

胶州湾多溴联苯醚-153 迁移转化的数值模拟研究

丁晓坤¹, 马得云¹, 王奥博²

(1. 烟台大学 海洋学院 山东 烟台 264000; 2. 鲁东大学 水利工程学院 山东 烟台 264000)

摘要: 多溴联苯醚对海洋生物生长甚至人体健康危害较大, 然而, 我国近海多溴联苯醚的迁移转化及调控机制尚不明确。本文利用数值模型定量分析了胶州湾多溴联苯醚-153 (polybrominated diphenyl ethers 153, BDE-153) 的季节性迁移转化过程。模拟结果表明: 胶州湾 BDE-153 浓度的季节变化呈现明显的夏季单峰分布特征, 溶解态和总颗粒态 BDE-153 的最高浓度分别为 $0.22 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $2.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$; 浮游植物吸收、死亡以及碎屑矿化过程中的 BDE-153 转化速率同样在夏季明显高于其他季节。胶州湾 BDE-153 浓度及其在生化过程中的转化速率均呈自北向南带状衰减规律, 尤其在西北角的大沽河和东北角的墨水河入海口附近数值最高。河流是胶州湾 BDE-153 的关键来源, 其入海速率为 10.5 kg/a , 明显高于海气交换的补给速率。与外海的对流交换是胶州湾 BDE-153 的主要汇, 溶解态和总悬浮颗粒态的输出速率分别为 1.1 kg/a 和 8.0 kg/a 。

关键词: 六溴联苯醚; 季节变化; 迁移转化; 数值模拟; 胶州湾

中图分类号: X142; X55

文献标识码: A

文章编号: 1007-6336(2024)04-0572-09

Numerical simulation on the migration and transformation of polybrominated diphenyl ethers 153 in Jiaozhou bay

DING Xiaokun¹, MA Deyun¹, WANG Aobo²

(1. School of Ocean, Yantai University, Yantai 264000, China; 2. School of Hydraulic Engineering, Ludong University, Yantai 264000, China)

Abstract: Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) pose significant threats to the growth of marine organisms and even human health. However, the migration, transformation, and regulatory mechanisms of PBDEs remain unclear in China's coastal waters. This study utilizes a numerical model to quantitatively analyze the seasonal migration and transformation of polybrominated diphenyl ethers 153 (BDE-153) in Jiaozhou bay. The simulation results revealed that BDE-153 concentration exhibited apparent seasonal variation with a peak in summer, with the highest concentrations for dissolved and total particulate BDE-153 reaching $0.22 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $2.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. Transformation rates of BDE-153 during phytoplankton absorption, mortality, and debris mineralization were also significantly higher in summer than in other seasons. Both concentration of BDE-153 and its transformation rates during biotic processes showed a belt-shaped decrease from north to south with the highest values near the DaGu river in the northwest and the MoShui river in the northeast. Rivers were the key source of BDE-153, with an input flux of 10.5 kg/a , significantly higher than the supply rate from air-sea exchange. Convective exchange with the open sea was the primary sink with output rates of 1.1 kg/a and 8.0 kg/a for dissolved and total suspended particulate forms, respectively.

收稿日期: 2024-01-23, 修订日期: 2024-03-05

基金项目: 烟台大学大学生创新创业训练计划(X202311066017); 国家自然科学基金面上项目(41976013)

作者简介: 丁晓坤(1994—), 男, 山东烟台人, 讲师, 博士, 主要研究方向为近海生态动力学, E-mail: xkding@ytu.edu.cn

通信作者: 王奥博(1994—), 女, 山东枣庄人, 讲师, 博士, 主要研究方向为近海有机污染物迁移, E-mail: abwang6@163.com

Key words: hexabromobiphenyl ether; seasonal variation; migration and transformation; numerical simulation; Jiaozhou bay

多溴联苯醚是工业生产过程中重要的高效阻燃剂,其使用量日益增加。多溴联苯醚是新型持久性有机污染物(POPs)的典型代表,其通过长距离迁移及生物富集可以危害生物生存甚至人体健康^[1]。多溴联苯醚-153(polybrominated diphenyl ethers 153, BDE-153)作为多溴联苯醚的重要组成部分,其在我国近岸海域已被频繁检出^[2-3]。

POPs 在近海的迁移转化过程较为复杂^[4]。作为陆源污染物, BDE-153 主要通过河流输入和大气沉降进入海洋。海水中 BDE-153 自然分解速率较慢,可随海水流动被输送到其他海域,也可以被颗粒物吸附后通过重力沉降被输送到海底。另外,海洋生物的摄食及有机颗粒的矿化分解等生化过程能够进一步影响 BDE-153 的迁移转化^[5]。目前,我们对近海 POPs 的迁移转化及调控机制仍存在疑问:该污染物不同形态浓度的时空分布特征如何? 污染物入海后如何被输送到整个三维水体环境中? 物理和生物等因素的影响孰强孰弱?

受限于人力和物力的不足,污染物实测数据的时空分辨率往往较低,且中间转化过程的速率难以测定。海洋数值模型可以对生物地球化学循环进行定量化分析,是研究 BDE-153 在近海迁移转化及控制机理的有效工具。近几十年来,欧美学者应用数值模型开展的 POPs 相关研究较多^[6],而在我国近海的相关应用极为有限。

本文以胶州湾为例,利用开发改进的海洋水动力-生态-POPs 耦合模型,模拟分析了胶州湾 BDE-153 在不同季节的水平分布,讨论了物理、生化等过程对 BDE-153 迁移转化的影响,可为深入理解我国近海 POPs 的时空分布规律及实施相应环境管理提供重要借鉴。

1 材料与方法

1.1 研究区域

胶州湾是黄海水域的典型半封闭海湾(图 1),面积约 380 km²,平均水深约 7 m^[7]。近年来,随着沿海工农业的发展,大量陆源污染物入海对胶

州湾生态系统影响严重。观测资料表明,胶州湾入海河流、海水、海底沉积物及上层空气中均富含一定浓度的 POPs,其中包含 BDE-153,可能对海洋生物生长甚至人体健康具有重要危害^[3]。

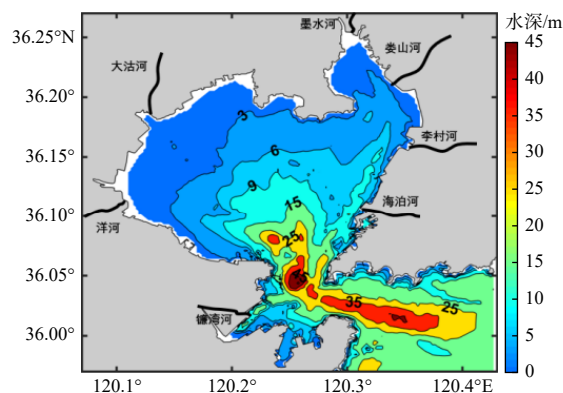


图 1 胶州湾地理位置及水深

Fig. 1 Geographical location and water depth of Jiaozhou bay

1.2 模型介绍

本研究利用三维水动力-生态-POPs 耦合模型,模拟分析 2015 年胶州湾 BDE-153 的时空分布及迁移转化。水动力模块以普林斯顿海洋水动力模型(POM)为基础,其多次应用于我国黄渤海海域的环流模拟^[8-9];生态模块包含浮游植物、浮游动物、碎屑、溶解氧、化学需氧量、铵盐、硝酸盐、亚硝酸盐、磷酸盐和硅酸盐,已成功应用于胶州湾的生态模拟^[10];POPs 模块将 POPs 分为气态(C_a)、溶解态(C_w)、浮游植物摄取态(C_{wpm})、浮游植物吸附态(C_{wps})、碎屑态(C_{wd})和悬浮颗粒态(C_{ws})6 种。如图 2 所示,POPs 模块与水动力-生态模块耦合,可以对 POPs 转化相关的河流输入、海气交换、对流扩散、溶解态衰减、浮游植物摄食与吸附解吸、碎屑矿化与沉降等过程进行动态模拟。 C_{ws} 主要来源于河流输入,入海后进行物理输运,不参与海洋内部生化过程;生物颗粒态包括 C_{wpm} 、 C_{wps} 和 C_{wd} ,总颗粒态包括生物颗粒态和 C_{ws} 。具体模型介绍及配置参考 Wang 等的研究^[11],BDE-153 在迁移转化过程中的参数及取值见表 1。以往研究已对胶州湾水动力和生态模块的模拟结果进行了合理验

证^[10-11], 本文重点验证及讨论分析 POPs 模块的模拟结果。

胶州湾的 BDE-153 的陆源输入包含河流输入和大气沉降。河流中溶解态及悬浮颗粒态 BDE-153 浓度基于观测数据获得^[3, 11-14], 结合不同月份河流入海径流量计算污染物入海通量。由于河流径流量的高时间分辨率数据难以获得, 大沽河径流量数据来自流域水文模型的气候态模拟结果, 其他河流径流量数据来自历年的文

献报道^[11, 15-16]。大气中的 BDE-153 浓度设置为 $8 \times 10^{-6} \mu\text{g}/\text{m}^3$ ^[17], 海气扩散过程通过双膜模型计算, 交换速率受海温、气象条件及海气浓度差等因素控制^[11]。 C_w 和 C_{ws} 的模拟初值分别设置为 $0.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $0.16 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 开边界浓度分别设置为 $0.004 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $0.08 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ^[3]。模型验证的 BDE-153 实测浓度来源于 Ju 等的研究^[3], 其对样品测定进行了较为严格的质量控制, BDE-153 浓度的实测值明显高于其检出限, 准确性较好。

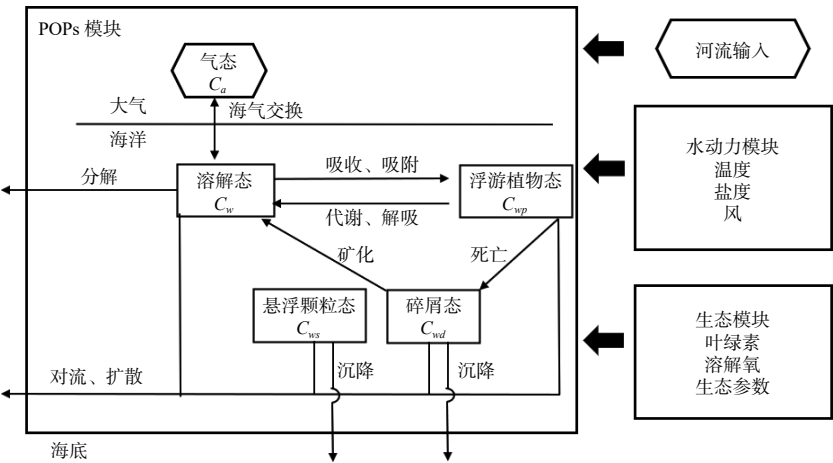


图 2 水动力-生态-POPs 耦合模型概念

Fig. 2 Conceptual diagram of the coupled hydrodynamic-ecological-POPs model

表 1 POPs 模块中 BDE-153 迁移转化过程的参数及取值

Tab.1 Parameters and values of BDE-153 migration and conversion in POPs module

参数符号及单位	定义	数值	参考文献
$\log K_{ow}$	BDE-153辛醇-水分配系数	7.86	[18]
$k_u/\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$	浮游植物摄取BDE-153系数	1545	[19]
k_d/d^{-1}	浮游植物代谢BDE-153系数	0.43	[19]
$k_{su}/\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$	浮游植物吸附BDE-153系数	2766	[19]
k_{sd}/d^{-1}	浮游植物解吸BDE-153系数	15.1	[19]
$t_{1/2}/\text{h}$	BDE-153在水中的半衰期	3600	[20]
$D_w(\text{POPs})/\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	水中BDE-153的扩散系数	0.502×10^{-5}	[21]
$D_w(\text{O}_2)/\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	水中 O_2 的扩散系数	2.3×10^{-5}	[22]
$D_a(\text{POPs})/\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	空气中BDE-153的扩散系数	0.0448	[21]
$D_a(\text{H}_2\text{O})/\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	空气中 O_2 的扩散系数	0.256	[22]
$\Delta H_H/\text{KJ} \cdot \text{mol}^{-1}$	BDE-153相变过程中的焓变	62.1	[21]
$\Delta S_H/\text{KJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$	BDE-153相变过程中的熵变	0.13	[21]

2 结果与讨论

2.1 溶解态 BDE-153 浓度的季节变化

胶州湾溶解态 BDE-153 浓度的季节变化呈

现明显的夏季单峰分布特征(图 3a), 最高浓度出现在 8 月—9 月, 约为 $0.22 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。冬季溶解态 BDE-153 浓度处于全年最低水平, 约为 $0.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$,

模拟数值与观测资料相吻合。由于胶州湾水体中 POPs 浓度的实测数据较少, 本文未收集到同年其他季节的相关实测资料来验证模型。然而, 2021 年 5 月 BDE-153 的实测浓度与本文模拟浓度数量级相同, 并且溶解态和颗粒态的浓度比值也较为吻合^[23]。并且, 另外一种 POPs——壬基酚的实测资料显示其溶解态浓度在胶州湾自 1 月至 7 月逐渐升高^[14], 与本文模拟的溶解态 BDE-153 季节变化趋势一致。由于这两种污染物的源汇过程及迁移转化路径类似, 因此可以在一定程度上证实本文模拟的 BDE-153 季节变化趋势合理。环胶州湾存在大沽河、墨水河、李村河等多条河流, 夏季降雨增多引发的河流径流量增加是导致 BDE-153 夏季出现峰值的关键因素, 这与胶州湾其他有机污染物浓度季节变化的调控机制类似^[11, 24]。

如图 4 所示, 冬季溶解态 BDE-153 浓度在整个胶州湾海域均较低, 模拟的水平分布与实测资料较为一致。春季, 随着河流入海径流量的增

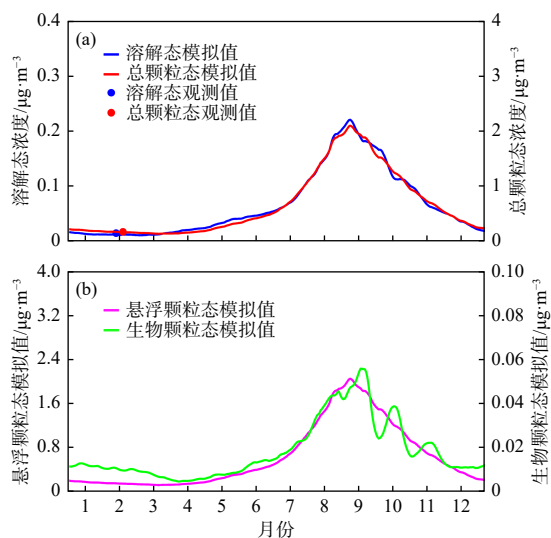


图 3 各形态 BDE-153 浓度的月变化

Fig. 3 Monthly variations in concentrations of different forms of BDE-153

加, BDE-153 浓度在北部海域略高于南部海域, 特别是在西北部大沽河口附近可达 $0.08 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。夏季, 胶州湾北部多条河流径流量的持续增加导

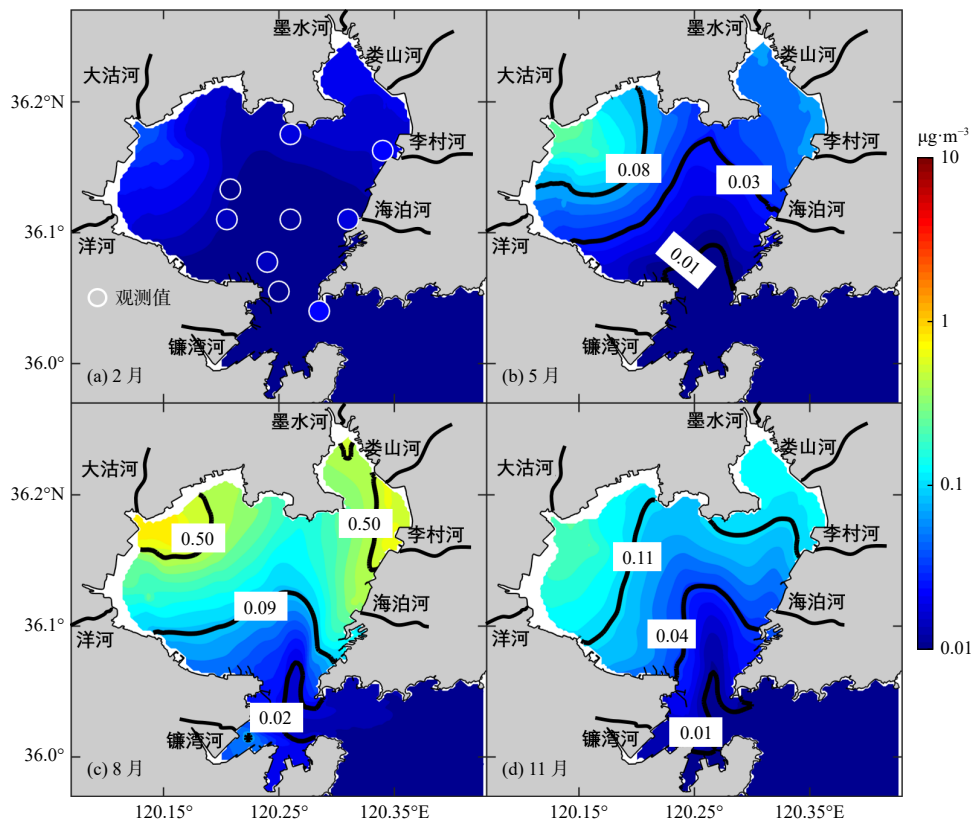


图 4 不同季节表层溶解态 BDE-153 浓度的水平分布

Fig. 4 Horizontal distribution of dissolved BDE-153 concentration in the surface water during different seasons

致溶解态 BDE-153 浓度明显升高,近一半海域的浓度高于 $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$,西北角和东北角最高值可达 $0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$;并且,浓度从北部湾底向南部湾口呈现明显的带状衰减趋势。秋季,随着河流径流量的降低,溶解态 BDE-153 浓度降低明显,但仍呈现北高南低的水平分布趋势,北部湾底最高浓度仍高于 $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。以往研究发现胶州湾 POPs 主要来源于河流输入^[11-12],本文模拟的 BDE-153 浓度从河口区域到外海逐渐递减,该水平分布的模拟结果较为合理。

2.2 颗粒态 BDE-153 浓度的季节变化

颗粒态 BDE-153 浓度同样呈现夏季单峰分布的季节变化趋势(图 3a),然而,其浓度比溶解态浓度高一个数量级,夏季最高浓度为 $2.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$,冬季最低浓度为 $0.22 \mu\text{g}/\text{m}^3$,模拟数值与观测资料相吻合。河流入海携带了大量的泥沙悬浮颗粒,导致海水中颗粒态 BDE-153 浓度较高^[25-26]。如图 3(b)所示, BDE-153 的悬浮颗粒态浓度明显高于生物颗粒态浓度,夏季悬浮颗粒态和生物颗粒态最高浓度分别为 $2.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $0.06 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。

生物颗粒态 BDE-153 自 9 月至 12 月存在短周期波动式降低,这主要是由生物过程中浮游动物周期性捕食引起的浮游植物生物量震荡导致的^[11]。由于目前胶州湾水体颗粒态 BDE-153 的实验观测未区分泥沙悬浮颗粒态和生物颗粒态,因此本文无法验证不同颗粒态的模拟结果。然而,近岸水体中的泥沙悬浮物含量明显高于浮游植物生物量^[27-28],导致水体中泥沙悬浮颗粒态 BDE-153 浓度明显高于生物颗粒态,与本文模拟结果一致(图 3b)。

胶州湾颗粒态 BDE-153 浓度在不同季节均呈现自北向南逐渐降低的水平分布特征(图 5),模拟结果与实测资料较为一致。北部河口及湾底区域是浓度的高值区域,在夏季最高可超过 $4.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$,而南部湾口及湾外的浓度较低。BDE-153 水平分布主要受到河流输入和水交换的共同作用^[11, 25-26]。另外,夏季河流输入通量较高,导致 8 月 BDE-153 颗粒态浓度的南部梯度差异较大,浓度在北部区域是南部湾口的近 20 倍;2 月由于是枯水期, BDE-153 浓度的水平差异最小。

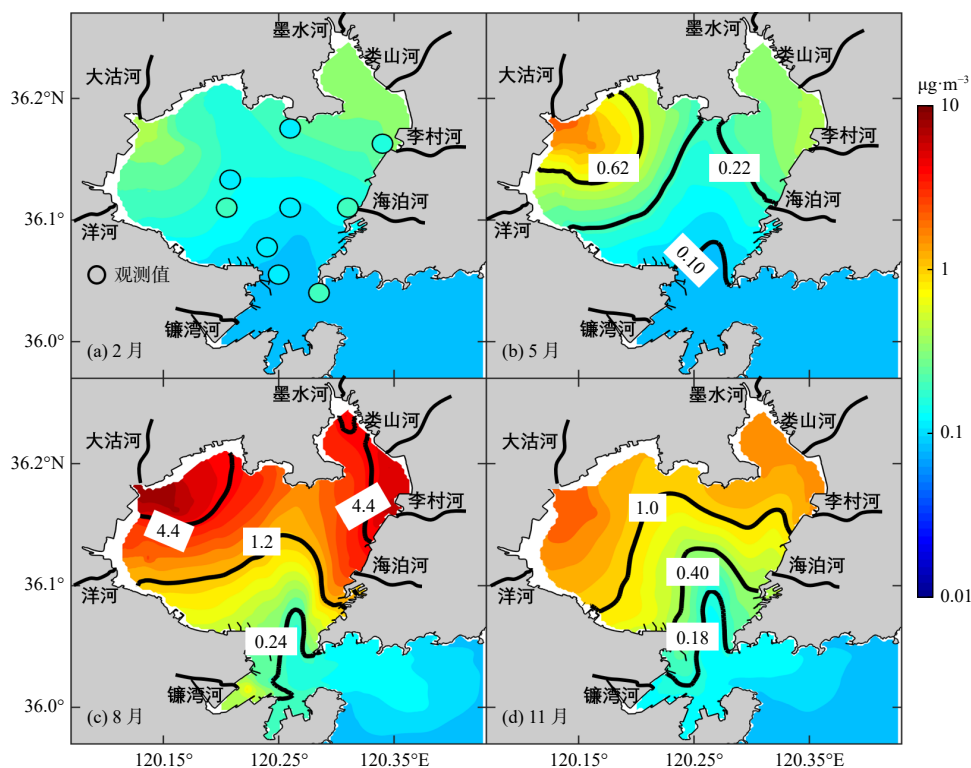


图5 不同季节表层颗粒态 BDE-153 浓度的水平分布

Fig. 5 Horizontal distribution of total particulate BDE-153 concentration in the surface water during different seasons

2.3 BDE-153 迁移转化速率的时空变化

BDE-153 的河流入海通量呈现明显的夏季单峰分布特征(图 6)。8 月溶解态和悬浮颗粒态 BDE-153 入海通量均达到全年最高, 分别为 0.02 kg/d 和 0.11 kg/d。8 月墨水河和大沽河的入海通量明显高于其他 5 条河流, 秋、冬季所有河流的入海通量均处于较低水平。环胶州湾地区为典型的温带季风性气候, 夏季降雨较多, 导致污染物的河流入海通量在夏季明显高于其他季节^[29]。由于 2015 年河流的实测数据难以获得, 本文计算的 BDE-153 河流入海通量仅呈现出夏高冬低的一般性入海规律, 模型可能未准确再现 2015 年胶州湾水体 BDE-153 的时空分布, 但是模拟结果对于深入理解胶州湾 BDE-153 季节性的迁移转化规律仍可提供重要借鉴。

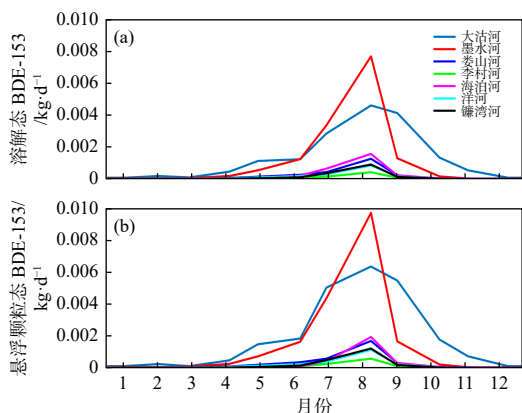


图 6 BDE-153 河流入海通量的月变化

Fig. 6 Monthly variations in riverine flux of BDE-153 to the sea

胶州湾 BDE-153 海表、海底通量存在明显的季节变化。如图 7 所示, BDE-153 海气交换在春、秋、冬 3 个季节均是由大气进入海水, 入海速率低于 0.002 kg/d; 然而, 夏季 BDE-153 由海洋返回大气, 速率约为 0.002 kg/d。夏季, 胶州湾海水温度明显高于其他季节的海温^[11], 同时海水中溶解态 BDE-153 浓度较高(图 4), 导致大气成为 BDE-153 的汇。BDE-153 向海底沉积物的沉降通量呈现明显的夏季单峰分布特征, 沉降速率在 8 月—9 月高达 0.01 kg/d。BDE-153 沉降通量的季节变化趋势与海水中颗粒态浓度变化一致, 河流入海的悬浮颗粒态 BDE-153 可通过重力作

用沉降到海底。

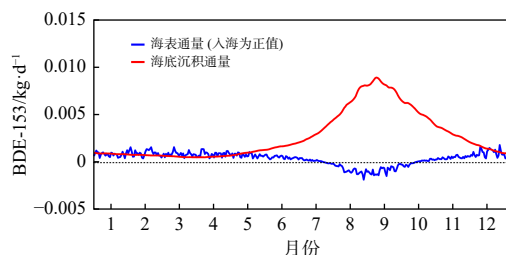


图 7 BDE-153 海表通量及海底沉积通量的月变化

Fig. 7 Monthly variations in surface flux and seafloor deposition flux of BDE-153

冬季, 整个胶州湾海域均是大气 BDE-153 的汇(图 8), 但冬季海气交换通量的水平差异较小。夏季, BDE-153 海气交换在北部超过一半海域均表征为由海洋进入大气, 湾底的河口区域速率最高, 可达 $0.05 \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$; 而在南部湾口及湾外海域则是由大气进入海洋, 主要是由南部海域的溶解态浓度较低所致(图 4c)。BDE-153 沉降通量的空间分布与海水中总颗粒态 BDE-153 浓度变化类似。北部湾底区域的沉降速率在冬季和夏季分别为 $0.05 \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ 和 $1.0 \mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$, 均明显高于湾口和湾外海域, 由近岸向外海呈带状递减趋势。胶州湾 BDE-153 的海表、海底通量在不同季节的水平分布趋势与十溴联苯醚变化类似, 受其在水中的浓度和气象条件等多种因素控制^[11]。

海水内部的 BDE-153 转化速率也呈现明显的季节变化特征。如图 9 所示, 浮游植物对溶解态 BDE-153 净吸收速率的季节变化与溶解态浓度变化类似, 9 月最高速率可达到 0.012 kg/d, 而冬季和春季则处于较低速率水平。浮游植物态 BDE-153 随生物死亡的转化速率与碎屑态矿化速率也在夏季最高, 二者季节变化基本一致。另外, BDE-153 转化速率在不同季节均存在明显水平差异。如图 10 所示, 浮游植物对 BDE-153 的净吸收速率在冬季和夏季均呈现由北向南递减的变化趋势, 尤其是夏季西北角和东北角的河口附近速率高达 0.1 kg/d; BDE-153 随浮游植物死亡及碎屑矿化的转化速率也呈现从湾底向湾口带状递减的水平分布。海水内部 BDE-153 的转化速率与其浓度的变化呈显著正相关关系($p <$

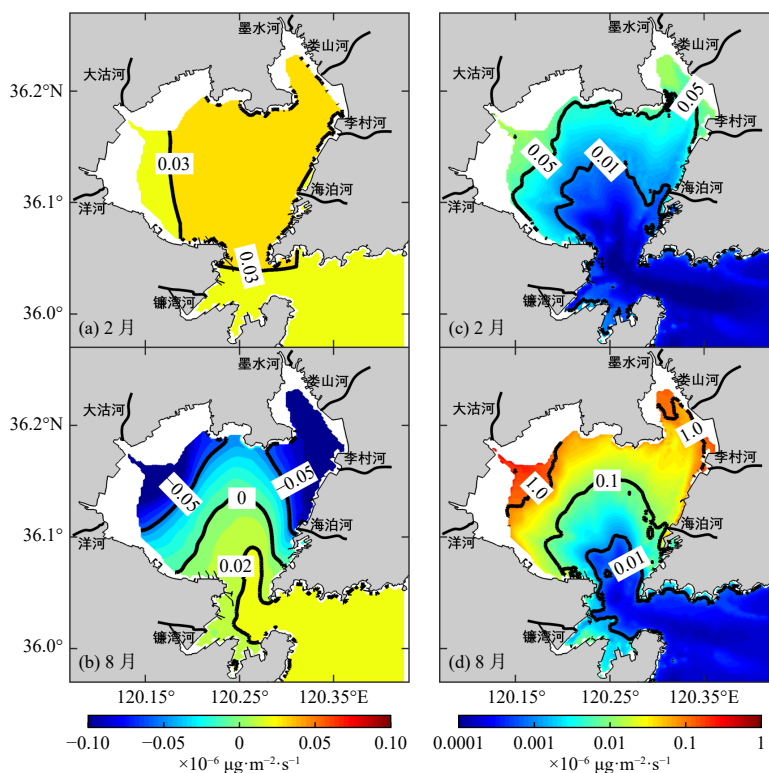


图 8 冬、夏季 BDE-153 海表通量(a、b)与海底沉积通量(c、d)的水平分布

Fig. 8 Horizontal distribution of BDE-153 surface flux (a, b) and seafloor deposition flux (c, d) in winter and summer

0.01), 夏季较高的海水温度是促进浮游植物吸收、死亡和碎屑矿化的重要驱动因素。并且, 胶州湾夏季陆源营养物质入海通量显著高于其他季节, 导致浮游植物在夏季生长繁殖较快^[29], 进而较强的生物活动导致 BDE-153 的迁移转化速率在夏季达到全年峰值。

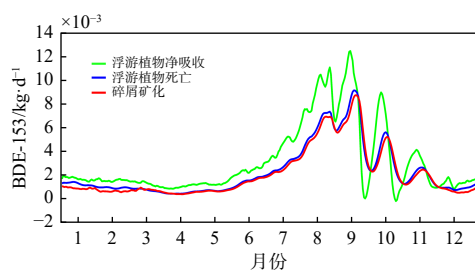


图 9 BDE-153 在不同生物过程中转化速率的月变化

Fig. 9 Monthly variations in transformation rates of BDE-153 in different biological processes

2.4 胶州湾 BDE-153 的收支

为深入理解多重生物地球化学过程对胶州湾 BDE-153 迁移转化的影响, 本文对胶州湾全场 BDE-153 的年转化收支进行了计算分析。如

图 11 所示, 河流输入是胶州湾 BDE-153 最重要的来源, 溶解态和颗粒态 BDE-153 的多条河流入海总量为 10.5 kg/a, 其中西北角的大沽河和东北角的墨水河入海通量较高。大气对胶州湾 BDE-153 来源的贡献仅占 2%, 为 0.15 kg/a。溶解态 BDE-153 的分解、颗粒态的沉降及开边界交换是胶州湾 BDE-153 的汇, 三者的贡献分别为 2%、9% 和 89%。溶解态 BDE-153 的自然分解速率、被浮游植物净吸收速率、碎屑态矿化速率和向外海输送速率分别为 0.16 kg/a、0.38 kg/a、0.77 kg/a 和 1.1 kg/a。随浮游植物死亡的 BDE-153 转化速率为 0.83 kg/a, 明显高于浮游植物态的开边界输出速率。碎屑态 BDE-153 的沉降速率及开边界输出速率均为 0.03 kg/a, 显著低于其矿化分解速率。大量泥沙悬浮颗粒态 BDE-153 随河流入海后, 少部分通过重力作用沉降到海底, 而近 99% 的部分经过开边界交换被输出胶州湾, 输出速率为 7.99 kg/a。虽然大部分 BDE-153 最终通过开边界离开胶州湾, 但是其在湾内水体中仍会参与生物地球化学过程, 从而可

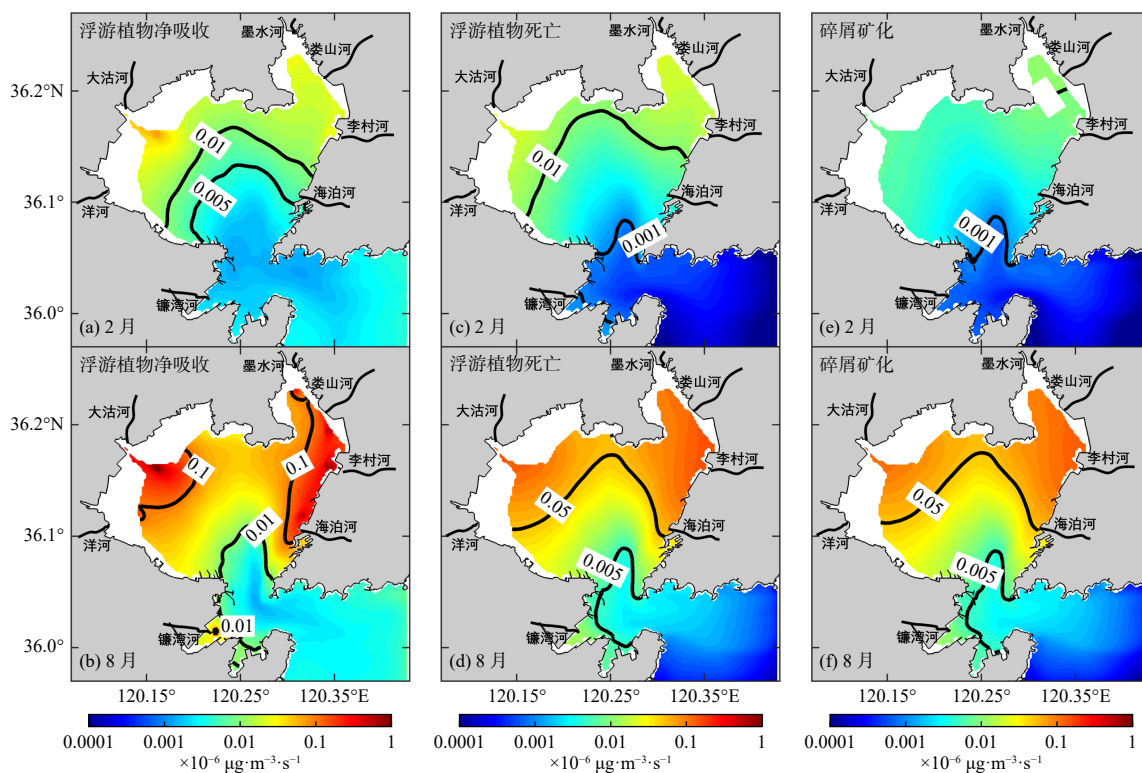


图 10 冬、夏季生物过程中 BDE-153 转化速率的水平分布

Fig. 10 Horizontal distributions of BDE-153 transformation rates in biological processes in winter and summer

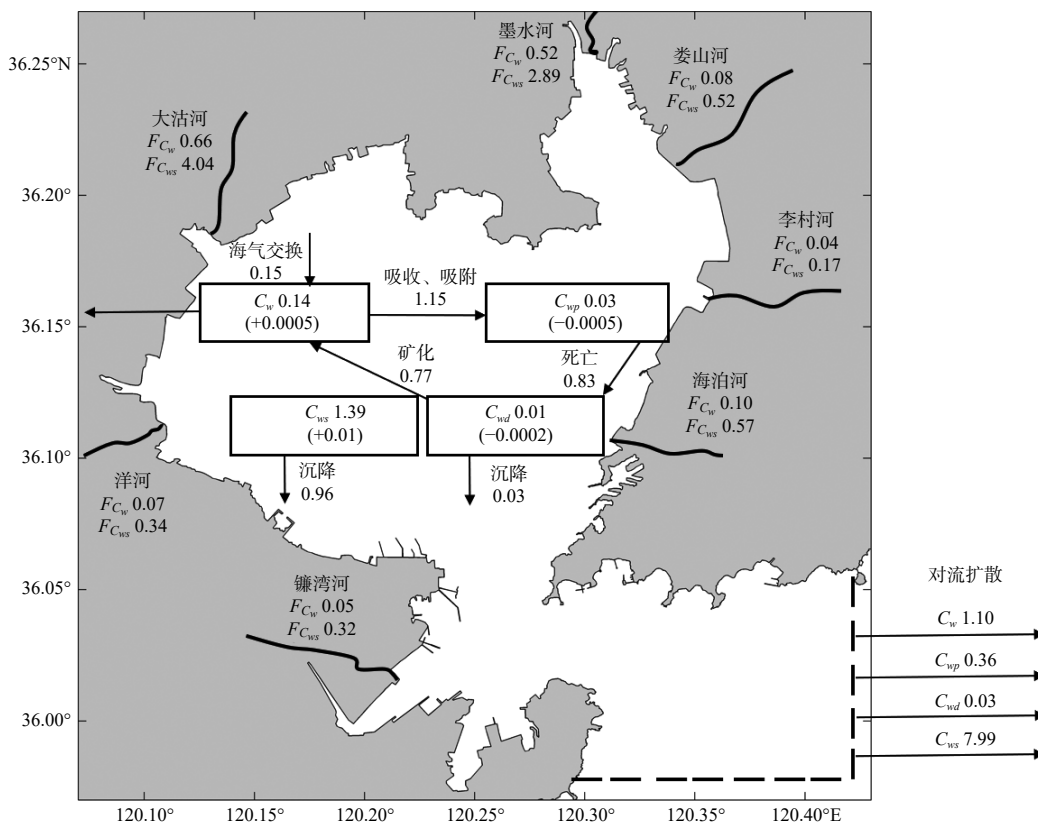


图 11 胶州湾 BDE-153 的年收支情况(单位:kg/a)

Fig. 11 Annual budget of BDE-153 in Jiaozhou bay

能危害海洋生物生存甚至人体健康^[1], 需要进一步开展生态风险评估, 以期为相应环境污染管理提供借鉴。

3 结论

(1) 胶州湾水体中 BDE-153 浓度的季节变化呈现明显的夏季单峰分布特征, 冬季浓度最低。

(2) 溶解态及颗粒态 BDE-153 的迁移转化速率均在夏季最高, 且自北向南呈带状递减趋势。

(3) 西北角和东北角的大量河流输入是导致 BDE-153 浓度及转化速率在夏季最高的关键因素, 海气交换影响较弱; 进入胶州湾的 BDE-153 主要通过开边界交换被去除。

参考文献:

- [1] GE W, MOU Y N, CHAI C, et al. Polybrominated diphenyl ethers in the dissolved and suspended phases of seawater from Sanggou Bay, East China[J]. *Chemosphere*, 2018, 203: 253-262.
- [2] ZHEN X M, LI Y F, TANG J H, et al. Decabromodiphenyl ether versus decabromodiphenyl ethane: source, fate, and influencing factors in a coastal sea nearing source region[J]. *Environmental Science & Technology*, 2021, 55(11): 7376-7385.
- [3] JU T, GE W, JIANG T, et al. Polybrominated diphenyl ethers in dissolved and suspended phases of seawater and in surface sediment from Jiaozhou Bay, North China[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, 557-558: 571-578.
- [4] CHEN C T, LIN T, SUN X, et al. Spatiotemporal distribution and particle-water partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons in Bohai Sea, China[J]. *Water Research*, 2023, 244: 120440.
- [5] LIU L, LI Y F, ZHANG J, et al. Influence of hydrodynamic conditions on the fate of halogenated flame retardants along salinity gradients in a highly polluted micro-tidal estuary[J]. *Science of the Total Environment*, 2023, 893: 164716.
- [6] WAGNER C C, AMOS H M, THACKRAY C P, et al. A global 3-D ocean model for PCBs: benchmark compounds for understanding the impacts of global change on neutral persistent organic pollutants[J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2019, 33(3): 469-481.
- [7] 张会娜, 管 勇, 窦衍光, 等. 胶州湾表层沉积物黏土矿物分布特征及物源分析[J]. *海洋地质前沿*, 2023, 39(8): 20-28.
- [8] YU X J, GUO X Y, GAO H W, et al. Upstream extension of a bottom-advected plume and its mechanism: the case of the Yellow River[J]. *Journal of Physical Oceanography*, 2021, 51(7): 2351-2371.
- [9] LIU Z, WANG H Y, GUO X Y, et al. The age of Yellow River water in the Bohai Sea[J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 2012, 117(C11): C11006.
- [10] LIU Z, WEI H, BAI J, et al. Nutrients seasonal variation and budget in Jiaozhou Bay, China: a 3-dimensional physical-biological coupled model study[J]. *Water, Air, & Soil Pollution: Focus*, 2007, 7(6): 607-623.
- [11] WANG A B, GUO X Y, SHI J, et al. A simulation of the seasonal variation of decabromodiphenyl ether in a bay adjacent to the Yellow Sea[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, 664: 522-535.
- [12] 李正炎, 傅明珠, 卫 东. 胶州湾及其邻近河流中壬基酚等有机污染物的分布特征[J]. *海洋与湖沼*, 2008, 39(6): 599-603.
- [13] 褚春莹, 但丽霞, 蒋海威, 等. 胶州湾入海河流和排污口水体中壬基酚的污染状况调查及入海通量核算[J]. *中国环境监测*, 2013, 29(2): 29-33.
- [14] FU M Z, LI Z Y, GAO H W. Distribution characteristics of nonylphenol in Jiaozhou Bay of Qingdao and its adjacent rivers[J]. *Chemosphere*, 2007, 69(7): 1009-1016.
- [15] 浦 祥. 大沽河流域非点源氮输出及其对胶州湾水质影响的数值研究[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2011: 1-66.
- [16] 赵 瑾. 环胶州湾河流对胶州湾水沙输送的数值模拟[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2007: 1-82.
- [17] JIN J M, WANG Y, LIU W Z, et al. Polybrominated diphenyl ethers in atmosphere and soil of a production area in China: levels and partitioning[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2011, 23(3): 427-433.
- [18] BAO L J, YOU J, ZENG E Y. Sorption of PBDE in low-density polyethylene film: implications for bioavailability of BDE-209[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2011, 30(8): 1731-1738.
- [19] DACHS J, EISENREICH S J, BAKER J E, et al. Coupling of phytoplankton uptake and air-water exchange of persistent organic pollutants[J]. *Environmental Science & Technology*, 1999, 33(20): 3653-3660.
- [20] WANIA F, DUGANI C B. Assessing the long-range transport potential of polybrominated diphenyl ethers: a comparison of four multimedia models[J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2003, 22(6): 1252-1261.
- [21] CETIN B, ODABASI M. Measurement of Henry's law constants of seven polybrominated diphenyl ether (PBDE) congeners as a function of temperature[J]. *Atmospheric Environment*, 2005, 39(29): 5273-5280.

- communities in air and aqueous environments[J]. Journal of Hazardous Materials, 2022, 434: 128891.
- [24] LIU Z Y, ZHU Y J, LV S S, et al. Quantifying the dynamics of polystyrene microplastics UV-aging process[J]. Environmental Science & Technology Letters, 2022, 9(1): 50-56.
- [25] LEE Y K, MURPHY K R, HUR J. Fluorescence signatures of dissolved organic matter leached from microplastics: Polymers and additives[J]. Environmental Science & Technology, 2020, 54(19): 11905-11914.
- [26] SUN Y Z, JI J H, TAO J G, et al. Current advances in interactions between microplastics and dissolved organic matters in aquatic and terrestrial ecosystems[J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2023, 158: 116882.
- [27] LI G Q, CAI L, LIU Y N. Different effects of conventional and biodegradable microplastics on the amelioration process of cadmium-contaminated soil[J]. Science of the Total Environment, 2023, 892: 164589.
- [28] LIU R, LIANG J W, YANG Y H, et al. Effect of polylactic acid microplastics on soil properties, soil microbials and plant growth[J]. Chemosphere, 2023, 329: 138504.
- [29] DUAN Z H, CHENG H D, DUAN X Y, et al. Diet preference of zebrafish (*Danio rerio*) for bio-based polylactic acid microplastics and induced intestinal damage and microbiota dysbiosis[J]. Journal of Hazardous Materials, 2022, 429: 128332.
- (本文编辑: 胡莹莹)

~~~~~

(上接第 580 页)

- [22] BIDDLEMAN T F, MCCONNELL L L. A review of field experiments to determine air-water gas exchange of persistent organic pollutants[J]. Science of the Total Environment, 1995, 159(2/3): 101-117.
- [23] FU J, ZHANG H B, LI R J, et al. Spatial distribution, source, and ecological risk of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and hexabromocyclododecanes (HBCDs) in Jiaozhou Bay, China[J]. Marine Pollution Bulletin, 2023, 192: 114978.
- [24] 刘 成, 孙翠竹, 张 贺, 等. 胶州湾表层水体中邻苯二甲酸酯的污染特征和生态风险[J]. 环境科学, 2019, 40(4): 1726-1733.
- [25] LIU L, ZHEN X M, WANG X M, et al. Spatio-temporal variations and input patterns on the legacy and novel brominated flame retardants (BFRs) in coastal rivers of North China[J]. Environmental Pollution, 2021, 283: 117093.
- [26] KE Z X, CHEN D T, LIU J X, et al. The effects of anthropogenic nutrient inputs on stable carbon and nitrogen isotopes in suspended particulate organic matter in Jiaozhou Bay, China[J]. Continental Shelf Research, 2020, 208: 104244.
- [27] DING X K, SHI J, GUO X Y, et al. Interannual variations in the nutrient cycle in the central Bohai Sea in response to anthropogenic inputs[J]. Chemosphere, 2023, 313: 137620.
- [28] LI P, CHEN S L, KE Y H, et al. Spatiotemporal dynamics of suspended particulate matter in the Bohai Sea, China over the past decade from the space perspective[J]. Science of the Total Environment, 2022, 851: 158210.
- [29] 李姗姗, 于晓霞, 张 鹏, 等. 胶州湾入海源区氮磷超载状况分析[J]. 环境科学与技术, 2021, 44(10): 11-18.
- ( 本文编辑: 胡莹莹 )