

淮南—蚌埠段淮河流域沉积物中PAHs的分布及来源辨析

彭欢¹, 杨毅^{1*}, 刘敏¹, 李勇¹, 张谦栋¹, 杨刚²

(1. 华东师范大学资源与环境科学学院, 地理信息科学教育部重点实验室, 上海 200062; 2. 淮河流域水资源保护局, 蚌埠 233001)

摘要:采用GC-MS对淮南至蚌埠段淮河流域水源地、支流及排污口采集沉积物中18种多环芳烃(PAHs)进行定量分析。结果表明,研究区水源地及其支流沉积物中PAHs含量范围为308.12~1090.37 ng/g;排污口沉积物PAHs范围为1308.36~8793.16 ng/g。沉积物PAHs组成以3~4环PAHs为主,5~6环PAHs相对较少。相对于TOC,BC与沉积物总PAHs的含量相关性更好。PAHs组成特征、主成分分析及多特征比值揭示淮南至蚌埠段淮河流域沉积物PAHs主要来源于化石燃料的不完全燃烧,还有少量石油类产品的输入。生态风险评价结果显示,研究区沉积物中多数PAHs化合物已超出ER-L值和ISQV-L值,而姚家湾排污口沉积物PAHs部分化合物已超出ER-H值和ISQV-H值,表明沉积物中的PAHs对研究区环境已造成了极大的生态风险。

关键词:分布;来源;多环芳烃;沉积物;淮河

中图分类号:X131.2; X52 文献标识码:A 文章编号:0250-3301(2010)05-1192-06

Distribution and Origin of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Sediments of the Reaches of Huaihe River (Huainan to Bengbu)

PENG Huan¹, YANG Yi¹, LIU Min¹, LI Yong¹, ZHANG Qian-dong¹, YANG Gang²

(1. Key Laboratory of Geographic Information Science of the Ministry of Education, School of Resources and Environment Science, East China Normal University, Shanghai 200062, China; 2. Water Resources Protection Bureau of the Huaihe River Basin, Bengbu 233001, China)

Abstract: Using GC-MS 18 PAHs have been quantified in sediments from water source areas, tributaries and sewage outfalls at the reaches of Huaihe River (Huainan to Bengbu). The results show that the concentrations of total PAHs ranged from 308.12-1090.37 ng/g in sediments from water source areas and tributaries, and 1308.36-8793.16 ng/g in sediments from sewage outfalls. 3-4 rings were the dominant compounds compared to the 5-6 ring PAHs. Black carbon showed better correlation to PAHs than that of TOC. The composition characterization, principal component analysis and particular ratios of PAHs demonstrated that incomplete combustion of fossil fuels was the main source of PAHs in sediments at reaches of Huaihe River(Huainan to Bengbu), as well as a few anthropogenic releases of oil products. Ecological risk assessment indicated that, most of PAHs compounds in sediments have exceeded ER-L and ISQV-L values, among which part PAHs compounds at Yaojiawan even exceeded ER-H and ISQV-H values, showing the significant potential risk of PAHs to the ecosystem in the study area.

Key words: distribution; origin; polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs); sediments; Huaihe River

多环芳烃(PAHs)是指2个或2个以上苯环以稠环形式相连的化合物,是一类广泛存在于环境中的持久性污染物,具有明显的毒性(致癌、致畸和致突变)和难降解及颗粒活性。通常,PAHs主要源于化石燃料(煤、石油、天然气等)、生物质(秸秆、薪柴等)的不完全燃烧以及石油产品的泄露输入等^[1,2]。其中燃烧过程中产生的PAHs可经大气颗粒物迁移和沉降等途径进入河流,并以多种形式赋存于此。由于PAHs具有溶解度低、蒸气压小及辛醇-水分配系数高的特点,更易于被沉积物吸附^[3]。我国河流众多,一些学者对长江、黄河、珠江、辽河等沉积相PAHs陆续展开了研究^[4~9]。然而,目前有关淮河水

环境中PAHs的研究相对匮乏^[10]。本研究以淮河中游淮南至蚌埠段作为研究区域,分析沉积物中PAHs的组成及分布特征,综合多种手段探讨研究区水环境中PAHs的输入途径及来源,并进行生态风险评价,以期对研究区该类污染物的综合整治提供理论基础和科学依据。

收稿日期:2009-07-02; 修订日期:2009-10-10

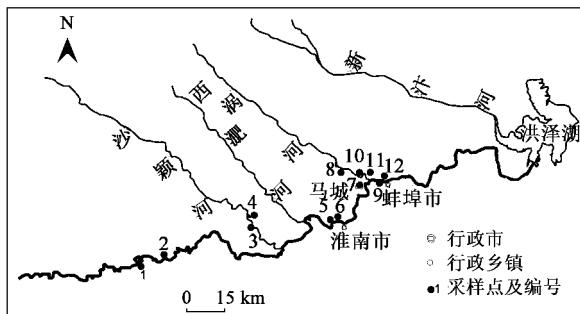
基金项目:国家自然科学基金重点项目(40730526);淮河流域水资源保护局项目

作者简介:彭欢(1986~),男,硕士研究生,主要研究方向为环境地球化学,E-mail:hapboy5566@126.com
* 通讯联系人,E-mail:yiyang.ecnu@gmail.com

1 材料与方法

1.1 样品采集

2008年11月,于淮河中游饮用水源地、支流及附近排污口采集表层沉积物样品(图1),采集点具体包括蚌埠(BB)、淮南(HN)、马城(MC)、淮滨(HB)、沙颍河(SYH)、涡河(GH)、李嘴孜煤矿排污口(LZZ)、姚家湾综合排污口(YJW)、八里桥排污口(BLQ)、席家沟排污口(XJG)、交通路排污口(JTL)。采集后,所有样品立即运回实验室,冷冻风干,过200目筛,保存以备分析。



1. 淮滨 2. 洪汝河 3. 沙颍河 4. 李嘴孜 5. 姚家湾
6. 淮南 7. 马城 8. 涡河 9. 蚌埠闸 10. 八里桥
11. 席家沟 12. 交通路

图1 淮河中游淮南至蚌埠段沉积物采样点分布
Fig. 1 Sampling sites of sediments in the reaches of
Huaihe River (Huainan to Bengbu)

1.2 样品前处理

样品中PAHs的提取采用加速溶剂萃取仪(ASE300,Dionex)进行,称取5 g沉积物样,加入约1 g铜粉脱硫,4~5 g石英砂混匀装入萃取池(规格为34 mL)中,剩余体积用石英砂填充。在高温高压下(100℃,1 500 psi)运用二氯甲烷和丙酮(Merck,农残级)混合溶剂(体积比为7:3)对沉积物进行萃取,循环次数为3次,提取液经无水硫酸钠干燥后浓缩至2~3 mL,过硅胶层析柱,分别用15 mL正己烷和70 mL二氯甲烷与正己烷的混合溶剂(体积比为3:7)淋洗出烷烃和芳烃组分。含芳烃组分的洗脱液加入内标旋转蒸发至2~3 mL后用正己烷进行溶剂置换,浓缩定容至1 mL待分析。

1.3 仪器分析条件

运用气相色谱-质谱联用仪(GC-MS, Agilent 7890A/5975C)选择离子检测法(SIM)对样品中的18种PAHs进行测定,其中包括萘(Nap)、二甲基萘(2MNap)、一甲基萘(1MNap)、苊烯(Acy)、苊

(Ace)、芴(Fluo)、菲(Phe)、蒽(An)、荧蒽(Fl)、芘(Py)、苯并[a]蒽(BaA)、䓛(Chry)、苯并[b/k]荧蒽(B[b/k]F)、茚苯并[1,2,3-cd]芘(InP)、二苯并[a,h]蒽(DahA)和苯并[g,h,i]芘(BghiP)。GC-MS的色谱柱为DB5-MS(30 m×0.25 mm×0.25 μm);柱温程序如下:柱初温80℃,保持1 min,以10℃/min程序升温至235℃,再以4℃/min升温至300℃保持4 min;载气为高纯He。PAHs的含量根据内标法计算,内标化合物为萘-d8、苊-d10、芴-d10、菲-d10、䓛-d12及芘-d12。

1.4 QV/QC质量控制

对沉积物样品进行PAHs加标回收,PAHs回收率为79%~96%。样品平行样相对标准偏差在25%以下。方法空白未检出。

1.5 其它参数测定

总有机碳(TOC)采用重铬酸钾容量法(外加热法)测定^[11],碳黑(BC)采用CTO-375方法^[12],样品经稀HCl去除无机碳后,在马弗炉下375℃经24 h灼烧后的BC含量经元素分析仪(Elementar Vario EL3,Germany)测定。

2 结果与讨论

2.1 PAHs空间分布及组成特征

本次研究测定18种典型PAHs,定量分析结果见表1。水源地及支流沉积物PAHs含量平均为547.31 ng/g,最高值出现在水源MC,达到1 090.37 ng/g;水源地BB其次,为678.64 ng/g;值得注意的是支流沉积物PAHs含量普遍低于水源地沉积物,这可能是由于水源地附近工业企业分布相对较多,受人类活动影响相对较大。排污口沉积物PAHs含量平均为3 902.80 ng/g,最高值出现在淮南YJW综合排污口,达到8 793.16 ng/g,该排污口污水日排放量较大,且主要为化工废水。

按PAHs组成来看,沉积物PAHs主要以3~4环为主,占总量的52.06%~77.38%,除YJW排污口外,4环PAHs(Fl、Py、BaA、Chry)所占比例最多;5~6环PAHs相对较少,占总量的8.13%~33.68%。

图2显示了PAHs总含量分别与TOC和BC分数的相关性.TOC是表征沉积物有机质含量的主要参数,淮河中游沉积物TOC与PAHs含量呈显著正相关($r=0.72, p<0.01$),说明沉积物有机质在控制区域PAHs的归宿上起着一定的作用,该结果与理论上PAHs憎水亲脂性相一致;沉积物BC与PAHs

表 1 淮河中游淮南至蚌埠段沉积物 PAHs 含量/ $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ Table 1 Concentrations of PAHs in sediments from the reaches of Huaihe River (Huainan to Bengbu) / $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$

样点	BB	HN	MC	HB	HRH	SYH	GH	LZZ	BLQ	XJG	JTL	YJW
Nap	27.58	36.78	41.74	29.12	27.17	47.96	13.51	70.98	166.72	105.08	336.35	468.64
2M Nap	27.51	30.34	30.02	19.23	16.91	29.47	13.16	66.87	83.84	71.23	332.79	474.36
1M Nap	12.76	15.33	15.57	8.48	7.13	12.28	5.48	31.56	38.68	33.33	163.28	331.30
Acy	1.50	2.12	2.47	0.73	0.66	1.86	0.46	2.53	2.77	8.96	58.16	124.26
Ace	10.12	7.77	18.30	2.17	3.00	6.47	1.78	9.91	10.58	18.51	56.60	786.10
Fluo	22.00	18.88	24.17	9.39	8.02	16.08	6.72	39.94	46.32	57.81	228.87	663.63
Phe	91.99	57.07	135.06	28.47	23.31	55.52	20.61	104.14	167.54	160.26	1 253.57	2 278.85
An	18.90	11.31	23.28	3.33	3.25	13.12	1.60	11.13	27.28	35.22	182.62	400.44
Fl	119.22	55.35	207.88	11.17	11.79	59.70	6.96	49.07	76.47	70.76	1 164.61	1 090.04
Py	93.70	49.19	172.83	9.31	8.03	45.34	5.47	40.38	78.81	43.97	983.43	998.30
BaA	38.96	38.30	44.01	49.26	41.07	40.81	44.19	196.54	170.27	191.56	223.23	170.62
Chry	48.43	59.65	49.24	89.53	88.09	55.81	84.40	264.81	820.36	227.28	178.06	291.77
B[b/k]F	39.89	44.45	46.62	71.87	59.32	41.18	58.40	213.09	186.28	184.72	127.43	163.08
BaP	35.01	35.65	47.66	44.64	47.01	31.41	40.31	160.96	125.41	140.21	111.43	101.35
InP	41.32	19.62	115.29	8.21	7.76	23.89	2.13	19.85	26.53	14.00	135.37	173.15
DahA	9.53	3.51	22.87	1.10	0.75	3.77	0.55	3.20	6.03	3.33	111.57	62.10
BghiP	40.24	20.63	93.37	4.67	4.29	15.19	2.39	23.41	42.71	11.05	311.21	215.18
Σ PAHs	678.64	505.95	1 090.37	390.68	357.55	499.87	308.12	1 308.36	2 076.59	1 377.29	5 958.59	8 793.16

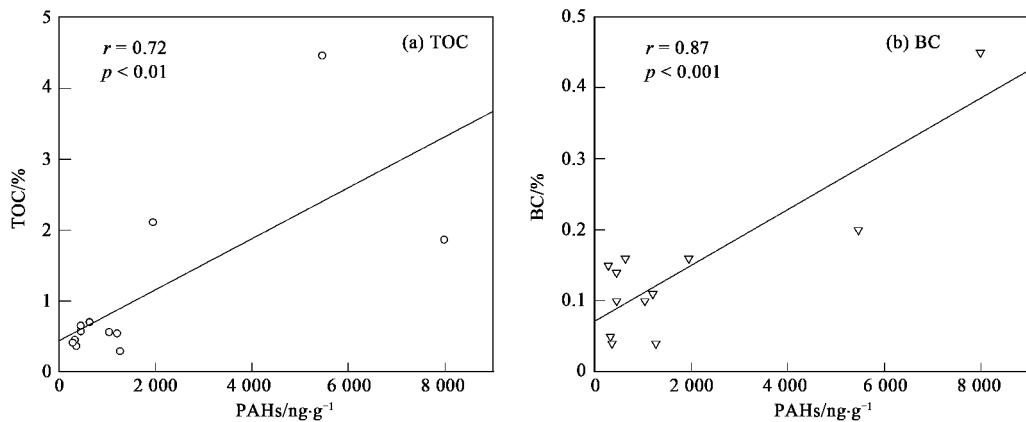


图 2 淮南至蚌埠段淮河流域沉积物 PAHs 与 TOC 和 BC 的相关关系

Fig. 2 Relationship between PAHs and TOC and BC in sediments from the reaches of Huaihe River (Huainan to Bengbu)

含量呈极显著正相关 ($r = 0.87, p < 0.001$), 表明相对 TOC, BC 对研究区沉积物中 PAHs 的赋存更具意义。

2.2 PAHs 来源辨析

环境中 PAHs 来源比较复杂, 不同成因的 PAHs 具有结构和组分差异, 并且在迁移和沉积过程中保持稳定, 因而 PAHs 组分特征可作为区分污染来源的依据^[3]。低分子量 PAHs(2 ~ 3 环) 主要来源于石油类产品和化石燃料的低中温不完全燃烧或天然成岩过程, 高分子量 PAHs(4 环及以上) 主要来源于化石燃料高温燃烧与裂解^[13]。由图 3 可知, 淮南至

蚌埠段淮河流域沉积物中, 除淮南 YJW 排污口外, 其余样点低分子量 PAHs 含量均低于高分子量, 说明该段沉积物 PAHs 主要来源于化石燃料的高温与裂解, 而 YJW 排污口沉积物 PAHs 主要来源于石油类产品和化石燃料的低中温不完全燃烧或天然成岩过程。

因子/主成分分析是研究区域复杂特征源谱的一种有效手段^[13]。因此, 可通过对各主要来源的相对贡献进行半定量描述。不同燃烧源的 PAHs 都有各自的特征化合物, 几种常见污染源的特征化合物如表 2^[14 ~ 24] 所示。鉴于本研究只检测了 18 种 PAHs

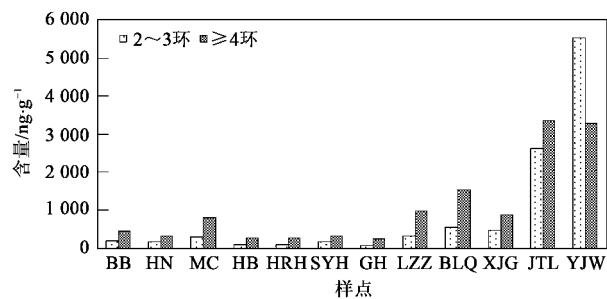


图3 淮河中游淮南至蚌埠段沉积物不同环数PAHs的分布

Fig. 3 Distribution of different ringed PAHs in sediments from the reaches of Huaihe River (Huainan to Bengbu)

浓度,表2中没有罗列更多的烷基化PAHs特征化合物。沉积物中18种PAHs主成分分析结果如表3所示,沉积物PAHs可提取三类主成分,第一主成分的Nap、2M Nap、1M Nap、Acy、Phe、An、Fl、Py和高分子量的BghiP载荷较高,反映了原油、原煤释放及煤炭和汽油的不完全燃烧来源,贡献率为72.73%;第二主成分B[b/k]F、BaP载荷较高,反映了柴油燃烧来源,贡献率在16.86%;第三主成分以DahA、BghiP载荷较高,反映了交通燃油排放来源,贡献率为6.74%。

表2 不同PAHs来源的特征化合物

Table 2 Diagnostic PAHs components from different PAHs sources

来源	特征化合物	文献
原油,原煤	Nap, 2M Nap, 1M Nap	[14 ~ 19]
煤燃烧	Phe, An, Fl, Py	[21 ~ 23]
柴油燃烧	InP, B[b/k]F, BaP	[24]
交通燃油排放	BghiP, Phe	[21]
焦炉	Fluo, Ace	[20]

研究表明,An/(Phe+An)、Fl/(Fl+Py)、BaA/(BaA+Chry)、InP/(InP+BghiP)等比值可作为来源指标分析PAHs来源^[25]。火成来源PAHs中低分子量PAHs化合物(LMW)含量较低,而高分子量PAHs化合物(HMW)含量较高,其LMW/HMW<1;而石油来源PAHs LMW/HMW>1^[26,27]。由于An和BaA相对于Phe和Chry在大气中较容易产生光降解,原始组分信息在大气迁移过程中可能不会保留^[28]。考虑到沉积物作为多种途径来源污染物的汇,因此本研究采用LMW和HMW、InP/(InP+BghiP)和Fl/(Fl+Py)比值作为来源指标。从2~3环及≥4环PAHs含量分布(图3)可看出,除YJW排污口沉积物PAHs LMW/HMW>1,其余样点沉积物PAHs LMW/HMW<1,指示了YJW排污口沉积物PAHs主要为石油来源,而其余样点沉积物PAHs

为火成来源。从沉积物InP/(InP+BghiP)和Fl/(Fl+Py)比值(图4)可看出,BLG排污口沉积物中Fl/(Fl+Py)值介于0.4~0.5且InP/(InP+BghiP)值介于0.2~0.5,指示了BLQ排污口沉积物中的PAHs主要来源于石油产品的不完全燃烧;水源地BB、MC,支流HB、HRH、SYH,排污口XJG沉积物Fl/(Fl+Py)>0.5且InP/(InP+BghiP)>0.5,暗示上述样点沉积物PAHs主要来源为木材、煤炭和草类的不完全燃烧;而水源地HN,支流GH,排污口JTL、LZZ、YJW沉积物Fl/(Fl+Py)>0.5且InP/(InP+BghiP)介于0.2~0.5,表明其为石油类产品及木材、煤炭和草类的不完全燃烧的混合来源。

表3 沉积物PAHs主成分分析

Table 3 Principal component analysis (PCA)
for individual PAH in sediments

PAHs	主成分		
	1	2	3
Nap	0.987	0.088	-0.029
2M Nap	0.996	-0.022	-0.023
1M Nap	0.979	-0.070	-0.185
Acy	0.969	-0.139	-0.191
Ace	0.831	-0.157	-0.527
Fluo	0.945	-0.103	-0.307
Phe	0.984	-0.123	-0.123
An	0.970	-0.131	-0.203
Fl	0.954	-0.167	0.243
Py	0.965	-0.166	0.196
BaA	0.649	0.707	0.229
Chry	0.264	0.767	-0.155
B[b/k]F	0.463	0.868	-0.078
BaP	0.434	0.865	0.100
InP	0.877	-0.271	0.146
DahA	0.846	-0.159	0.503
BghiP	0.888	-0.149	0.424
来源估计	原油、原煤;煤炭与汽油等不完全燃烧	柴油燃烧	交通燃油排放
贡献率/%	72.73	16.86	6.74

综上所述,淮南至蚌埠段淮河流域沉积物中PAHs主要来源于矿物燃料的不完全燃烧,此外也有少量的石油类产品输入。

3 PAHs生态风险评价

目前,针对沉积物中有机污染物的风险评价尚未建立起统一的标准,因此,本研究参照Long等^[29]和Chapman等^[30]总结出的生物影响效应指标(表4)进行评价。结果显示,BB沉积物中的Fluo、MC沉积物中的Fluo和Ace等PAHs化合物含量超过ER-L值和ISQV-L值,具有一定生态风险;HN、HB、

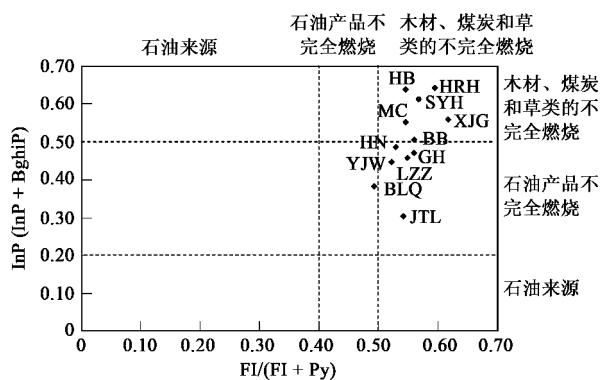
图 4 沉积物 $\text{InP}/(\text{InP} + \text{BghiP})$ 和 $\text{FI}/(\text{FI} + \text{Py})$ 值散点图

Fig. 4 Cross plot for $\text{InP}/(\text{InP} + \text{BghiP})$ and $\text{FI}/(\text{FI} + \text{Py})$ in sediments

表 4 水源地悬浮颗粒 PAHs 化合物与基于生物影响试验的环境质量标准对比/ $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$

Table 4 Environmental guideline values of PAH compounds based on biological effects experiment/ $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$

化合物	ER-L ¹⁾	ER-M ¹⁾	ISQV-L ²⁾	ISQV-H ³⁾
Nap	160	2100	160	2 100
Acy	44	640	44	640
Ace	16	500	16	500
Fluo	19	540	19	540
Phe	240	1 500	240	1 500
An	85	1 100	85	1 100
Fl	600	5 100	600	5 100
Py	665	2 600	665	2 600
BaA	261	1 600	261	1 600
Chry	384	2 800	384	2 800
BbF	— ⁵⁾	NA ⁴⁾	—	—
BkF	—	NA	—	—
BaP	430	1 600	430	1 600
InP	—	—	—	—
DahA	—	—	63.4	260
BghiP	—	—	—	—
Σ PAHs	4 022	44 792	4 022	44 792

1) 对通过不同方法观察或预测能产生生物影响的 PAH 含量进行分级, 其中含量分布在第 10 个百分位值和第 50 个百分位值分别作为生物影响范围低值 (ER-L) 和生物影响范围中值 (ER-M); 2) ISQV-H: 超出此值可能具有严重生物危害影响; 3) ISQV-L: 低于此值生物不利影响不可能发生; 4) NA: 没有最低安全值; 5) 表示尚无风险标准限值

SYH、GH 沉积物 PAHs 各组分含量均低于 ER-L 值, 生态风险较低; 排污口沉积物中, 蚌埠 BLQ 排污口的 Nap、Fluo、Chry, XJG 排污口的 Ace 和 Fluo, JTL 排污口的 Nap、Acy、Ace、Fluo、Phe、An、Fl、Py, 淮南 LZZ 排污口的 Fluo, YJW 排污口的 Nap、Acy、An、Fl、Py 等 PAHs 化合物含量超过 ER-L 值和 ISQV-L 值, 其中 YJW 排污口 Ace、Fluo、Phe 等 PAHs 化合物含

量超过 ER-H 值和 ISQV-H 值, 暗示该采样点已经对该研究区生态环境安全构成严重威胁.

4 结论

(1) 淮南至蚌埠段淮河流域水源地及支流沉积物 PAHs 含量范围为 $308.12 \sim 1 090.37 \text{ ng/g}$, 平均为 547.31 ng/g ; 排污口沉积物 PAHs 范围为 $1 308.36 \sim 8 793.16 \text{ ng/g}$, 平均为 $3 902.8 \text{ ng/g}$. 该段沉积物 PAHs 组成以 3 ~ 4 环 PAHs 为主, 5 ~ 6 环 PAHs 相对较少. 相对于 TOC, BC 与沉积物总 PAHs 的含量相关性更好, 对研究区沉积物中 PAHs 的赋存更具意义.

(2) PAHs 组成特征、主成分分析及多特征比值揭示, 淮南至蚌埠段淮河流域沉积物 PAHs 主要来源于矿物燃料的不完全燃烧, 还有少量石油类产品 的输入.

(3) 生态风险评价结果显示, BB 和 MC 沉积物 PAHs 部分组分化合物超过 ER-L 值和 ISQV-L 值, 排污口沉积物 PAHs 大部分化合物超出 ER-L 值和 ISQV-L 值, YJW 排污口沉积物 PAHs 部分化合物超出 ER-H 值和 ISQV-H 值, 表明淮南至蚌埠段淮河流域沉积物 PAHs 已经产生不同程度生物影响效应, 对该区域的生物健康和生态安全构成威胁.

参考文献:

- [1] Mai B X, Fu J M, Sheng G Y, et al. Chlorinated and polycyclic aromatic hydrocarbons in riverine and estuarine sediments from Pearl River Delta, China [J]. Environ Pollut, 2002, 117: 457-474.
- [2] Mai B X, Qi S H, Zheng E Y, et al. Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in the coastal region of Macao, China: assessment of input sources and transport pathways using compositional analysis [J]. Environ Sci Technol, 2003, 37: 4855-4863.
- [3] 贺勇, 严家平. 淮河中下游底泥中 PAHs 分布及其生态风险评价 [J]. 生态环境, 2006, 15(5): 949-953.
- [4] 许士奋, 蒋新, 王连生, 等. 长江和辽河沉积物中的多环芳烃类污染物 [J]. 中国环境科学, 2000, 20(2): 128-131.
- [5] 刘敏, 侯立军, 邹惠仙, 等. 长江口潮滩表层沉积物中多环芳烃分布特征 [J]. 中国环境科学, 2001, 21(4): 343-346.
- [6] 李恭臣, 夏星辉, 王然, 等. 黄河中下游水体中多环芳烃的分布及来源 [J]. 环境科学, 2006, 27(9): 1738-1743.
- [7] 王平, 徐建, 郭炜锋, 等. 黄河兰州段水环境中多环芳烃污染初步研究 [J]. 中国环境监测, 2007, 23(3): 48-51.
- [8] Sun J H, Wang G L, Chai Y, et al. Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbon (PAHs) in Henan Reach of the Yellow River, Middle China [J]. Ecotox Environ Safe, 2009, 72: 1614-1624.
- [9] 麦碧娴, 林峰, 张干, 等. 珠江三角洲河流和珠江口表层沉积

- 物中有机污染物研究——多环芳烃和有机氯农药的分布及特征[J].环境科学学报,2000,20(2):192-197.
- [10] 况敬静,饶德田.颍河和涡河沉积物多环芳烃的分布特征以及对淮河干流的影响[J].环境科学与管理,2007,37(8):51-54.
- [11] 鲍士旦.土壤农化分析[M].(第三版).北京:中国农业出版社,2000.30-34.
- [12] Gustafsson Ö, Haghseta C, Chan J, et al. Quantification of the dilute sedimentary soot phase: Implications for PAH speciation and bioavailability [J]. Environ Sci Technol, 1997, 31: 203-209.
- [13] Baumard P, Budzinsk H, Michon O. Origin and bioavailability of PAH the Mediterranean Sea from mussel and sediment [J]. Estuar Coast Shelf Sci, 1998, 47:77-90.
- [14] Utvik T I R, Durell G S, Johnsen S. Determining produced water originating polycyclic aromatic hydrocarbons in North Sea waters: comparison of sampling techniques[J]. Mar Pollut Bull, 1999, 38: 977-989.
- [15] Zakaria M P, Takada H, Tsuteumi S, et al. Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs) in rivers and estuaries in Malaysia: a widespread input of perogenic PAHs[J]. Environ Sci Technol, 2002, 36: 1907-1918.
- [16] Luca G D, Furesi A, Leardi R, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons assessment in the sediments of the Proto Torres Harbor(Northern Sardinia, Italy)[J]. Mar Chem, 2004, 86:15-32.
- [17] Wang X C, Sun S, Ma H Q, et al. Sources and distribution of aliphatic and polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments of Jiaozhou Bay, Qingdao, China[J]. Mar Pollut Bull, 2006, 52:129-138.
- [18] Ye B, Zhang Z, Mao T. Pollution sources identification of polycyclic aromatic hydrocarbons of soils in Tianjing area, China [J]. Chemosphere, 2006, 64: 525-534.
- [19] Yang Y, Ligous B, Pies C, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in river floodplain soils: coal and coal-derived particles[J]. Environ Pollut, 2008, 151: 121-129.
- [20] Matt F S, Steven J E, Paul J L. Source apportionment and source/sink relationships of PAHs in the coastal atmosphere Chicago and Lake Michigan [J]. Atmos Environ, 1999, 33: 5071-5079.
- [21] Harrison R M, Smith D J T. Source appointment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons collected from an urban location in Birmingham, UK [J]. Environ Sci Technol, 1996, 30: 825-832.
- [22] Masclet P, Bresson M A, Mouvier G. Polycyclic aromatic hydrocarbons emitted by power stations, and influence of combustion conditions[J]. Fuel, 1987, 66: 556-562.
- [23] Mastral A M, Callen M, Murillo R. Assessment of PAH emissions as a function of coal combustion variables [J]. Fuel, 1996, 75: 1533-1536.
- [24] Li C K, Kamens R M. The use of polycyclic aromatic hydrocarbons as source signatures in receptor modeling [J]. Atmos Environ, 1993, 27A: 523-532.
- [25] Yunker M B, Macdonald R W, Vingarzan R, et al. PAHs in the Fraser River basin: A critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition [J]. Org Geochem, 2002, 33: 489-515.
- [26] Soclo H H, Carrigues P, Ewald M. Origin of polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs) in coastal marine sediments:case studies in Cotonou(Berlin) and Aquitaine(France) areas[J]. Mar Pollut Bull, 2000, 40: 387-396.
- [27] Rocher V, Azimi S, Moilleron R, et al. Hydrocarbons and heavy metals in the different sewer deposits in the Le Marais' catchment (Paris, France):stocks, distributions and origins[J]. Sci Total Environ, 2004, 323: 107-122.
- [28] Fraser M P, Gass G R, Simoneit B R, et al. Air quality model evaluation data for organics. 5. C6-C22 non-polar and semipolar aromatic compounds[J]. Environ Sci Technol, 1998, 32: 1760-1770.
- [29] Long E R, MacDonald D D, Smith S L, et al. Incidence of adverse biological effects within ranges of chemical concentration in marine estuarine sediments[J]. Environ Manage, 1995, 19: 81-97.
- [30] Chapman P M, Allard P J, Vigers G. Development of sediment quality values for Hongkong Special Administration Region: A possible model for other jurisdictions[J]. Mar Pollut Bull, 1999, 38(3):161-169.