

珠江及南海北部海域表层沉积物中多环芳烃分布及来源

罗孝俊, 陈社军, 麦碧娴, 曾永平, 盛国英, 傅家谟

(中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室, 广州 510640)

摘要: 珠江三角洲河流、河口及南海北部近海区域多环芳烃(PAHs)分析表明, PAHs 总量分布范围在 255.9 ~ 16 670.3 ng/g, 整体污染水平处于中偏低水平。分布特征为珠三角河流 > 伶仃洋 > 南海; 珠江广州段是高污染区; 沿南海近海海域 4 条剖面, 随离岸距离增加, 浓度下降。西江、伶仃洋及珠江部分站点石油污染比重大, 南海近海则受燃烧来源比重大。PAHs 来源诊断指标表明, 珠江三角洲河流及伶仃洋更多受石化燃料燃烧的影响, 南海近海区则主要受木柴、煤燃烧的影响。与 1997 年样品的对比表明, 多环芳烃污染程度无明显下降, 但区域内 PAHs 来源从以煤燃烧为主转变为以油燃烧为主, 这种近期能源结构的转变在沉积速率较快的珠三角河流及伶仃洋表层沉积物中得到反映。

关键词: 多环芳烃; 珠江三角洲; 南海; 沉积物

中图分类号: X142 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2005)04-0129-06

Distribution and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Sediments from Rivers of Pearl River Delta and Its Nearby South China Sea

LUO Xiaojun, CHEN Shejun, MAI Bixian, ZENG Yongping, SHENG Guoying, FU Jiemo

(State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Science, Guangzhou 510640, China)

Abstract: Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) are measured in surface sediments from rivers and estuary of Pearl River Delta and its nearby South China Sea. Total PAH concentration varied from 255.9 ~ 16 670.3 ng/g and a moderate to low level compare to relevant areas worldwide. The order of PAHs concentration in sediments was: rivers of Pearl River Delta > estuary > South China Sea, and the most significant PAH contamination was at Guangzhou channel of Zhujiang river. A decrease trend for PAHs concentration with distance from estuary to open sea can be seen in South China Sea. Coal and biomass combustion is the major source of PAHs in nearshore of South China Sea, and petroleum combustion is the main source of pyrolytic PAHs in rivers and estuary of Pearl River Delta according to PAHs diagnostic ratios. Petroleum PAHs are revealed have a high contribution to PAHs in Xijiang River, estuary and some stations in Zhujiang River. A comparison of data from study in 1997 with data from present study indicates that there is no clear change in the PAH concentration over time but the source of PAHs in Pearl River Delta have been change from a main coal combustion to petroleum combustion and being reflect in the sediments in rivers and estuary of Pearl River Delta where there have high sedimentation rate.

Key words: polycyclic aromatic hydrocarbon; Pearl River Delta; South China Sea; sediment

随着人们对有机污染物的全球迁移认识的不断深化, 亚洲热带和亚热带地区持久性有机污染物对全球环境的贡献及其在全球持久性有机污染物再循环中所起作用越来越受人们的关注^[1]。南海北部近海岸带地处亚热带, 毗邻珠江三角洲, 该地区近几十年来经济持续发展, 使得大量的有机污染物通过地表径流和大气干湿沉降等方式进入珠江水系并随河流径流输送进入南海, 使得南海成为珠三角污染物的主要受体, 另一方面, 通过水气交换等形式, 南海也可能成为全球污染物的一个源区。因此相关区域的有机污染物研究就显得格外重要。本研究对珠江三角洲河流、珠江河口及南海近海区域进行了大量的采样并与 1997 年样品进行了对比, 对多环芳烃

在本区域的分布, 来源及近几年的变化情况以及珠江对南海水体沉积物有机污染物的影响进行探讨。

1 实验部分

1.1 样品采集与分析

样品采样区域如图 1。珠江三角洲样品采样时间为 2002-10, 珠江口与南海样品采样时间为 2002-07。表层沉积物样品用抓斗采样器采集, 样品装于玻璃瓶放入冰箱, 运回实验室后, 于 -20℃ 保存至

收稿日期: 2004-10-12; 修订日期: 2004-11-14

基金项目: 中国科学院知识创新工程重要方向项目(ZKCX2-212); 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2003CB415002)

作者简介: 罗孝俊(1972~)男, 博士, 主要从事水体及沉积物环境研究, E-mail: luoxiaoj@gig.ac.cn

分析.

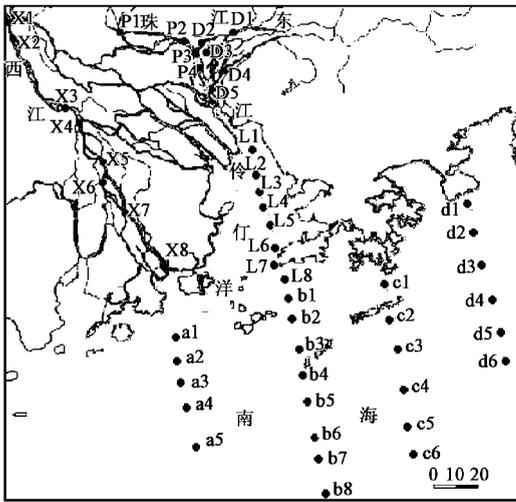


图 1 采样位置

Fig.1 Map of sampling site

样品冷冻干燥后研磨,15g 样品加入回收率指示物标样,200 mL 二氯甲烷索氏抽提 48h,提取液浓缩并置换为正己烷后,过硅胶/氧化铝(2:1)层析柱分离纯化.分别用 15 mL 正己烷、70 mL 二氯甲烷/正己烷(3:7)淋洗烷烃和芳烃组分.芳烃组分浓缩定容为 0.4 mL,加入内标进行 GC-MS 分析,使用内标法和多点校正曲线进行多环芳烃的定量分析,具体分析方法参见文献[2].共检测包括 29 种母

体多环芳烃(16 种优控多环芳烃:二联苯、苯并[ghi]荧蒹、苯并[c]菲、戊环并[cd]芘、三亚苯、苯并[e]芘、苯并[a]荧蒹、茚并[1,2,3-cd]荧蒹、蒽、二苯并[a,c]蒹、苯并[b]蒽、蒽、二苯并[def,mno]蒽).4 种氧代/硫代多环芳烃(二苯并呋喃、二苯并噻吩、苯并萘并[2,3-d]呋喃、苯并[b]萘并噻吩)及其烷基取代多环芳烃共 59 种多环芳烃.

1.2 质量保证与质量控制

氘代回收率指示物控制操作流程的回收率,指示物回收率为萘-d₈: 49.3% ± 14.2%, 二氢芘-d₁₀: 74.8% ± 9.8%, 菲-d₁₀: 79.4% ± 9.8%, 蒽-d₁₂: 95.8% ± 12.6%, 蒽-d₁₂: 86.3% ± 13.8%. 每 10 个样品增加一个方法空白、加标空白、基质加标、基质加标平行样、样品平行样,基质加标回收率:70% ~ 125%,加标空白回收率 52% ~ 97.9%,方法空白除萘有检出外,其它无检出.

2 结果与讨论

2.1 多环芳烃的分布特征及国际对比

图 2 与图 3 显示了所测多环芳烃(59 种)在整个研究区域的分布状况.其浓度范围位于 255.9 ~ 16 670.3 ng/g 之间.污染最为严重的区域位于广州市区,这反映了广州市工业废水和生活污水对水体质量的影响.从广州到狮子洋段多环芳烃浓度迅

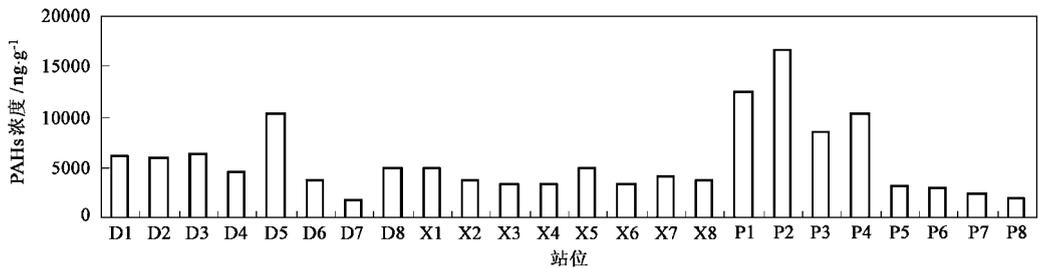


图 2 珠江、西江和东江表层沉积物多环芳烃分布

Fig.2 Distribution of PAHs in Pearl River Delta sediments

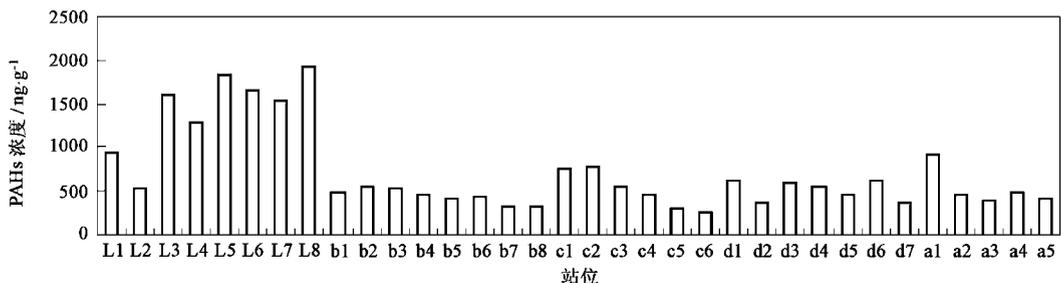


图 3 伶仃洋、南海表层沉积物多环芳烃分布

Fig.3 Distribution of PAHs in Pearl River estuary and its nearby South China Sea sediments

速下降,显然是远离污染源区所致,另外,海潮的稀释作用也是重要原因.东江区域多环芳烃浓度范围为1 860.24 ng/g 至10 299.67 ng/g,东江北正干段(D1 ~ D3)浓度较高,厚街水道 D5 站位出现一个高值,可能在其附近有污染源存在.西江多环芳烃含量为3 272.81 ng/g 至4 967.35 ng/g.整体变化幅度要小于东江与珠江.

伶仃洋与南海多环芳烃污染程度要明显小于珠三角河流,其中伶仃洋内多环芳烃浓度为537.39 ~ 1 930.99 ng/g,南海样品浓度范围为255.90 ~ 911.60 ng/g.伶仃洋内 L1 与 L2 两站点浓度较其它点低是由于这2个站点高的砂石含量所致.L8 点出现高值可能与该点正处于河海交界区域(River-Sea boundary zone)有关.Lisitsin^[3]的研究表明,由于“边际过滤效应(marginal filter)”存在,在该区域,90% ~ 93%的悬浮颗粒物都会因各种物理化学作用而沉淀.南海4条剖面上,都存在着随离岸距离增加浓度下降的趋势,表明了珠江及伶仃洋带来的悬浮颗粒

物沉积的影响.

与其它地区多环芳烃污染的对比有助于了解整个地区的污染状况.由于各采样点地理状况和分析多环芳烃的数目各不相同,在进行比较时要特别注意,一般测定所给出的多环芳烃总量都是分子量为128 ~ 278 之间的母体多环芳烃.本研究中16种优控多环芳烃浓度及世界上其它一些河口、海岸带多环芳烃的浓度列于表1.伶仃洋及南海北部海域多环芳烃浓度与黑海西北部海域、Trieste 海湾、韩国 Kyenoggi 海湾等地浓度相似;与一些工业发达地区的河口、近海岸带如:Casco 海湾、Narragansett 海湾、Kitimat 港、维多利亚港、新加坡近海岸、台湾 Hsin-ta 港相比,浓度低很多,仅比墨西哥 Todos Santos 湾、美国 Chesapeake 海湾、马来西亚河流河口等地略高.珠江三角洲污染程度从表2来看处于中等污染水平.因此南海及珠三角河流河口的污染程度的国际对比处于一个低至中等程度的污染.

表1 不同地区河口及近海岸带多环芳烃浓度(干重)/ng·g⁻¹

Table 1 Worldwide concentrations of PAHs in coastal/estuary sediments(dry wt)/ng·g⁻¹

地点	测量 PAH 数量	浓度范围	平均值	参考文献
亚洲				
厦门, 中国	16	247 ~ 480	367	张祖麟, 等. (2001) ^[4]
长江口	14	263 ~ 6 372	145.9	许世奋, 等. (2000) ^[5]
维多利亚港, 香港	8	700 ~ 26 100	5 277	Hong, et al. (1995) ^[6]
新加坡海岸	22	13 630 ~ 84 920		Basheer, et al. (2003) ^[7]
Kyenoggi Bay, 韩国	24	9.1 ~ 1 400	120	Kim, et al. (1999) ^[8]
马来西亚河流及河口	25	4 ~ 924		Zakaria et al. (2002) ^[9]
美洲				
Casco Bay, 美国	23	16 ~ 20 748	2 900	Kennicutt, et al. (1994) ^[10]
Chesapeake Bay, 美国	8	0.56 ~ 180	52	Forster, et al. (1988) ^[11]
Kitimat Harbour, 加拿大	25	310 ~ 528 000	66 700	Simpson, et al. (1996) ^[12]
Todos Santos Bay, 墨西哥	33	7.6 ~ 813	96	Botello, et al. (1998) ^[13]
澳洲				
悉尼港, 澳大利亚	17	<100 ~ 380 000		McCready, et al. (2000) ^[14]
欧洲				
白海, 俄罗斯	11	13 ~ 208		Savinov, et al. (1999) ^[15]
Gulf of Trieste	17	34.67 ~ 682.29		Notar, et al. (2001) ^[16]
Narragansett Bay	41	569 ~ 216 000		Harmann, et al. (2004) ^[17]
Westerns Baltic sea	22	3 ~ 30 100	4 882	Baumard, et al. (1999) ^[18]
North west Black sea	28	52.6 ~ 269	136	Maldonado, et al. (1999) ^[19]
珠江三角洲	16	217 ~ 2 680	1 028	本研究
珠江河口	16	191 ~ 622	321	本研究
南海近岸带	16	75 ~ 219	135	本研究

2.2 多环芳烃的来源特征

2.2.1 石油污染特征

人为来源的多环芳烃主要包括石油污染相关的

多环芳烃及燃烧产生的多环芳烃.在环境中这2类来源的多环芳烃很难截然分开.根据2种污染类型多环芳烃的特点,人们常利用一定的指数来区分石

油污染与燃烧污染,其中石化燃料污染指数(FFPI, fossil fuel pollution index)和甲基菲指数(MP/P)是2个常用来评价油类污染的指标.石化燃料污染指数被定义为^[20]:

$$FFPI = \{ [N_s + P_s + 0.5 \times (P_s + ClP) + D_s] / \sum PAHs \} \times 100$$

上式中, N_s 、 P_s 、 ClP 和 D_s 分别代表萘、菲、甲基菲、二苯并噻吩及其烷基系列取代物. $\sum PAHs$ 是 2 至 6 环多环芳烃总和. 该值越大, 则表明石油污染所占比重越大. 甲基菲指数是指一取代甲基菲与菲的比值, 该值小于 1, 则主要为燃烧来源污染, 石油排放的甲基菲指数介于 2 ~ 6^[21]. 各沉积物中石化燃料污染指标与甲基菲指数如图 4. 从图 4 可见, 南海表层沉积物具有低的 FFPI 指标和大部分甲基菲指数小于 1 的特征, 显示燃烧来源为主. 西江与伶仃洋样品显示出高的 FFPI 指标和高的甲基菲指数, 显示出较重的油类污染. 珠江 P1 与 P2 站点甲基菲与 FFPI 值较高, 表明较多的油类污染. 东江总体看燃烧来源多环芳烃贡献较大, 石油污染除少数站点较高外, 其它都显示了低油类污染特征.

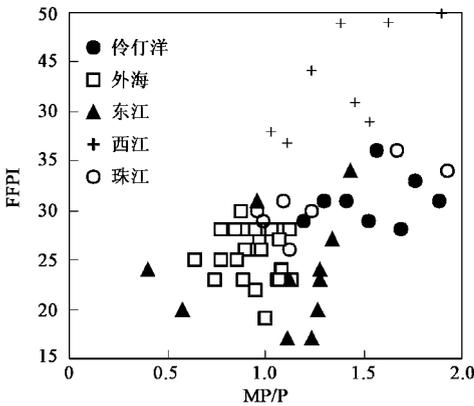


图 4 沉积物中石油污染指标

Fig. 4 Index of oil pollution in sediments

2.2.2 燃烧来源特征

环境中人为燃烧来源的多环芳烃主要来源于石油及其精炼产品如汽油、柴油的燃烧以及煤的燃烧. 通常运用于源解析的多环芳烃异构体对有菲/蒽系列、苯并[a]蒽/蒽系列、荧蒽/芘系列、茚并[1,2,3-cd]芘/苯并[g,h,i]芘系列; 由于菲/蒽系列与苯并[a]蒽/蒽系列中蒽与苯并[a]蒽相比于其同分异构体菲和蒽更易发生降解作用, 使得源信息发生改变, 这 2 个系列的比值的使用要特别小心. 而荧蒽/芘与茚并[1,2,3-cd]芘/苯并[g,h,i]芘这 2 个系列能较

好地保存原始信息^[22], 因此本研究用这 2 个系列的比值推导多环芳烃的来源. 根据 Yunker^[22]等人归纳的结果, 荧蒽/(荧蒽 + 芘) ($Fl/Fl + Py$) 比值小于 0.4 则意味着石油污染来源, 大于 0.5 则主要是木柴、煤燃烧来源, 位于 0.4 与 0.5 之间则意味着石油及其精炼产品的燃烧来源. 茚并[1,2,3-cd]芘/(茚并[1,2,3-cd]芘 + 苯并[g,h,i]芘) ($IP/IP + BghiP$) 之比小于 0.2 表明主要是油排放污染, 大于 0.5 则主要是木柴、煤燃烧污染, 在此间为石化燃料燃烧污染. 分别计算珠江三角洲河流表层沉积物与伶仃洋及邻近海域表层沉积物中指标的值, 以 $Fl/Fl + Py$ 为横坐标, $IP/IP + BghiP$ 为纵坐标, 做多环芳烃来源诊断图如图 5. 从图 5 可见, 南海表层样品 $Fl/Fl + Py$ 比值以及 $IP/IP + BghiP$ 比值均大于 0.5, 指示出木柴、煤为主的燃烧来源. 在珠三角河流以及珠江河口表层沉积物中, $IP/IP + BghiP$ 比值位于 0.5 附近, 表示出油类燃烧与木柴、煤燃烧混合来源的特点; $Fl/Fl + Py$ 比值位于 0.4 与 0.5 之间, 显示明显的油类燃烧为主的特征.

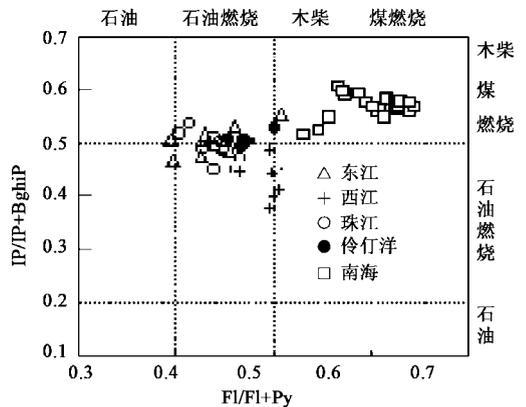


图 5 表层沉积物多环芳烃来源诊断

Fig. 5 Diagnostic ratios for source identification

2.3 与1997年样品的对比

1997 年样品^[23]主要采集来自珠江、西江及伶仃洋西岸共 17 个样品, 其中珠江、西江样品与本次采样重叠, 伶仃洋有 1 个样品与本次采样重叠. 这些重叠样品可以提供 2 次采样期间污染物的变化情况. 由于 2 次样品测量的多环芳烃数目不同, 本文主要列出 16 种优控多环芳烃浓度进行比较. 1997 年采样点 16 种多环芳烃含量与 2002 年采样点多环芳烃含量分列于表 2 与表 3. 从表中可看到, 除西江段多环芳烃浓度比 97 年采样时浓度稍有下降外, 珠江及伶仃洋相同采样点多环芳烃浓度总体并无多大变

表 2 1997 年样品多环芳烃浓度与来源比值

Table 2 Concentration and diagnostic ratios of PAH in samples from 1997

项目	珠江		西江		伶仃洋	
	范围	均值	范围	均值	范围	均值
多环芳烃浓度/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	408 ~ 2432	1145	709 ~ 1589	1352.7	156 ~ 1006	(331) ¹⁾
Fl/(Fl + Py)	0.39 ~ 0.55	0.46	0.45 ~ 0.82	0.64	0.47 ~ 0.65	0.56
IP/(IP + BghiP)	0.26 ~ 0.51	0.45	0.44 ~ 0.84	0.59	0.45 ~ 0.54	0.50

1) 与本次采样相似站点值。

表 3 2002 年样品多环芳烃浓度与来源比值

Table 3 Concentration and diagnostic ratios of PAH in samples from 2002

项目	珠江		西江		伶仃洋	
	范围	均值	范围	均值	范围	均值
多环芳烃浓度/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	379 ~ 2682	1288	690 ~ 983	828	113 ~ 621	321.0
Fl/(Fl + Py)	0.41 ~ 0.47	0.43	0.46 ~ 0.51	0.50	0.45 ~ 0.50	0.47
IP/(IP + BghiP)	0.45 ~ 0.52	0.50	0.38 ~ 0.49	0.44	0.45 ~ 0.53	0.50

化。这也表明,虽然珠江进行了环境整治工程,但多环芳烃的污染状况并无明显改观。虽然多环芳烃浓度变化无多大差别,但反映多环芳烃来源的同分异构体比值在 2 次采样中发生了一定的变化。从表 2 与表 3 中可以看到,珠江段样品 2 次采样期间,Fl/Fl + Py 与 IP/IP + BghiP 都反映的是以石化燃料燃烧为主的特征,没有大的变化。但西江段与伶仃洋 2 个比值都有较大的变化,1997 年所采样品表现的是以煤燃烧为主的特征,而 2002 年所采样品则倾向于以石化燃料的燃烧为主,这种变化表明近几年来油料燃烧取代了煤燃烧成了本区域的主要污染源。这种比值的变化也表明,南海近海海域沉积物中多环芳烃来源指标与伶仃洋和珠江三角洲河流中来源指标的差异可能是由于南海表层沉积物与伶仃洋及珠江三角洲表层沉积物所代表的时间段长短不同引起的。根据最近所测的沉积速率^[24],伶仃洋内东部平均沉积速率为 0.86cm/a,西部为 1.5 ~ 3.8 cm/a,西江 0.17cm/a,珠江 1.2 ~ 1.5 cm/a,东江与外海暂时没有数据,但可预见外海沉积物的沉积速率肯定要明显低于珠江三角洲和伶仃洋。在笔者所采样品的深度(10cm)内,外海沉积物更多可能反映的是一个长时段的污染过程,而珠江三角洲河流与伶仃洋沉积物反应的主要是最近一个时间段的污染。1997 与 2002 年所采样品来源的对比表明,近几年来,珠江三角洲来源于油燃烧的污染逐渐替代煤燃烧污染,成为主要的燃烧来源。珠江三角洲及伶仃洋由于较快的沉积速度,这种能源结构的变化在表层沉积物中很快得到了反映,而外海由于沉积速率慢,整个变化还未能反映出来。

3 结论

(1) 多环芳烃的浓度分布表现为珠江三角洲河流 > 伶仃洋 > 南海近海区域,其中珠江广州段污染最严重。南海近海区域 4 条剖面,随离岸距离增加,多环芳烃浓度有下降趋势,表明珠江径流是南海北部近海岸带多环芳烃主要来源之一。

(2) 西江、伶仃洋及珠江部分站点表现为较重的石油污染,南海近海岸主要表现为燃烧污染。多环芳烃同分异构体比值表明,珠三角河流及伶仃洋表层沉积物主要受油类燃烧的污染,而南海主要受木柴、煤燃烧的污染。

(3) 与 1997 年所采样品相比较,多环芳烃的整体污染状况无明显好转,油燃烧逐渐取代煤燃烧成为本区域主要污染源,这种能源结构的变化在沉降速率快的珠三角河流及伶仃洋得到反映,而南海近海区域由于沉积速率低仍表现以煤燃烧为主的特点。

参考文献:

- [1] 杨清书,麦碧嫻,傅家谟,等.珠江干流河口水体有机氯农药的时空分布特征[J].环境科学,2004,25(2):150~156.
- [2] 林峥,麦碧嫻,张干,等.沉积物中多环芳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.
- [3] Lisitsin A P. Marginal filter of oceans[J]. Oceanologiya,1994,34(5),735~747.
- [4] 张祖麟,王新红,哈理德,等.厦门西港表层沉积物中多环芳烃(PAHs)的含量分布特征及其污染源[J].海洋通报,2001,20(1):35~39.
- [5] 许世奋,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.

- [6] Hong H, Xu L, Zhang L, *et al.* Environmental fate and chemistry of organic pollutants in the sediments of Xiamen and Victoria Harbours [J]. *Marine pollution bulletin*, 1995, **31**: 229 ~ 236 .
- [7] Basheer C, Obbard J P, Keelee H. Persistent organic pollutants in Singapore' s coastal marine environment : part 2: sediments [J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 2003, **149**: 315 ~ 323 .
- [8] Kim G B, Maruya K A, Lee R F, *et al.* Distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from Kyeonggi Bay, Korea [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1999, **38**: 7 ~ 15 .
- [9] Zakaria M P, Takada H, Tsutsumi S, *et al.* Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in rivers and estuaries in Malaysia : a widespread input of petrogenic PAHs [J]. *Environmental Science and Technology*, 2002, **36**: 1907 ~ 1918 .
- [10] Kennicutt I I M C, Wade T L, Presley B J, *et al.* Sediments contaminants in Casco Bay, Marine : inventories, sources, and potential for biological impact [J]. *Environmental Science and Technology*, 1994, **33**: 4199 ~ 4205 .
- [11] Forster G D, Wright D A. Unsubstitute polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments, clams, and clam worms from Chesapeake Bay [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1988, **19**: 459 ~ 465 .
- [12] Simpson C D, Mosi A A, Cullen W R, *et al.* Composition and distribution of polycyclic in surficial marine sediments from Kitimat Harbour, Canada [J]. *Science of The Total Environment*, 1996, **181**: 265 ~ 278 .
- [13] Botello A V, Villanueva S F, Diaz G G. Polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from Salina cruz harbour and coastal areas, Oaxaca, Mexico [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1998, **36** (7): 554 ~ 558 .
- [14] McCreedy S, Slee D J, Birch G F, *et al.* The Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in surficial sediments of Sydney Harbour, Australia [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2000, **40** (11): 999 ~ 1006 .
- [15] Savinov V M, Savinov T A, Carroll J, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in sediments of the White Sea, Russia [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1999, **40**(10): 807 ~ 818 .
- [16] Notar M, Leskovsek H, Faganeli J. Composition, distribution and source of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments of the Gulf of Trieste, Northern Adriatic Sea [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2001, **42**(1): 36 ~ 44 .
- [17] Harmann P C, Quinn J G, Cairns R W, *et al.* The distribution and source of polycyclic aromatic hydrocarbons in Narragansett Bay surface sediments [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2004, **48** (4-3): 359 ~ 370 .
- [18] Baumard P, Budzinski H, Garrigues P, *et al.* PAHs in recent sediments and mussels from the western Baltic sea: Occurrence, bioavailability and seasonal variations [J]. *Marine Environmental Research*, 1999, **47**: 17 ~ 47 .
- [19] Maldonado C, Bayona J M, Bodineau L. Source, distribution and water column processes of aliphatic and polycyclic aromatic hydrocarbons in the Northwestern Black Sea water [J]. *Environmental Science and Technology*, 1999, **33**: 2693 ~ 2702 .
- [20] Steinhauer M S, and Boehm P D. The composition and distribution of saturated and aromatic hydrocarbons in nearshore sediments, river sediments, and coastal peat of Alaska Beaufort Sea: implications for Detecting Anthropogenic Hydrocarbon Inputs [J]. *Marine Environmental Research*, 1992, **33**: 223 ~ 253 .
- [21] Prahl F G, Carpenter R. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) - Phase association in Washington coastal sedimentary particulates from Dabob Bay. Washington DC [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1983, **47**: 1013 ~ 1023 .
- [22] 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]. *Organic Geochemistry*, 2002, **33**: 489 ~ 515 .
- [23] 麦碧娴, 林峥, 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 —— 多环芳烃与有机氯农药的分布特征 [J]. *环境科学学报*, 2000, **20**(2): 192 ~ 197 .
- [24] Zhan g, Andrew P, Alan H, *et al.* The sedimentary records of HCH and DDT in the Pearl River estuary, South China [J]. *Environmental Science and Technology* 2002, **36**: 3671 ~ 3677 .