

doi:10.3969/j.issn.1001-4616.2025.05.016

太湖沉积物中全氟化合物的赋存特征 及生态风险评价

柯桐, 张玉腾, 李德虎, 杨万如, 陈龙, 柳凯, 李慧明

(南京师范大学环境学院, 江苏 南京 210023)

[摘要] 采集太湖不同湖区表层沉积物样品, 利用液相色谱三重四级杆串联质谱仪(HPLC-MS/MS)分析全氟化合物(PFASs)浓度, 研究 PFASs 赋存特征、评价其生态风险, 探究 PFASs 来源及其环境影响因素。结果表明, 太湖表层沉积物中中长链 PFASs 检出率较高, 并以 PFOA(43.01%)和 PFOS(16.03%)为主, Σ PFASs 浓度为 0.10~9.98 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (均值 1.16 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$), 北部部分点位 PFASs 浓度较高, 竺山湾 PFASs 浓度最高。PFASs 的主要污染源是消防、纺织和金属电镀厂等。风险熵评价结果表明, PFOS 在部分点位存在中等生态风险, 其余为低风险。沉积物理化指标与多种 PFASs 具有相关性, 水体理化指标仅电导率、溶解氧、 COD_{Mn} 与 PFASs 存在一定相关性。

[关键词] 全氟化合物, 沉积物, 赋存特征, 生态风险, 太湖

[中图分类号] X524 **[文献标志码]** A **[文章编号]** 1001-4616(2025)05-0139-10

Occurrence Characteristics and Ecological Risk Assessment of Perfluoroalkyl Substances in Sediment from Taihu Lake

Ke Tong, Zhang Yuteng, Li Dehu, Yang Wanru, Chen Long, Liu Kai, Li Huiming

(College of Environment, Nanjing Normal University, Nanjing 210023, China)

Abstract: Surface sediment samples were collected from different areas of Taihu Lake. The concentrations of 17 perfluoroalkyl substances (PFASs) were determined by high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (HPLC-MS/MS). The occurrence characteristics of PFASs have been studied. The ecological risk of PFASs has been evaluated. The sources of PFASs and their environmental influencing factors were investigated. Results showed that the detection rate of medium- and long-chain PFASs in the surface sediments of Taihu Lake was higher, which were dominated by PFOA (43.01%) and PFOS (16.03%). The total concentrations of PFASs ranged from 0.10 to 9.98 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$ with the mean value of 1.16 $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$. The concentrations of PFASs were higher in the northern part of the lake, with the highest concentration found in Zhushan Bay. The main pollution sources of PFASs were fire-fighting, textile and metal plating factories, etc. The risk entropy evaluation results showed that PFOSs had medium ecological risk at some points, and the rest had low risk in Taihu lake. Physicochemical indicators of sediments were correlated with the concentrations of many monomers of PFASs, whereas only conductivity, dissolved oxygen, and COD_{Mn} of lake water were correlated with the concentrations of PFASs.

Key words: perfluoroalkyl substances, sediments, occurrence characteristics, ecological risk, Taihu Lake

全氟和多氟烷基物质(perfluorinated and polyfluoroalkyl substances, PFASs)是目前备受关注的一类新污染物,它是指人工合成的一类含氟有机化合物,因其具有良好的热稳定性、化学稳定性、表面活性和疏水疏油性等理化性质,被广泛应用于工业生产和生活消费等领域^[1-3]。在生产使用及处理弃置含氟产品过程中均会导致 PFASs 释放到环境中^[4],环境中 PFASs 会通过食物链富集放大作用进入并蓄积于生物体和人体,产生生殖毒性、神经毒性及致癌致畸性等多种毒理作用^[5-6]。目前环境中最常见的 PFASs 为全氟辛酸(perfluorooctanoic acid, PFOA)和全氟辛烷磺酸(perfluorooctane sulfonate, PFOS)^[7],分别于 2009 年和 2019

收稿日期:2024-09-19.

基金项目:江苏省自然科学基金项目(BK20221325)、国家自然科学基金项目(42077430,42477495)。

通讯作者:李慧明,博士,副教授,研究方向:环境污染过程及风险评价研究. E-mail:valen222@126.com

年被列入《斯德哥尔摩公约》^[8]。

湖泊是 PFASs 的重要归趋和传输转运系统之一^[9],是 PFASs 的源和汇^[10]。湖泊中的 PFASs 易被颗粒物吸附,随之迁移、沉降并蓄积于沉积物中,在适宜条件下还会从沉积物里释放到上覆水中,危害水体生态环境。太湖是我国第三大淡水湖泊^[11],作为长三角地区的重要水源地和经济枢纽,其周边涉及多个与 PFASs 生产有关的工业园区,是 PFASs 的主要使用聚集地之一^[12-13]。目前关于太湖 PFASs 赋存情况的研究报道表明 PFASs 已广泛存在于太湖中^[11,14-16]。众多模拟实验证实,PFASs 在沉积物中的吸附受到诸多因素的影响,如水温、水体 pH、溶解氧、沉积物组成、有机质含量等^[17-18]。但目前对真实湖泊环境中 PFASs 赋存与环境因子的相关性研究还较为不足。

本研究对太湖全湖区 20 个点位进行表层沉积物采样,分析 17 种常见 PFASs 的浓度水平、空间分布及来源,评价其生态风险,并探究其与环境因子的内在关联,为了解湖泊 PFASs 的污染现状提供依据,为其污染防控提供参考。

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究结合太湖水文情况及实地考察情况,于 2022 年 5 月,在太湖主要湖区进行分区布点,共设置 20 个采样点位(图 1)开展表层沉积物采样工作。图 1 中,TH1-20 点位所代表的位置名称依次为:梅梁湖心、竺山湖心、锡东、椒山、拖山平台、沙渚、大埔港口东、乌龟山南、兰山嘴、平台山、漫山平台、大雷山、西山西、胥湖心、新塘港、十四号灯标、小梅口、泽山、漾西港、东太湖。使用抓斗式采泥器采集表层沉积物样品,并收集于聚丙烯密封袋中,低温保存带回实验室冷冻干燥后,-20℃下保存直至前处理。

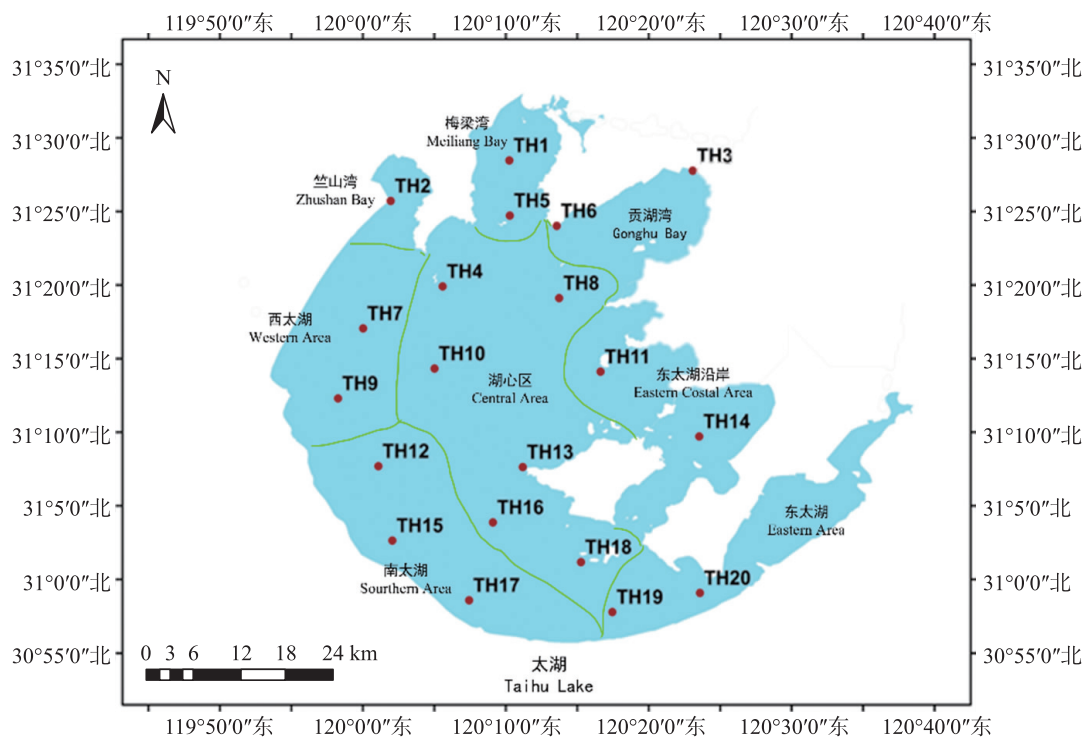


图 1 太湖表层沉积物采样点位置
Fig. 1 Location of sampling sites of surface sediment in Taihu Lake

1.2 试剂及材料

标准品和内标物质: 17 种高纯度混合标准品(天津阿尔塔科技有限公司),包括:全氟丁烷羧酸(PFBA)、全氟戊酸(PFPeA)、全氟己酸(PFHxA)、全氟庚酸(PFHpA)、全氟辛酸(PFOA)、全氟壬酸(PFNA)、全氟癸酸(PFDA)、全氟十一酸(PFUnA)、全氟十二酸(PFDoDA)、全氟十三酸(PFTrA)、全氟十四酸(PFTeA)、全氟十六酸(PFHxDA)、全氟十八酸(PFOcDA)、全氟丁烷磺酸(PFBS)、全氟己烷磺酸(PFHxS)、全氟辛烷磺酸(PFOS)、全氟癸烷磺酸(PFDS)。碳同位素标记的标准品(加拿大 Wellington:

Laboratories),包括用作回收率指示标准品的 MPFOS、MPFHxA、MPFDA 和用作内标的 MPFOA。

主要试剂:甲醇(HPLC 级,美国 Fisher 公司)、氨水(分析纯,中国国药集团化学试剂有限公司)、Milli-Q 超纯水。

1.3 样品分析方法

前处理方法:准确称取研磨过筛后的 5 g 沉积物样品于 50 mL 离心管中,加入 10 ng 回收率指示物 MPFOA,在 20 mL 甲醇中浸泡 15 min,涡旋 1 min,超声处理 30 min。振荡(150 rpm)16 h 并于 4500 rpm 的转速离心 10 min 后,收集上清液。用高纯氮气将上清液浓缩至 1 mL,加入 500 mL Milli-Q 水进行稀释。将稀释液加载到 Oasis WAX 小柱(6 cc,150 mg,30 μm ,waters, Miford, MA)上,该小柱已事先采用 4 mL NH_4OH 的甲醇溶液、4 mL 甲醇和 4 mL Milli-Q 水进行活化。加标水样以 1 秒 1 滴的流速全部过柱后,用 buffer 缓冲液(25 mmol/L 乙酸/乙酸铵,pH=4)清洗滤芯,并以 3 000 rpm 转速离心 3 min 以去除残留水分。依次加入 4 mL 甲醇和 4 mL 0.10% NH_4OH 的甲醇溶液进行洗涤、洗脱,收集洗脱液于 15 mL 离心管中。用高纯氮气将洗脱液浓缩至 0.50 mL,过孔径为 0.22 μm 的聚丙烯滤膜,转入 0.50 mL 内插式进样瓶,加入 5 ng 内标,储存于 $-20\text{ }^\circ\text{C}$ 下直至机器分析。

仪器分析方法:使用液相色谱三重四级杆串联质谱仪(HPLC-MS/MS)(美国 Waters Xevo TQ-XS 公司)进行仪器分析。用于定量 17 种 PFASs 的详细质谱参数见表 1。

表 1 目标化合物和选定的用于 HPLC-MS/MS 定量的仪器参数

Table 1 Target compounds and selected instrumental parameters for quantification of each compound by HPLC-MS/MS

简称	母离子/(m/z)	子离子/(m/z)	保留时间/min	锥孔电压/V	碰撞电压/eV
PFBA	213	169	5.35	20	8
PFPeA	263	219	7.74	10	9
PFHxA	313	269	9.31	16	8
PFHpA	363	319	10.40	16	9
PFOA	413	369	11.28	15	10
PFNA	463	419	11.99	16	10
PFDA	513	469	12.57	16	10
PFUnDA	563	519	13.08	16	10
PFDoDA	613	569	13.52	16	10
PFTTrDA	663	619	13.88	16	12
PFTeDA	713	669	14.18	16	10
PFHxDA	813	769	14.69	40	10
PFOcDA	913	869	15.17	16	12
PFBS	299	80	8.13	40	27
PFHxS	399	80	10.46	45	33
PFOS	499	99	11.98	60	38
PFDS	599	80	13.07	70	98
MPFOA	417	372	11.25	22	11
MPFOS	503	80	11.98	65	42

1.4 质量控制与质量保证

在整个样品采集和实验过程中,所有实验器材在使用前均用甲醇和超纯水洗涤,并尽量避免与含 PFASs 的容器、试剂接触。使用在甲醇中制备的内标校准曲线对所有目标化合物进行内标法定量。对每批样品进行程序空白测试,以检查实验室污染。通过将 5 ng 的每种目标分析物加标到 500 mL Milli-Q 水中来进行回收率测试。PFASs 回收率范围为 71.80%~114.88%,表明该方法满足分析要求。

1.5 环境因子的获取

水体理化指标的获取:使用 YSI 6600 多参数水质探测仪在现场测量水温(temp)、pH 值(pH-w)、溶解氧(DO)、电导率(EC-w)、浑浊度(Turbidity)。采用标准方法(基于中国国家标准或中国行业标准)分析水体以下参数:叶绿素 a(Chl-a,HJ 897-2017)、总氮(TN-w,HJ 636-2012)、氨氮($\text{NH}_3\text{-N}$,HJ 535-2009)、总

磷(TP-w, GB/T11893-1989), 化学需氧量(COD_{Mn}, GB/T11892-1989).

沉积物理化指标的分析: 称取 10 g 样品倒入 50 mL 烧杯中, 注入 25 mL Milli-Q 水, 用玻璃棒搅拌 1 min 使样品与水混合均匀, 静置 30 min 后用 pH 计和电导率仪依次测定上清液, 记下相应值, 单个样品重复计量三次, 以平均值作为最终 pH-s 和电导率(EC-s). 采用元素分析仪对沉积物中的总有机碳(TOC)和总氮(TN-s)进行测试. 采用标准方法(HJ 632-2011)进行总磷(TP-s)测定.

1.6 生态风险评价

目前大部分研究采用风险熵值(risk quotient, RQ)法对沉积物中 PFASs 进行生态风险评价^[19], 其计算公式如下:

$$RQ = MEC/PNEC, \tag{1}$$

$$RQ_s = \sum RQ_i, \tag{2}$$

式中, RQ 为目标物质风险熵; MEC(measured environmental concentration): 目标物质在样本中检测到的浓度; PNEC(predicted non-effect concentration): 该物质的预测无效应浓度.

沉积物中 PFASs 生态风险根据其 RQ 值可分为 3 个等级: 低等风险(RQ < 0.10)、中等风险(0.10 ≤ RQ < 1.00)和高等风险(RQ ≥ 1.00).

2 结果与讨论

2.1 太湖表层沉积物中 PFASs 的赋存特征

2.1.1 太湖表层沉积物中 PFASs 的赋存水平

太湖表层沉积物共检出 12 种 PFASs, PFTeDA、PFHxDA、PFOcDA、PFHxS、PFDS 未检出. \sum PFASs 浓度范围为 0.10~9.98 ng·g⁻¹ (均值为 1.16 ng·g⁻¹), 与 Guo 等^[15]测得的沉积物浓度具有可比性, 具体各组分浓度和组成占比如图 2 所示. 其中 PFHxA、PFHpA、PFOA、PFNA、PFDA 的检出率为 100.00%, 而 PFPeA、PFTrDA、PFTeDA、PFHxDA、PFOcDA、PFHxS、PFDS 的检出率均低于 40.00%. 沉积物中 PFASs 按检出平均浓度大小排序为: PFOA > PFOS > PFUnDA > PFBA > PFDA > PFNA > PFHxA > PFTrDA > PFDoDA > PFHpA > PFBS > PFPeA. 其中, 长链 PFASs 占 \sum PFASs 的比例是短链 PFASs 的 6.42 倍. PFOA、PFOS 和 PFUnDA 的浓度最高, 分别占 \sum PFASs 比为: 43.01%、16.03% 和 10.05%. 结果表明, 太湖表层沉积物中长链的 PFASs (C₈₋₁₁) 占据主导地位, 体现了其具有较好的亲脂性^[20], 水溶性差且易在沉积物中积累^[21]的特点.

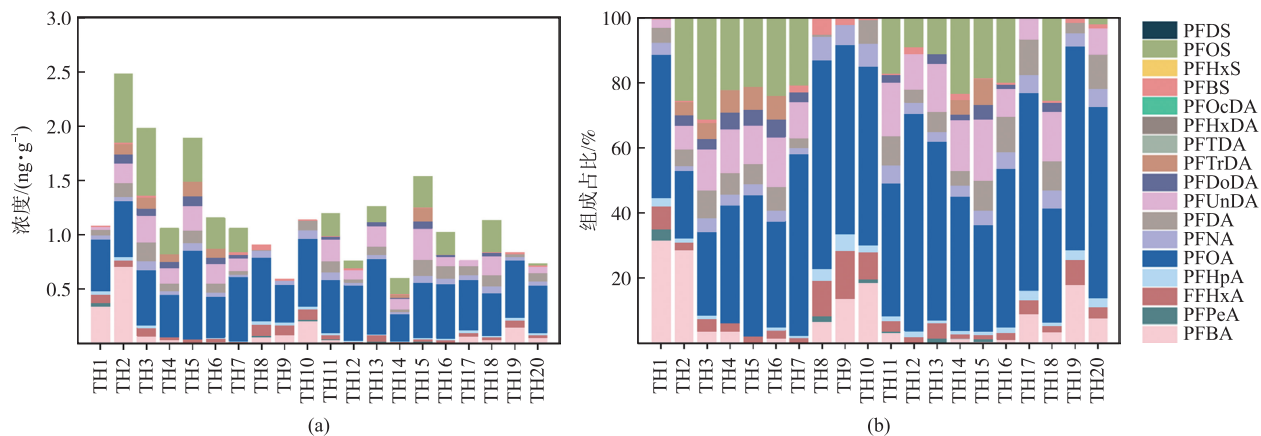


图 2 太湖表层沉积物中 PFASs 浓度(a)与组成占比(b)

Fig. 2 PFASs concentration (a) and composition proportion (b) in surface sediments of Taihu Lake

与国内外其他水体表层沉积物 PFASs 浓度水平相比可知, 太湖表层沉积物中 PFASs 浓度处于中等水平, 低于钱塘江和杭州湾^[22] (均值 75.00 ng·g⁻¹)、渤海湾沿岸^[23] (均值 6.76 ng·g⁻¹)、成都青龙湖^[24] (均值 4.02 ng·g⁻¹), 高于草海湖^[25] (均值 0.59 ng·g⁻¹). 本研究中太湖沉积物 PFASs 检出浓度最高的单体为 PFOA, 将其与不同地区部分典型湖泊中 PFOA 浓度水平进行比较(表 2): 太湖表层沉积物中 PFOA 的检出浓度低于潘阳湖^[26], 明显高于北部湾^[19] 和韩国沿海^[27].

表 2 不同地区水体表层沉积物中 PFOA 浓度比较

Table 2 Comparison of PFOA concentrations in surface sediments of water bodies of different regions

水体	采样时间	PFOA/(ng·g ⁻¹)	参考文献
太湖	2022年5月	0.249~0.818	本研究
潘阳湖	2019年7、12月	7.1~70	[26]
北部湾	2019年4月	0.04~0.25	[19]
韩国沿海	2018年2—5月	<0.005~0.513	[27]
沙营河	2021年4月	0.316~0.856	[28]
钱塘江、杭州湾	2021年8—10月	3.7~49	[22]
南四湖	2013年4月	0.11~0.44	[29]
渤海湾沿岸	2017年10月	0.436~18.9	[23]
黄浦江	2007年10月	5.20~203	[30]
长江和秦淮河南京段	2017—2018年	12.6~66	[31]

2.1.2 太湖表层沉积物中 PFASs 的空间分布特征

太湖表层沉积物中 PFASs 浓度空间分布情况如图 3 所示. 位于太湖北部的 TH2、TH3、TH5 点位的 Σ PFASs 浓度最高, 分别为 $2.48 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, $1.98 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $1.89 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. 一方面可能是因为太湖北部沿岸分布以无锡、宜兴为代表的工业发达城市, 这些城市聚集了较多与 PFASs 相关的化学工业园; 另一方面这些点位都在太湖主要河流交汇口处, 可能与污染物的直接输入和水体自净能力有关^[11]. 在 8 个采样湖区中, 竺山湾湖区的沉积物 PFASs 浓度(均值 $2.48 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$)明显高于其他区域, 其次是贡湖湾(均值 $1.57 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$)和梅梁湾(均值 $1.48 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$). 这一结果与 Ma 等^[14,32]得出的梅梁湾是太湖污染较为严重区域的结论相一致. 太湖表层沉积物中 PFOA 最大浓度值出现在 TH5 点位($0.82 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$)和梅梁湾湖区(均值 $0.65 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$), 符合梅梁湾水域较为封闭、水体流动性小的事实^[20]. 且 PFOA 浓度明显高于 2010 年平水期太湖梅梁湾表层沉积物中 PFOA 值(均值 $0.07 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$)^[15], 这一结果说明有关 PFOA 限制使用条令的执行可能存在滞后性和行动偏差, 其实施效果也需要经过一定时间才可能呈现. 总体上, 污染源排放、水环境因素、人类活动皆会对太湖沉积物中 PFASs 的空间分布特征造成影响.

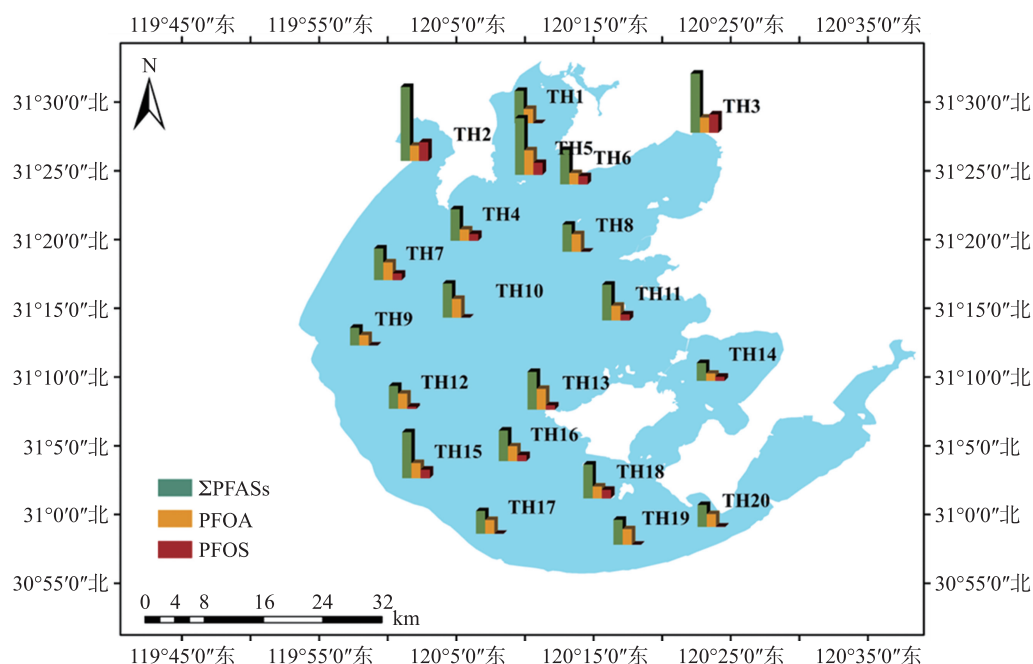


图 3 太湖表层沉积物中 PFASs 浓度空间分布情况

Fig. 3 Spatial distribution of PFASs concentrations in surface sediments of Taihu Lake

2.1.3 太湖表层沉积物中 PFASs 的来源解析

相关性分析结果表明, 各 PFASs 单体之间呈显著正相关 ($P < 0.05$) 关系的有: PFOS 和 PFDA ($r = 0.73$)、PFOS 和 PFUnA ($r = 0.89$)、PFOS 和 PFDoA ($r = 0.94$)、PFOoA 和 PFDA ($r = 0.69$)、PFDoA 和 PFUnA

($r=0.90$)、PFUnA 和 PFDA ($r=0.74$)、PFDA 和 PFNA ($r=0.63$)、PFHpA 和 PFBA ($r=0.82$)、PFHpA 和 PFHxA ($r=0.67$)、PFHxA 和 PFBA ($r=0.68$),表明这些单体之间可能具有相似的来源和运输路线.

使用主成分分析法(PCA 法)对太湖沉积物中 PFASs 进行来源解析,如表 3 所示. 共提取到 3 个因子,特征值>1 的主成分占总方差的 76.71%. 成分 1(占方差的 39.42%)具有高负载的 PFOS、PFDA 和长链 PFCAs(PFDoDA、PFUnDA),其中 PFOS 常被用作电解过程中的抑雾剂^[33],PFDA 常被用作纺织品处理剂^[34],而长链 PFCAs 是生产泡沫灭火剂过程产生的主要副产品,因此可将成分 1 定义为消防、纺织和金属电镀厂来源. 成分 2(占方差的 24.57%)具有高负载的 PFHpA、PFBA、PFHxA,其中 PFHpA、PFHxA 常被用作 PFOA 的短链替代品,PFOA 常被用于有机氟树脂涂料制造过程^[35],PFBA 作为短链 PFCAs 主要用于涂层材料和食品包装材料^[33-34],因此可将成分 2 定义为涂料制造和食品包装来源. 成分 3(占方差的 12.72%)具有高负载的 PFNA、PFOA,这两者都被广泛应用于我国含氟化合物生产的加工助剂^[36-37],因此可将成分 3 定义为氟化物加工制造业源. 综上所述,消防、纺织、金属电镀厂、涂料制造、食品包装、氟化物加工制造业是太湖沉积物 PFASs 的主要污染源.

表 3 太湖表层沉积物中 PFASs 浓度的主成分分析

Table 3 Principal component analysis of the concentrations of PFASs in surface sediments of Taihu Lake

PFASs 单体	成分		
	1	2	3
PFBA	0.277	0.856	-0.229
PFHxA	-0.256	0.677	0.553
PFHpA	-0.281	0.879	0.143
PFOA	0.153	-0.070	0.723
PFNA	0.320	0.150	0.798
PFDA	0.866	-0.031	0.258
PFUnDA	0.886	-0.331	0.105
PFDoDA	0.913	-0.131	0.095
PFBS	-0.314	0.368	0.321
PFOS	0.929	0.097	0.039
方差贡献率(%)	39.420	24.570	12.720
累计方差贡献率(%)	39.420	63.990	76.710

比值法也是一种重要的 PFASs 来源解析方法. 将本研究中太湖沉积物中代表性 PFASs 单体两两比值,如图 4 所示. 太湖所有采样点位的 PFOA/PFNA 的比值皆处于 1.70~56.80 之间,表明太湖受到了较为明显的人为污染^[15]. 除 TH7、TH12、TH13 点位外,PFOA/PFNA 比值(7.14~13.26)均处于 7.00~15.00 范围内,表明受到了含氟制造工业排放污水的影响^[38]. 上述所有采样点位的 PFHpA/PFOA 值(0.00~0.09)均远小于 1.00,表明太湖地区 PFHpA 和 PFOA 的主要来源是工业点源污染^[15]. 针对上述情况,建议进一步加强对太湖流域周边的工业生产和排污管控,以期达到有效控制太湖 PFASs 污染的目的.

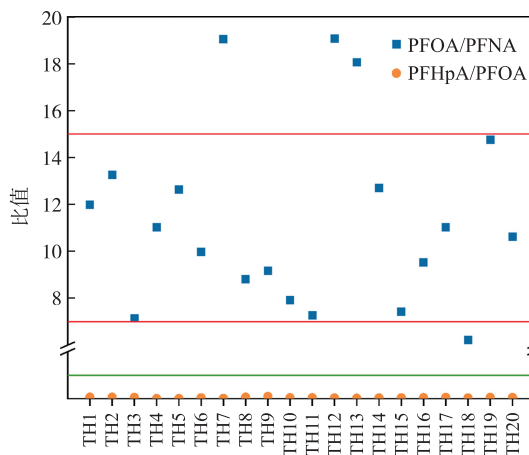


图 4 太湖沉积物中 PFOA/PFNA、PFHpA/PFOA 的比值

Fig. 4 Ratio values of PFOA/PFNA, PFHpA/PFOA in sediments of Taihu Lake

2.2 太湖表层沉积物中 PFASs 的生态风险评价

结合相关文献^[39-41],获取本研究所参考的 PNEC 值,计算太湖表层沉积物的 RQ_s 值来评估沉积物中的生态风险(图 5)。其中 PFOA、PFOS、PFHxA、PFNA、PFDA 和 PFBS 的 PNEC 分别为 8.60×10^1 、 4.90×10^0 、 5.06×10^5 、 7.83×10^5 、 9.57×10^4 、 $1.29 \times 10^6 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。

结果表明,所有点位 PFASs 的 RQ_s 都远低于 1.00,大部分点位低于 0.10,说明大部分点位均处于低风险,但 PFOS 在 TH2、TH3 点位的 RQ_s 值大于 0.10,呈中等生态风险,且在 TH5 点位接近中等生态风险。此结果明显高于曾士宜等^[25]对威宁草海沉积物、李杰等^[42]对汉江沉积物中 PFOA 和 PFOS 的风险评估结果,说明太湖沉积物中 PFASs 对当地环境存在一定潜在生态风险。

由于太湖水域人员活动密集,且 PFASs 容易在沉积物中蓄积,一旦进入生物体也会在体内富集,因此太湖 PFASs 对生态系统的长期危害需引起重视。由于目前关于沉积物中 PFASs 的风险评价参数比较匮乏,本研究只计算了沉积物中 6 种常见的短链和长链 PFASs 的 RQ_s 值,在今后的研究中应进一步完善 PFASs 生态风险评价体系及扩充完善 PNEC 数据库。此外,目前常用的生态风险评价方法也较为笼统、粗略,没有考虑水体环境多介质和多种污染物带来的综合风险,有待进一步开发出更为全面综合的生态风险评价方法。

2.3 太湖表层沉积物中 PFASs 与环境因子的影响关系

将太湖表层沉积物样品中检出率较高的 PFASs 单体与 5 种沉积物理化指标和 10 种水体理化指标分别进行 Spearman 相关性研究,具体结果见图 6。

对沉积物理化指标而言,TN-s 与 PFBA ($P < 0.05$)、PFHxA ($P < 0.01$)、PFUnDA ($P < 0.05$) 存在相关性,TP-s 与 PFHxA ($P < 0.05$)、PFHpA ($P < 0.05$) 存在相关性。沉积物中的氮、磷和 PFASs 可能具有共同的污染源^[43],这些活动可能导致了氮磷营养盐和 PFASs 的积累。并且沉积物中的氮磷可能会与 PFASs 竞争沉积物表面的吸附位点,影响 PFASs 在沉积物中的吸附-解吸平衡,从而影响 PFASs 的吸附和积累。EC-s 与 PFNA ($P < 0.05$) 存在相关性。电导率是表征水体溶解性固体物质或盐度的重要参数^[44],沉积物中的溶解性离子可能会对 PFASs 的吸附能力造成影响。TOC 仅与 PFBA ($P < 0.05$) 存在相关性,与齐彦杰等^[45]得出

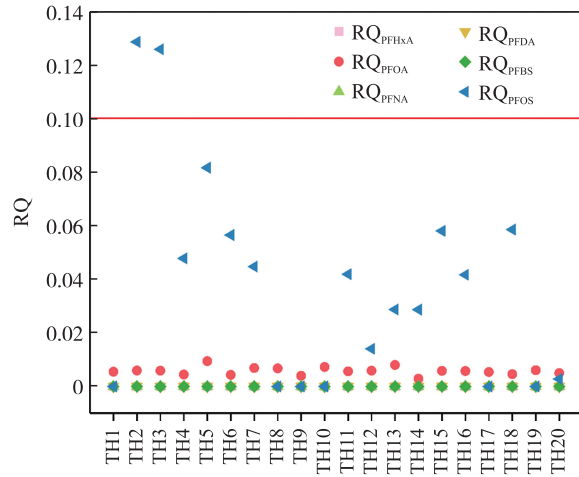
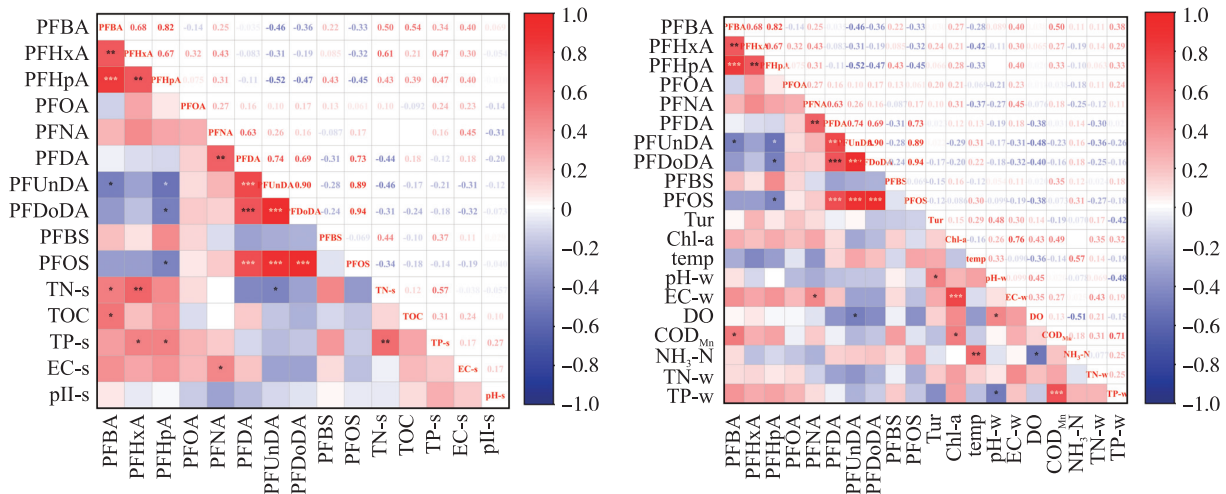


图 5 太湖沉积物中 PFASs 的风险熵值

Fig. 5 RQ values of PFASs in sediments of Taihu Lake



* $p < 0.05$, ** $p < 0.01$, *** $p < 0.001$

图 6 太湖表层沉积物中 PFASs 与沉积物及水体理化指标的相关性

Fig. 6 Correlation between PFASs in sediments with physical and chemical indicators of waters and sediments of Taihu Lake

的结果有所出入.这可能是因为,一方面,PFASs 具有较好的化学稳定性和疏水性,使得其不易与沉积物中的有机物质结合.另一方面,太湖作为一真实、复杂的非稳态系统,其沉积物 PFASs 浓度可能受到多方面因素的影响,如渔船作业等人为因素,风力扰动^[46]等自然因素,因此沉积物的理化指标在某种程度上,并不是影响沉积物 PFASs 浓度的关键因素.这一结果也表明,在今后进行湖泊污染物影响因素模拟实验时,应尽可能同时考虑实际湖泊环境的复杂性、变动性和不确定性.

整体而言,太湖表层沉积物中 PFASs 浓度与水理化指标相关性较弱.仅 EC-w 与 PFNA ($P < 0.05$)、DO 与 PFUnDA ($P < 0.05$)、COD_{Mn} 与 PFBA ($P < 0.05$) 存在相关性.这说明 PFASs 的疏水性导致其更倾向于在沉积物中积累^[47],水理化指标对 PFASs 的溶解度和迁移性影响有限,同时也反映了太湖 PFASs 污染受工业点源影响较大.总体上,太湖沉积物中 PFASs 含量是多方面因素综合作用的结果,因此,在今后对太湖 PFASs 污染的管控也应该从多角度出发,在多个层面采取多种手段进行综合管控.

3 结论

(1)太湖沉积物中共检出以 PFOA、PFOS 为代表的中长链为主的 12 种 PFASs, Σ PFASs 浓度为 0.10~9.98 ng·g⁻¹(均值 1.16 ng·g⁻¹),太湖北部部分点位 PFASs 浓度较高,竺山湾湖区 PFASs 浓度最高.相比于国内外其他研究,太湖沉积物中 PFASs 污染处于中等水平.源解析结果表明,太湖 PFASs 污染受到消防、纺织和金属电镀厂为主的多方面因素影响.

(2)生态风险结果表明,太湖表层沉积物中大部分点位 PFASs 风险较低,但个别点位存在中等风险 ($0.10 \leq RQ < 1.00$),说明目前太湖的 PFASs 存在一定潜在生态风险.考虑到 PFASs 具有生物积蓄性且太湖作为长三角地区重要的水源地,需进一步加强对沉积物 PFASs 的风险管控.

(3)环境因子相关性结果表明,太湖表层沉积物 PFASs 浓度与沉积物、水理化指标存在一定的相关性.说明沉积物中的 PFASs 赋存情况受到污染物自身组成性质、赋存介质、污染源等多方面影响.在探索湖泊环境污染物浓度影响因素时,应充分考虑多方面影响因素和真实湖泊的复杂性、不确定性.

[参考文献]

- [1] BUCK R C, FRANKLIN J, BERGER U, et al. Perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances in the environment: terminology, classification, and origins[J]. *Integrated environmental assessment and management*, 2011, 7(4): 513-541.
- [2] FUJII Y, HARADA K H, KOIZUMI A. Occurrence of perfluorinated carboxylic acids (PFCA) in personal care products and compounding agents[J]. *Chemosphere*, 2013, 93(3): 538-544.
- [3] HERZKE D, OLSSON E, POSNER S. Perfluoroalkyl and polyfluoroalkyl substances (PFAS) in consumer products in Norway: a pilot study[J]. *Chemosphere*, 2012, 88(8): 980-987.
- [4] MÖLLER A, AHRENS L, SURM R, et al. Distribution and sources of polyfluoroalkyl substances (PFAS) in the River Rhine watershed[J]. *Environmental pollution*, 2010, 158(10): 3243-3250.
- [5] PANIERI E, BARALIC K, DJUKIC-COSIC D, et al. PFAS molecules: a major concern for the human health and the environment[J]. *Toxics*, 2022, 10(2): 44.
- [6] WU B, PAN Y T, LI Z, et al. Serum per- and polyfluoroalkyl substances and abnormal lipid metabolism: a nationally representative cross-sectional study[J]. *Environment international*, 2023, 172: 12.
- [7] YU J, HU J Y, TANAKA S, et al. Perfluorooctane sulfonate (PFOS) and perfluorooctanoic acid (PFOA) in sewage treatment plants[J]. *Water research*, 2009, 43(9): 2399-2408.
- [8] WU J, WANG F, WANG Z W, et al. Global performance and trends of research on per- and polyfluoroalkyl substances (PFAS) between 2001 and 2018 using bibliometric analysis[J]. *Chemosphere*, 2022, 295: 11.
- [9] ZHOU J, LI Z, GUO X, et al. Evidences for replacing legacy per- and polyfluoroalkyl substances with emerging ones in Fen and Wei River basins in Central and Western China[J]. *Journal of hazardous materials*, 2019, 377: 78-87.
- [10] PREVEDOUROS K, COUSINS I T, BUCK R C, et al. Sources, fate and transport of perfluorocarboxylates[J]. *Environmental science & technology*, 2006, 40(1): 32-44.
- [11] 张大文, 王冬根, 张莉, 等. 太湖梅梁湾全氟化合物污染现状研究[J]. *环境科学学报*, 2012, 32(12): 2978-2985.
- [12] LI L, ZHAI Z, LIU J, et al. Estimating industrial and domestic environmental releases of perfluorooctanoic acid and its salts in

- China from 2004 to 2012[J]. *Chemosphere*,2015,129:100–109.
- [13] XIE S,WANG T,LIU S,et al. Industrial source identification and emission estimation of perfluorooctane sulfonate in China [J]. *Environment international*,2013,52:1–8.
- [14] CHEN X W,ZHU L Y,PAN X Y,et al. Isomeric specific partitioning behaviors of perfluoroalkyl substances in water dissolved phase ,suspended particulate matters and sediments in Liao River Basin and Taihu Lake,China[J]. *Water research*,2015,80: 235–244.
- [15] GUO C,ZHANG Y,ZHAO X,et al. Distribution,source characterization and inventory of perfluoroalkyl substances in Taihu Lake,China[J]. *Chemosphere*,2015,127:201–207.
- [16] MA X,SHAN G,CHEN M,et al. Riverine inputs and source tracing of perfluoroalkyl substances (PFASs) in Taihu Lake , China[J]. *Science of the total environment*,2018,612:18–25.
- [17] AHMED M B,JOHIR M A H,MCLAUGHLAN R,et al. Per- and polyfluoroalkyl substances in soil and sediments : occurrence,fate,remediation and future outlook[J]. *Science of the total environment*,2020,748:12.
- [18] AVELLÁN-LLAGUNO R D,LIU X B,DONG S J,et al. Occurrence and toxicity of perfluoroalkyl acids along the estuarine and coastal regions under varied environmental factors[J]. *Science of the total environment*,2021,769:15.
- [19] XIAO S K,WU Q,PAN C G,et al. Distribution,partitioning behavior and potential source of legacy and alternative per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) in water and sediments from a subtropical Gulf, South China Sea [J]. *Environmental research*,2021,201:111485.
- [20] 周龙飞,陈文静,张扬,等. 太湖梅梁湾水环境中全氟和多氟化合物的污染特征及风险评估[J]. *环境化学*,2023,42 (10):3408–3419.
- [21] LAU C,ANITOLE K,HODES C,et al. Perfluoroalkyl acids:a review of monitoring and toxicological findings[J]. *Toxicological sciences*,2007,99(2):366–94.
- [22] CHENG H X,JIN H B A,LU B,et al. Emerging poly- and perfluoroalkyl substances in water and sediment from Qiantang River–Hangzhou Bay[J]. *Science of the total environment*,2023,875:8.
- [23] LIU Y Q,ZHANG Y,LI J F,et al. Distribution,partitioning behavior and positive matrix factorization-based source analysis of legacy and emerging polyfluorinated alkyl substances in the dissolved phase,surface sediment and suspended particulate matter around coastal areas of Bohai Bay,China[J]. *Environmental pollution*,2019,246:34–44.
- [24] 雷梦真,何锦秋,张洪利,等. 成都市典型湿地公园全氟化合物的污染特征及风险评估[J]. *环境化学*,2024,43(9):1–11.
- [25] 曾士宜,杨鸿波,彭洁,等. 贵州草海湖泊表层水与沉积物中全氟化合物的污染特征及风险评估[J]. *环境化学*,2021, 40(4):1193–1205.
- [26] TANG A P,ZHANG X H,LI R F,et al. Spatiotemporal distribution,partitioning behavior and flux of per- and polyfluoroalkyl substances in surface water and sediment from Poyang Lake,China[J]. *Chemosphere*,2022,295:11.
- [27] LEE J W,LEE H K,LIM J E,et al. Legacy and emerging per- and polyfluoroalkyl substances (PFASs) in the coastal environment of Korea:occurrence,spatial distribution,and bioaccumulation potential[J]. *Chemosphere*,2020,251:126633.
- [28] ZHANG Y H,DING T T,HUANG Z Y,et al. Environmental exposure and ecological risk of perfluorinated substances (PFASs) in the Shaying River Basin,China[J]. *Chemosphere*,2023,339:139537.
- [29] CAO Y X,CAO X Z,WANG H,et al. Assessment on the distribution and partitioning of perfluorinated compounds in the water and sediment of Nansi Lake,China[J]. *Environmental monitoring and assessment*,2015,187(10):9.
- [30] LI F,ZHANG C J,QU Y,et al. Quantitative characterization of short- and long-chain perfluorinated acids in solid matrices in Shanghai,China[J]. *Science of the total environment*,2010,408(3):617–623.
- [31] DONG H K,LU G H,YAN Z H,et al. Distribution,sources and human risk of perfluoroalkyl acids (PFAAs) in a receiving riverine environment of the Nanjing urban area,East China[J]. *Journal of hazardous materials*,2020,381:120911.
- [32] MA X X,SHAN G Q,CHEN M,et al. Riverine inputs and source tracing of perfluoroalkyl substances(PFASs) in Taihu Lake , China[J]. *Science of the total environment*,2018,612:18–25.
- [33] SHI B,WANG T Y,YANG H F,et al. Perfluoroalkyl acids in rapidly developing coastal areas of China and South Korea: Spatiotemporal variation and source apportionment[J]. *Science of the total environment*,2021,761:143297.
- [34] MA D H,ZHONG H F,LV J T,et al. Levels,distributions,and sources of legacy and novel per- and perfluoroalkyl substances (PFAS) in the topsoil of Tianjin,China[J]. *Journal of environmental sciences*,2022,112:71–81.
- [35] 梅胜放. 我国 PFOS/PFOA 的生产、应用以及国内外标准现状[J]. *有机氟工业*,2008(1):21–25.
- [36] LIU J J,ZHANG Y H,LI F,et al. Contamination status,partitioning behavior,ecological risks assessment of legacy and

- emerging per- and polyfluoroalkyl substances in a typical heavily polluted semi-enclosed bay, China [J]. *Environmental research*, 2024, 247: 118214.
- [37] YOUNG C J, FURDUI V I, FRANKLIN J, et al. Perfluorinated acids in arctic snow: new evidence for atmospheric formation [J]. *Environmental science & technology*, 2007, 41(10): 3455–3461.
- [38] ARMITAGE J M, MACLEOD M, COUSINS I T. Comparative assessment of the global fate and transport pathways of long-chain perfluorocarboxylic acids (PFCAs) and perfluorocarboxylates (PFCs) emitted from direct sources [J]. *Environmental science & technology*, 2009, 43(15): 5830–5836.
- [39] HOKE R A, BOUCHELLE L D, FERRELL B D, et al. Comparative acute freshwater hazard assessment and preliminary PNEC development for eight fluorinated acids [J]. *Chemosphere*, 2012, 87(7): 725–733.
- [40] ZHAO Z, TANG J H, XIE Z Y, et al. Perfluoroalkyl acids (PFAAs) in riverine and coastal sediments of Laizhou Bay, North China [J]. *Science of the total environment*, 2013, 447: 415–423.
- [41] VALSECCHI S, CONTI D, CREBELLI R, et al. Deriving environmental quality standards for perfluorooctanoic acid (PFOA) and related short chain perfluorinated alkyl acids [J]. *Journal of hazardous materials*, 2017, 323: 84–98.
- [42] 李杰, 高月, 王之芬, 等. 汉江水体和沉积物中全氟化合物的风险评估 [J]. *北京大学学报(自然科学版)*, 2017, 53(5): 913–920.
- [43] 程新宇, 李岩, 李晔, 等. 太湖沉积物好氧细菌空间分布与氮磷来源及风险 [J]. *环境科学*, 2023, 44(10): 5546–5555.
- [44] 王瑞, 代丹, 张弛, 等. 太湖不同介质电导率时空变化特征 [J]. *环境科学*, 2019, 40(10): 4469–4677.
- [45] 齐彦杰. 中国湖泊沉积物中全氟化合物的空间分布、历史沉积行为及源解析 [D]. 咸阳: 西北农业大学, 2016.
- [46] CHEN F, ZHANG C, BRETT M T, et al. The importance of the wind-drag coefficient parameterization for hydrodynamic modeling of a large shallow lake [J]. *Ecological informatics*, 2020, 59: 101106.
- [47] LI Y S, OLIVER D P, KOOKANA R S. A critical analysis of published data to discern the role of soil and sediment properties in determining sorption of per and polyfluoroalkyl substances (PFASs) [J]. *Science of the total environment*, 2018, 628–629: 110–120.

[责任编辑: 杜忆忱]