o,p'-DDT	235	165	20	199	18
p,p'-DDT	235	165	20	199	18
o,p'-DDD	235	165	20	199	18
p,p'-DDD	235	165	20	199	18
o,p'-DDE	317	249	20	247	20
p,p'-DDE	317	249	20	247	20
TCMX	244	209	15	207	15
PCB209	498	248	25	246	25

回收率指示物监测样品的制备和基质的影响。回收率指示物为十氯联苯(PCB209),指示物的回收率范围为81%~117%,方法检测限为2.0~60.0 ng·kg⁻¹。

2 结果与讨论

2.1 茶叶和桂花叶对OCPs的富集及分布特征

夏、冬季茶叶和桂花叶样品中有机氯农药含量的检测结果见表3。夏、冬季茶叶和桂花叶样品中10种OCPs检出率高达100%。夏季茶叶ΣOCPs含量范围为0.80~1.21 μg·kg⁻¹,平均值为1.01 μg·kg⁻¹;冬季ΣOCPs含量范围为1.37~2.85 μg·kg⁻¹,平均值为1.99 μg·kg⁻¹。夏季桂花叶ΣOCPs含量范围为1.45~13.34 μg·kg⁻¹,平均值为5.97 μg·kg⁻¹;冬季ΣOCPs含量范围为2.08~8.69 μg·kg⁻¹,平均值为4.58 μg·kg⁻¹。

夏、冬季茶叶和桂花叶样品中OCPs的含量均为ΣDDTs>ΣHCHs,表明茶叶和桂树叶中DDTs的含量最高,茶叶和桂花叶中OCPs污染以DDTs为主。夏、冬季茶叶ΣHCHs含量范围分别为0.17~0.26 μg·kg⁻¹、0.26~0.35 μg·kg⁻¹,平均值分别为0.22、0.31 μg·kg⁻¹;ΣDDTs含量范围分别为0.58~0.79 μg·kg⁻¹、1.07~2.52 μg·kg⁻¹,平均值分别为0.79、1.68 μg·kg⁻¹。夏、冬季桂花叶中ΣHCHs含量范围分别为0.33~0.60 μg·kg⁻¹、0.40~0.54 μg·kg⁻¹,平均值分别为0.52、0.46 μg·kg⁻¹;ΣDDTs含量范围分别为1.12~12.80 μg·kg⁻¹、1.68~8.25 μg·kg⁻¹,平均值分别为5.46、4.12 μg·kg⁻¹。

杭州西湖区茶叶和桂花叶中ΣOCPs、ΣDDTs、ΣHCHs的时空分布如图1所示。茶叶中OCPs的含量

随季节而变化,冬季OCPs含量高于夏季含量,而桂花叶片中OCPs含量无明显差异。这种现象可能与两种植物的生长及样品采集手段有关。在采集茶叶样品时,为较为清晰地反映茶叶与当地大气中OCPs含量之间的关系,从春季开始主要以采集当年生新芽或顶端叶片为主,这可能使茶叶中OCPs浓度随季节变化较为明显。在采集桂花叶片时,由于桂花树属常绿树种,树叶生长相对缓慢,虽然以颜色鲜绿为判断,但所采集的叶片样品可能仍然为多年生树叶。因此,我们认为茶叶中OCPs的变化更加适用于分析西湖区域不同季节大气中OCPs的变化规律,桂花叶片中有机氯OCPs含量数据则更适用于反映连续数年该区域大气中OCPs的污染情况。

2.2 茶叶和桂花叶中OCPs的组成特征

杭州西湖茶叶和桂树叶夏、冬季HCHs4种异构体含量如图2(a)、(c)所示,其中α-HCH、β-HCH含量相对较高,而γ-HCH、δ-HCH含量较低。研究表明^[16],β-HCH结构中所有氯原子都处在碳架的平面内,使得其相对其他异构体来说,物理性质更加稳定,水溶性和挥发性较低,更不易生物降解,HCHs在环境中存在的越久,β-HCH异构体的比例越高。同时由于HCHs几种同分异构体对光的稳定性顺序为α-HCH>β-HCH>γ-HCH,杭州西湖区茶叶和桂树叶中HCHs化合物含量以β-HCH和α-HCH较高,说明目前环境中的HCHs主要来自于早期的使用。

工业品HCHs以两种形态被使用:一种是含有α-HCH、β-HCH、γ-HCH、δ-HCH4种异构体的工业品六六六(HCH),其含量分别占总量的65%~70%、5%~6%、12%~14%、6%;另一种是工业品林丹(Lindane),γ-HCH含量在99%以上。若样品中六六六组分的α-HCH/γ-HCH比值在3~7之间,则其污染源为工业品HCHs;若比值接近于0,则说明环境中有关林丹的使用^[16]。如图3、图4所示,夏、冬季茶叶α-HCH/γ-HCH比值分别为1.37~1.87、1.15~2.47,桂树叶α-HCH/γ-HCH比值分别为1.24~2.01、1.93~2.87,说明HCHs来源于环境中工业品六六六和林丹早期的使用。

茶叶和桂树叶中夏、冬季DDTs及其代谢产物含量如图2(b)、(d)所示。杭州西湖表层水体中夏、冬季DDTs平均含量由高至低次序为DDE>DDT>DDD。工业滴滴涕成品中以p,p'-DDT为主,含量约占DDTs的80%,在被禁用后,DDTs以其代谢产物DDD和DDE存在于环境中。DDTs在厌氧条件下通过土壤中的微

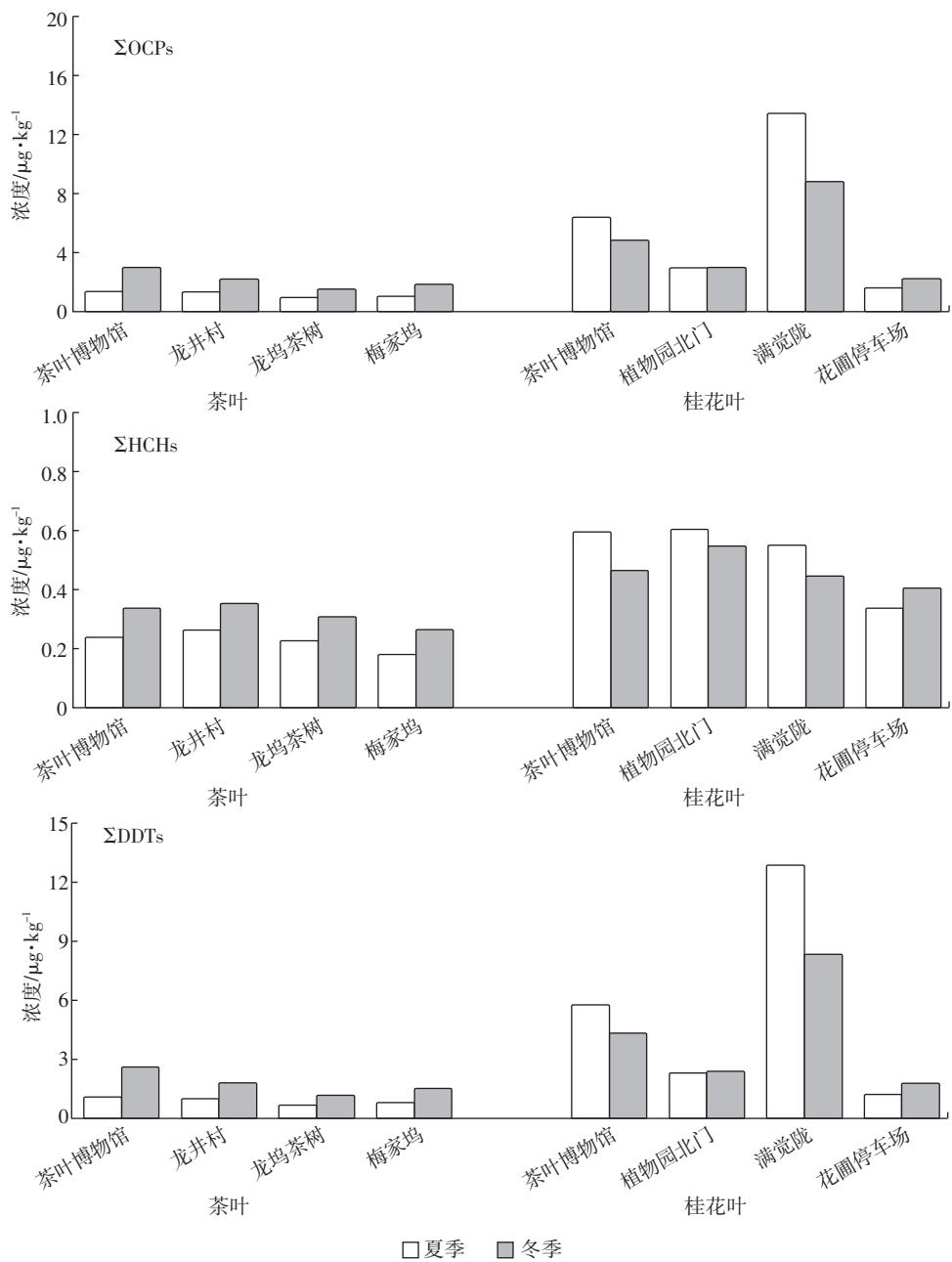
图 1 茶叶和桂花叶中 ΣOCPs 、 ΣHCHs 、 ΣDDTs 的时空分布

Figure 1 Spatial and temporal distribution of OCPs, HCHs and DDTs of tea and osmanthus leaves

生物降解转化为 DDD, 在好氧条件下则转化为 DDE^[17]。DDD/DDE 比值可以指示 DDTs 降解过程中的氧化还原条件。由图 3、图 4 可以看出夏、冬季茶叶和桂树叶样品中 DDD/DDE<1, 表明杭州西湖区茶叶和桂树叶 DDT 降解主要为好氧环境, 这与杭州地处中国东部沿海, 气候温和湿润、光照充足等条件有关。

Pereira 等^[18]指出, 利用(DDE+DDD)/DDT 比值可以判断环境中是否有新的 DDTs 输入: 当该比值>1 时, 表明近期没有 DDTs 输入; 当该比值<1 时, 则表明近期有新的 DDTs 输入。从图 3、图 4 可以看出, 杭州

西湖区夏、冬季茶叶和桂树叶比值>1, 两个季节无明显差异, 显示样品中 DDTs 类农药主要来源于环境中早期有机氯农药污染, 这与 HCHs 的判断结果一致。

3 结论

(1) 杭州西湖区域夏季茶叶 ΣOCPs 含量范围为 $0.80\sim1.21 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 平均值为 $1.01 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$; 冬季 ΣOCPs 含量范围为 $1.37\sim2.85 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 平均值为 $1.99 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。夏季桂花叶 ΣOCPs 含量范围为 $1.45\sim13.34 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 平均值为 $5.97 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 冬季 ΣOCPs 含量范

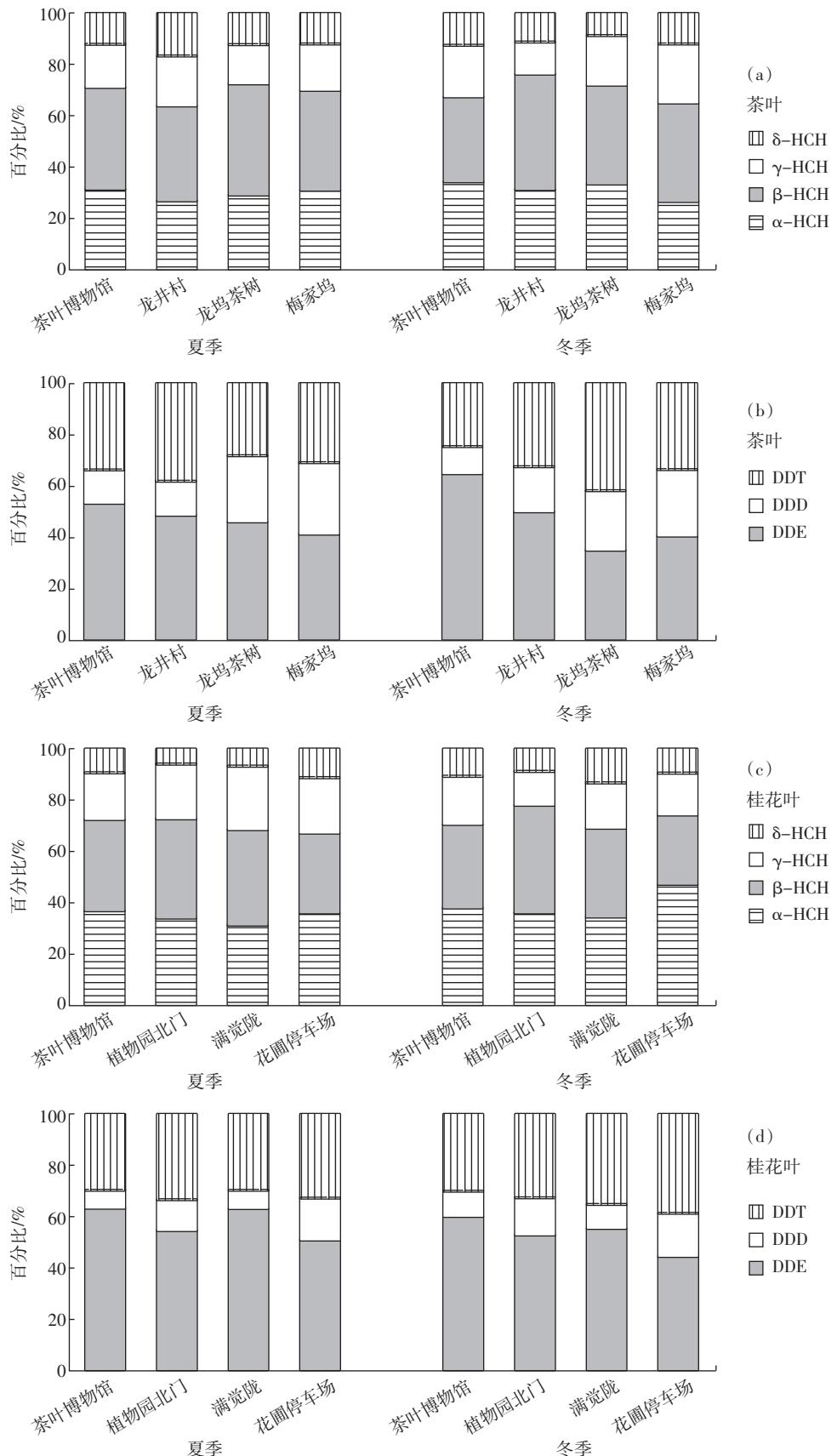


图 2 茶叶和桂花叶中 HCHs 和 DDTs 各组分百分比(a,b 茶叶,c,d 桂花叶)

Figure 2 The percentages of HCHs and DDTs derivatives of tea(a,b) and osmanthus leaves(c,d)

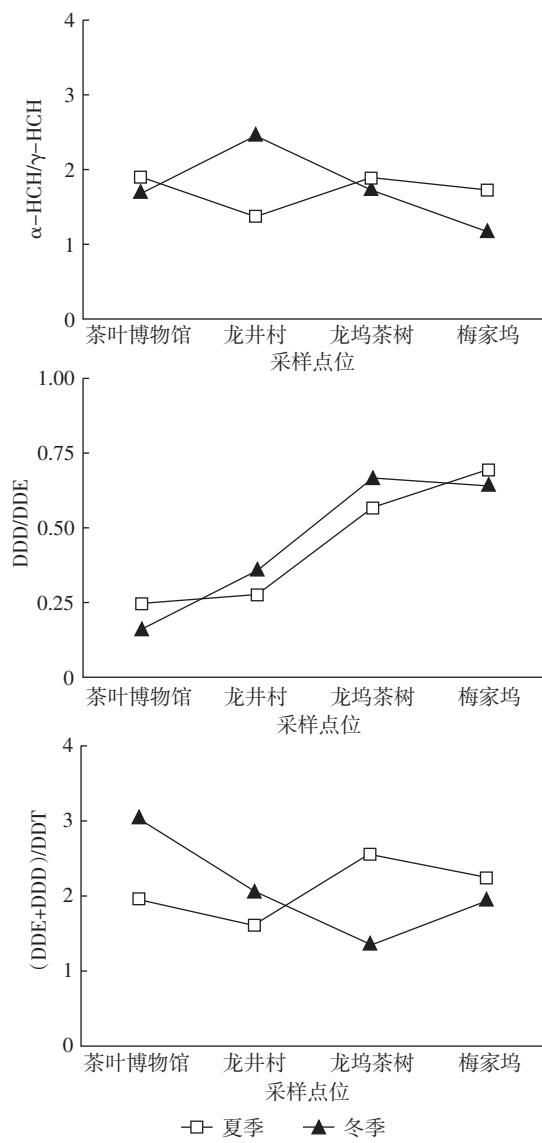


图3 茶叶中 $\alpha\text{-HCH}/\gamma\text{-HCH}$ 、 DDD/DDE 和 $(\text{DDE}+\text{DDD})/\text{DDT}$ 比值的空间分布

Figure 3 The spatial distributions of $\alpha\text{-HCH}/\gamma\text{-HCH}$ 、 DDD/DDE and $(\text{DDE}+\text{DDD})/\text{DDT}$ in tea

围为 $2.08\sim8.69 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$, 平均值为 $4.58 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。茶叶和桂花叶中 OCPs 污染以 DDTs 为主。

(2) 杭州西湖区茶叶中 OCPs 的含量随季节而变化, 冬季 OCPs 含量高于夏季的含量, 而桂花叶片中 OCPs 含量却无明显差异, 表明茶叶中 OCPs 的变化适用于分析西湖区域大气中 OCPs 的季节变化规律, 而桂花叶片更适用于反映连续数年该区域大气中 OCPs 的污染情况。

(3) 杭州西湖区茶叶和桂花叶中 HCHs 化合物含量以 $\beta\text{-HCH}$ 和 $\alpha\text{-HCH}$ 较高, $\alpha\text{-HCH}/\gamma\text{-HCH}$ 比值接近于 2, 说明 HCHs 来源于工业品 HCH 和林丹;

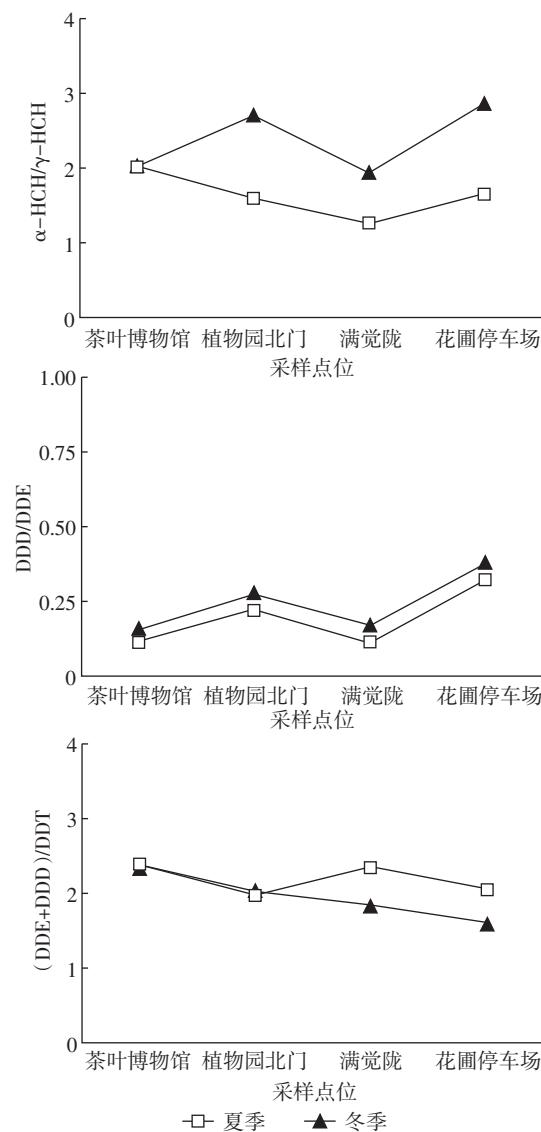


图4 桂花叶中 $\alpha\text{-HCH}/\gamma\text{-HCH}$ 、 DDD/DDE 和 $(\text{DDE}+\text{DDD})/\text{DDT}$ 比值的空间分布

Figure 4 The spatial distributions of $\alpha\text{-HCH}/\gamma\text{-HCH}$ 、 DDD/DDE and $(\text{DDE}+\text{DDD})/\text{DDT}$ in osmanthus leaves

$(\text{DDE}+\text{DDD})/\text{DDT}$ 比值均大于 1, 说明近期没有新的 DDTs 输入, OCPs 污染主要来源于环境中早期残留。

参考文献:

- [1] Shete A, Gunale V R, Pandit G G. Organochlorine pesticides in *Avicennia marina* from the Mumbai mangroves, India[J]. *Chemosphere*, 2009, 76(11):1483–1485.
- [2] Yang R, Yao T, Xu B, et al. Distribution of organochlorine pesticides (OCPs) in conifer needles in the southeast Tibetan Plateau[J]. *Environmental Pollution*, 2008, 153(1):92–100.
- [3] 王亚麟, 蔡亚岐, 江桂斌. 斯德哥尔摩公约新增持久性有机污染物的一些研究进展[J]. 中国科学: 化学, 2010, 40(2):99–123.

表3 杭州西湖区域茶叶和桂花叶中有机氯农药的含量

Table 3 Concentrations of OCPs in tea and osmanthus leaves from the West Lake of Hangzhou area

化合物	茶叶								桂花叶							
	杭州茶叶博物馆		西湖龙井村		西湖龙坞茶村		杭州梅家坞		杭州茶叶博物馆		杭州植物园		西湖满觉陇路		西湖杨公堤	
	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季
α-HCH	0.07	0.11	0.07	0.11	0.06	0.10	0.05	0.07	0.22	0.17	0.20	0.19	0.17	0.15	0.12	0.19
β-HCH	0.09	0.11	0.10	0.16	0.10	0.12	0.07	0.10	0.21	0.15	0.23	0.23	0.20	0.15	0.10	0.11
γ-HCH	0.04	0.07	0.05	0.04	0.03	0.06	0.03	0.06	0.11	0.09	0.13	0.07	0.14	0.08	0.07	0.07
δ-HCH	0.03	0.04	0.04	0.04	0.03	0.03	0.02	0.03	0.06	0.05	0.04	0.05	0.04	0.06	0.04	0.04
ΣHCH	0.23	0.33	0.26	0.35	0.22	0.30	0.17	0.26	0.59	0.46	0.60	0.54	0.54	0.44	0.33	0.40
o,p'-DDE	0.05	0.09	0.07	0.11	0.05	0.08	0.06	0.16	0.38	0.31	0.19	0.20	2.29	1.02	0.12	0.18
p,p'-DDE	0.47	1.55	0.37	0.74	0.22	0.29	0.23	0.42	3.21	2.24	1.02	1.01	5.79	3.55	0.46	0.57
o,p'-DDD	0.04	0.05	0.04	0.07	0.06	N.D.	0.07	0.11	0.10	0.09	0.08	0.09	0.08	0.10	0.05	0.07
p,p'-DDD	0.09	0.22	0.09	0.23	0.09	0.25	0.13	0.26	0.30	0.32	0.19	0.25	0.83	0.67	0.14	0.21
o,p'-DDT	0.09	0.19	0.12	0.21	0.08	0.24	0.08	0.20	0.39	0.36	0.35	0.32	0.56	0.39	0.17	0.30
p,p'-DDT	0.24	0.43	0.23	0.35	0.09	0.20	0.14	0.28	1.29	0.92	0.40	0.43	3.25	2.52	0.20	0.35
ΣDDT	0.98	2.52	0.91	1.71	0.58	1.07	0.71	1.43	5.68	4.24	2.22	2.29	12.80	8.25	1.12	1.68
ΣOCPs	1.21	2.85	1.17	2.06	0.80	1.37	0.88	1.69	6.27	4.70	2.82	2.83	13.34	8.69	1.45	2.08

注:N.D.表示未检出;ΣOCPs为总有机氯农药浓度;ΣHCH=α-HCH+β-HCH+γ-HCH+δ-HCH;ΣDDT=o,p'-DDT+p,p'-DDT+o,p'-DDD+p,p'-DDD+o,p'-DDE+p,p'-DDE;

WANG Ya-wei, CAI Ya-qi, JIANG Gui-bin. Research processes of persistent organic pollutants(POPs) newly listed and candidate POPs in Stockholm Convention[J]. *Scientia Sinica (Chimica)*, 2010, 40(2):99–123.

[4] Eriksson G, Jensen S, Kylin H, et al. The pine needles as a monitor of atmospheric pollution[J]. *Nature*, 1989, 341:42–44.

[5] Simonich S L, Hites R A. Organic pollutant accumulation in vegetation [J]. *Environ Sci Technol*, 1995, 29:2905–2914.

[6] Zhang G, Parker A, House A, et al. Sedimentary records of DDT and HCH in the Pearl River Delta, South China[J]. *Environ Sci Technol*, 2002, 36(17):3671–3677.

[7] Yuan D X, Yang D N, Wade T L, et al. Status of persistent organic pollutants in the sediment from several estuaries in China[J]. *Environ Pollut*, 2001, 114(1):101–111.

[8] Wang H, Wang C X, Wu W Z, et al. Persistent organic pollutants in water and surface sediments of Taihu Lake, China and risk assessment[J]. *Chemosphere*, 2003, 50(4):557–562.

[9] 马梅,王子健,Anders S.官厅水库和永定河沉积物中多氯联苯和有机氯农药的污染[J].环境化学,2001,20(3):238–243.

MA Mei, WANG Zi-jian, Anders S. Contamination of PCBs and organochlorine pesticides in the sediment samples of Guanting Reservoir and Yongding River[J]. *Environmental Chemistry*, 2001, 20(3):238–243.

[10] Xu S, Jiang X, Wang Y, et al. Persistent pollutants in sediments of the Yangtze River[J]. *Bull Environ Contam Toxicol*, 2000, 64(2):176–183.

[11] Ma M, Feng Z, Guan C. DDT, PAH and PCB in sediments from the intertidal zone of the Bohai Sea and the Yellow Sea[J]. *Marine Pollut Bull*, 2001, 42(2):132–136.

[12] 张家泉,祁士华,邢新丽,等.闽江干流沿岸土壤及河口沉积物中有机氯农药分布特征[J].环境科学,2011,32(3):674–679.

ZHANG Jia-quan, QI Shi-hua, XING Xin-li, et al. Distribution char-

acteristics of organochlorine pesticides in bank soil samples and estuarial sediment core of the Minjiang River, Southeast China[J]. *Environmental Science*, 2011, 32(3):674–679.

[13] 窦薇,赵忠宪.白洋淀水生食物链BHC,DDT生物浓缩分析[J].环境科学,1997,18(5):41–43.

DOU Wei, ZHAO Zhong-xian. A study on bioaccumulation and bio-magnification of BHC and DDT in Baiyangdian Lake foodweb[J]. *Environmental Science*, 1997, 18(5):41–43.

[14] Ma L L, Chu S G, Xu X B. Organic contamination in the greenhouse soils from Beijing suburbs, China[J]. *J Environ Monit*, 2003, 5(5):786–790.

[15] 林峥,麦碧娟,张干,等.沉积物中多环芳香烃和有机氯农药定量分析的质量保证和质量控制[J].环境化学,1999,18(2):115–121.

LIN Zheng, MAI Bi-xian, ZHANG Gan, et al. Quality assurance/quality control in quantitative analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons & organochlorine pesticides in sediments[J]. *Environmental Chemistry*, 1999, 18(2):115–121.

[16] 刘相梅,彭平安,黄伟林,等.六六六在自然界中的环境行为及研究动向[J].农业环境与发展,2001,18(2):38–40.

LIU Xiang-mei, PENG Ping-an, HUANG Wei-lin, et al. The environmental behavior and study trends of benzene hexachloride[J]. *Agro-Environment and Development*, 2001, 18(2):38–40

[17] Hitch R K, Day H R. Unusual persistence of DDT in some western USA soils[J]. *Bulletin Environmental Contamination and Toxicology*, 1992, 48:259–264.

[18] Pereira W E, Domagalski J L, Hostettler F D, et al. Occurrence and accumulation of pesticides and organic contaminants in river, sediment, water and clam issue from the San Joaquin River and tributaries, California[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 1996, 15(2):172–180.