

珠江三角洲典型区域农业土壤中多环芳烃的含量分布特征及其污染来源

杨国义, 张天彬, 高淑涛, 郭治兴*, 万洪富, 高原雪

(广东省生态环境与土壤研究所广东省农业环境综合治理重点实验室, 广州 510650)

摘要: 2002-10 ~ 2005-11 采集珠江三角洲典型区域(东莞市、惠州市、中山市、珠海市和佛山市顺德区)的农业土壤表层样品 260 个, 运用气相色谱-质谱方法对美国 EPA 优控的 16 种多环芳烃(PAHs)进行分析测定. 结果显示, 研究区农业土壤中 16 种 PAHs 含量范围在 $3.3 \sim 4\,079.0 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 平均含量 $244.2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 以 3 环和 4 环的 PAHs 为主; 中心城区土壤中 PAHs 含量高于远郊区, 菜地 > 水稻田 > 香蕉地 > 旱坡地果园地 > 甘蔗地. 依据荧蒽/芘及 2 + 3 环与 4 环以上 PAHs 化合物分布特点, 表明该区域农业土壤中 PAHs 主要来源于化石燃料的不完全燃烧. 通过与国内外土壤中 PAHs 含量的对比, 研究区的农业土壤受到一定程度的 PAHs 污染, 含量处于中等水平.

关键词: 珠江三角洲; 农业土壤; 多环芳烃; 分布特征

中图分类号: X53 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2007)10-2350-05

Source and Distribution Characteristics of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Agricultural Soils in the Pearl River Delta

YANG Guo-yi, ZHANG Tian-bin, GAO Shu-tao, GUO Zhi-xing, WAN Hong-fu, GAO Yuan-xue

(Guangdong Key Laboratory of Agro-Environment Integrated Control, Guangdong Institute of Eco-Environmental and Soil Sciences, Guangzhou 510650, China)

Abstract: 260 samples of surface agricultural soils (0 ~ 20 cm depth) were collected in the typical areas of Pearl River Delta from October 2002 to November 2005. The concentrations of polycyclic aromatic hydrocarbons (16 US EPA priority PAHs) in the collected soil samples were determined by gas chromatography equipped with a mass spectrometry detector (GC-MS). The results showed that the concentrations of Σ PAHs in the collected soil samples ranged from 3.3 to $4\,079.0 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ with the average concentration of $224.2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. PAHs in the collected samples were dominated by its 3-ring and 4-ring members. There were the higher concentrations of Σ PAHs in the collected samples of urban sites than those of remote sites. The concentrations of Σ PAHs in the collected samples related to different land use types the order: vegetable soils > paddy soils > banana soils > orchard soils > sugarcane soils. According to the distributions of fluoranthene/pyrene, 2 + 3 ring and 4 ring PAHs in these regions, it is supposed that the major contribution to the pollution of PAHs in these typical areas might be the incomplete combustion of fossil fuel. Compared with those in other national or international regions, the concentrations of Σ PAHs in these typical regions were moderate.

Key words: Pearl River Delta; agricultural soils; polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs); distribution characteristics

多环芳烃化合物 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 是环境中常见的一类有机污染物, 广泛分布于大气、水体、土壤和生物体中, 有强烈的“三致”毒性^[1,2]. 多环芳烃由于水溶性差, 辛醇分配系数高, 常被吸附于土壤颗粒上, 土壤就成为环境中多环芳烃的储藏库和中转站^[3]. 据工业发达国家研究表明, 近 100 ~ 150 a 来, 土壤 (尤其是城市地区土壤) 中多环芳烃浓度在不断增加^[4]. 土壤中的多环芳烃会通过接触直接进入人体, 或在一定条件下进入大气、水和生物等其他环境介质, 间接影响人体健康^[4]. 因此, 近年来国内外关于土壤中 PAHs 的研究很多, 且主要集中在土壤中 PAHs 的含量和来源^[5~8]、分布特征^[9~12]和迁移转化^[13]、以及 PAHs 与土壤中其他有机或无机污染物及环境因子之间的相

互关系^[14,15]等方面.

珠江三角洲地区土地面积和人口只占广东省的 23% 和 35% 左右, 但其经济总量却占到全省的 80%, 经济较为发达, 同时珠江三角洲地区也是广东省重要的蔬菜、粮食和水果生产基地, 这些土壤环境质量与人民健康有密切联系. 为了查清该区域农业土壤中 PAHs 的污染状况, 对 PAHs 污染土壤的有效防治提供理论依据, 从 2002-10 起, 笔者参照 USEPA8000 系列方法及质量保证和质量控制, 对珠

收稿日期: 2006-11-14; 修订日期: 2007-02-07

基金项目: 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2002CB410810); 国家环保总局科技项目(2001-01-02); 广东省自然科学基金项目(06025915)

作者简介: 杨国义(1969 ~), 男, 副研究员, 主要研究方向为农业环境与污染生态, E-mail: gyang@soil.cn

* 通讯联系人, E-mail: zxguo@soil.cn

江三角洲典型地区(东莞市、惠州市、中山市、珠海市和佛山市顺德区)的农业土壤中 PAHs 进行了定量分析,研究其分布特征,初步探讨其污染水平,并根据 PAHs 的组成及参数对其污染的可能来源作了分析.

1 材料与方法

1.1 样品采集与保存

采样点主要根据当地的工业布局、“三废”排放状况、灌溉水类型、土壤类型、农业生产布局等因素来确定,首先布设在面积较大,有代表性的农业生产基地(图 1).农业土壤采集表层样品(0~20 cm),采样与分析时间为 2002-10~2005-11,珠江三角洲的调查区域有东莞市($n=65$)、惠州市($n=49$)、中山市($n=61$)、珠海市($n=69$)和佛山市顺德区($n=16$);调查的土壤利用类型有菜地($n=142$)、水稻田($n=49$)、香蕉地($n=42$)、旱坡果园地($n=17$)和甘蔗地($n=10$).土壤采样采取多点采样混合法,即在一定面积的土壤采集 10~15 个点土壤形成 1 个土壤混合样,四分法留取 1 kg 装入棕色玻璃瓶迅速带回实验室冷冻(-20°C)保存至分析,在分析前将冷冻保存的土样在室温条件下风干,研磨过 60 目筛.

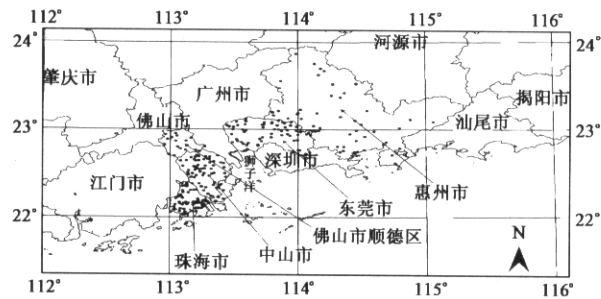


图 1 采样点位置
Fig.1 Sampling location

1.2 样品分析

1.2.1 样品处理

称取土壤样品 20 g 于索氏抽滤筒中,在 250 mL 平底烧瓶中加入 200 mL 二氯甲烷,2 g 活化过的铜片和回收率指示物后,在水浴锅上连续索氏提取 48 h.提取温度保持在 46°C ,冷却循环水温度调节为 10°C ,控制回流速度在 5~6 次/h.提取液在旋转蒸发仪上浓缩到 1 mL 后,加入 10 mL 正己烷转换溶剂,继续浓缩至 1~2 mL.过硅胶/氧化铝(2:1)层析柱,净化柱为 1 cm 内径的进口层析柱,采用正己烷湿法装柱,从下至上依次为硅胶 12 cm,氧化铝 6 cm,无水硫酸钠 1 cm,用 70 mL 二氯甲烷/正己烷

(3:7)淋洗出 PAHs.淋洗液经正己烷转换溶剂后,用高纯氮气吹至 0.2 mL,加入内标进行 GC-MS 分析.

1.2.2 试剂

PAHs 混合标样购自 Chem Service 公司,包括:萘、苊、二氢苊、芴、菲、蒽、荧蒽、芘、蒾、苯并[a]蒽、苯并[b]荧蒽、苯并[k]荧蒽、苯并[a]芘、茚并[1,2,3-cd]芘、二苯并[a,h]蒽、苯并[ghi]芘共 16 种化合物.内标物六甲基苯;回收率指示物标样:二氢苊- d_{10} 和菲- d_{10} .

1.2.3 GC-MS 条件

HP(6890/5973)气相色谱-质谱仪,色谱柱为:HP-5MS($30\text{ m}\times 0.25\text{ mm}\times 0.25\text{ }\mu\text{m}$)毛细管柱.载气为 He,进样口温度 300°C ,采用不分流进样,进样量 1 μL .升温程序: 70°C ($3^{\circ}\text{C}/\text{min}$) $\rightarrow 200^{\circ}\text{C}$ ($5^{\circ}\text{C}/\text{min}$) $\rightarrow 285^{\circ}\text{C}$,保持 12 min,至样品完全流出色谱柱.倍增器电压 1 200 V,离子源温度 230°C ,接口温度 280°C ,质量扫描范围 50~550,EI 离子源, 70 eV ,SIM 模式.PAHs 化合物的定性通过标准样品和化合物的谱图进行,定量用内标法进行,并经回收率校正.

1.3 质量控制(QA/QC)

遵照美国 EPA 的规范,在每个样品中都加入了回收率指示物,以监控整个分析流程的回收率,指示物标样的回收率为二氢苊- d_{10} :78%~89%,菲- d_{10} :85%~98%.每 18 个样品同时做 1 个空白,在空白中未检出目标化合物,可见整个实验流程对目标化合物没有人为因素影响.

2 结果与分析

2.1 土壤中 PAHs 含量特征

表 1 为土壤中 PAHs 分析结果,珠江三角洲典型区域农业土壤中 16 种 PAHs 总含量(ΣPAHs)在 $3.3\sim 4\,079.0\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 之间,平均值为 $244.2\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,土壤中致癌性 PAHs 化合物(见表 1 中带“*”号者)的含量($\Sigma\text{PAHscarc}$)在 $\text{ND}\sim 3\,125.0\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ 之间,平均值为 $124.8\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$,致癌性化合物占总量的 51.1%.从单个化合物的检出和含量情况来看,菲、荧蒽、芘、萘、苊、苯并[a]蒽和芴的检出率较高,高于 94%,苯并[b]荧蒽的检出率为 87.7%,蒽的检出率最低,为 20.4%,其余化合物的检出率介于 46.5%~75.0%之间.无论是单个的 PAHs 化合物、 ΣPAHs 还是 $\Sigma\text{PAHscarc}$ 的变异系数均大于 131,全部属于强变异,其中变异系数最大为蒽,高达 464.

在所有样本中蒽、苊和二氢苊的含量都很低或检测不到,所有样本中都以菲、荧蒽和苯并[b]荧蒽

3 种 PAHs 为主.土壤中 PAHs 的分布主要为荧蒽、和苯并[b,j,k]荧蒽,它们是常见的城市近郊土壤特征,其来源主要是化学工业和交通污染^[16,17].土壤中的 PAHs 都以 3 环和 4 环为主(3 环占总量的 34.5%,4 环占 42.6%),表明珠江三角洲典型区域

农业土壤中的污染以高分子量的 PAHs 为主,这主要因为 PAHs 是一类半挥发性有机物,随着分子量的增加,其挥发性逐渐降低,其存在形态逐渐由气态转为颗粒态,低分子量的 PAHs 易被挥发、光解至大气环境中,而高分子量的PAHs有较高的 K_{ow} 则更倾

表 1 珠江三角洲典型区域农业土壤中 PAHs 的含量/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$
Table 1 Concentrations of PAHs in agriculture soils in Pearl River Delta/ $\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$

化合物	英文简写	分子量	含量				
			含量范围	平均值	中位数	变异系数 CV/%	检出率/%
萘(2) ¹⁾	Nap	128	ND ⁵⁾ ~ 74.0	5.8	4.0	131	97.7
芴(2)	Ace	152	ND ~ 13.0	1.0	0.5	139	75.0
二氢芴(2)	Acy	152	ND ~ 35.0	0.7	ND	360	48.8
芴(2)	Fle	166	ND ~ 83.0	3.5	2.5	164	94.6
菲(3)	Phe	178	ND ~ 822.5	47.3	30.8	144	99.2
蒽(3)	Ant	178	ND ~ 77.5	1.6	ND	464	20.4
荧蒽(3)	Fla	202	ND ~ 495.5	35.3	20.2	134	99.2
芘(4)	Pyr	202	ND ~ 427.0	23.4	13.1	159	99.2
* (4)	Chr	228	ND ~ 526.5	18.6	7.4	234	95.8
苯并[a]蒽* (4)	Baa	228	ND ~ 461.5	20.4	6.5	212	95.8
苯并[b]荧蒽* (4)	Bbf	252	ND ~ 612.5	34.8	15.2	192	87.7
苯并[k]荧蒽* (4)	Bkf	252	ND ~ 255.0	7.1	ND	375	46.5
苯并[a]芘* (5)	Bap	252	ND ~ 443.5	12.4	3.5	331	68.5
茚并[1,2,3-cd]芘* (5)	Ilp	276	ND ~ 386.5	14.5	5.5	262	70.4
二苯并[a,h]蒽* (5)	Daa	278	ND ~ 87.0	3.3	1.0	279	58.5
苯并[ghi]花* (6)	Bpe	276	ND ~ 453.5	14.7	5.5	272	70.8
∑PAHs ²⁾			3.3 ~ 4 079.0	244.2	138.5	165	100.0
∑PAHscarc ³⁾			ND ~ 3 125.0	124.8	53.2	222	97.7
∑PAHs≤3/∑PAHs≥4 ⁴⁾					0.6		

1)括号中的数字为各化合物的苯环数; 2)∑PAHs 为 16 种多环芳烃总量; 3)∑PAHscarc 为带 * 号的致癌性化合物含量之和; 4)为 ≤3 个苯环化合物含量与 ≥4 个苯环化合物含量之比; 5)ND 为未检出

向分布于土壤颗粒上^[18].

2.2 不同区域和土壤利用类型中 PAHs 含量

环境中多环芳烃主要来自人类活动产生,研究指出,多环芳烃是人类活动的良好指示物^[19].以城市为划分的土壤 PAHs 含量分布见图 2.由图 2 可见,珠江三角洲中心城市(东莞、中山和顺德)的土壤 PAHs 污染要明显高于珠三角东北部的惠州及南部的珠海.珠江三角洲的中心城市是经济最为发达的地区,土壤 PAHs 污染的地区差异很好地体现了人类活动对自然环境所施加的影响.

土壤中 PAHs 含量也与土壤的利用类型密切相关,PAHs 在土壤的含量呈现以下规律(图 3):菜地($293.7\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$) > 水稻田($224.2\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$) > 香蕉地($200.5\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$) > 旱坡果园地($107.7\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$) > 甘蔗地($56.0\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$).珠江三角洲的菜地大多处在城市郊区,受到交通和污水灌溉等因素影响较大,加上种植蔬菜每年有很多茬,投入的农用物资(肥料等)较多,因此菜地中 PAHs 污染最严重,而旱坡果园地和

甘蔗地多数地处偏远,受 PAHs 污染相对较轻.

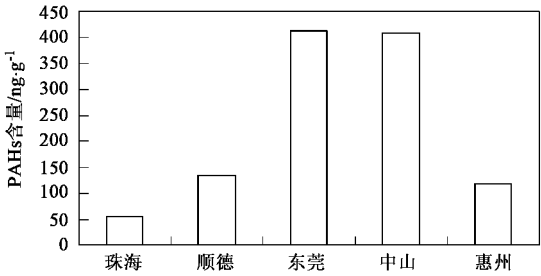


图 2 不同区域土壤中 PAHs 含量

Fig.2 Total concentrations of PAHs in agricultural soils from different areas

2.3 土壤中 PAHs 的来源

PAHs 除自然成因外,主要来自人类活动以及能源利用过程.煤、石油不完全燃烧产物为 PAHs 的主要来源.上述来源的 PAHs 主要通过下面 2 种途径进入土壤:一是 PAHs 随同大气颗粒物沉降于土壤表面;二是大气以气相状态存在的 PAHs 随雨水进

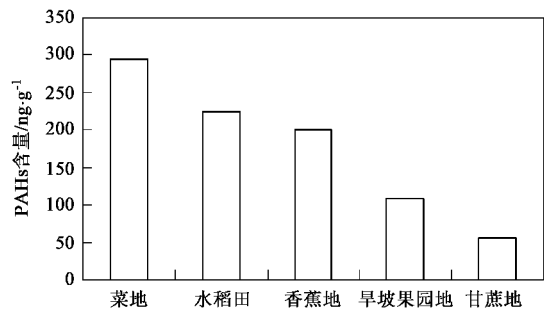


图3 不同土壤利用类型土壤中 PAHs 含量

Fig.3 Total concentrations of PAHs in different types agricultural soils

入土壤.矿物油、煤以及木材的不完全燃烧都能产生荧蒽、芘,另外煤焦油中本身也含有这2种化合物.但是不完全燃烧来源与矿物油来源的PAHs中荧蒽与芘的比值存在差异.据资料报道^[20],来源于煤和石油燃烧的PAHs中荧蒽/芘>1.4,荧蒽/芘=1时代表木材燃烧,而来源于石油的输入时荧蒽/芘<1.本研究区土壤的荧蒽/芘值为0.7~3.2,均值为1.6.据统计有69.6%土壤样品的荧蒽/芘>1.4,因此可以认为这部分土壤中PAHs主要来源于煤和石油不完全燃烧,或者说煤和石油燃烧对土壤中PAHs贡献更大;另有27.7%样品的荧蒽/芘值为1~1.4,认为这部分土壤的PAHs有几种来源,而且几种来源的PAHs贡献相当^[8];有1.2%土壤样品的荧蒽/芘=1,可以认为这部分土壤样品的PAHs来源主要是木材燃烧;另外有1.7%的土壤的荧蒽/芘<1,这部分土壤中PAHs可能来源于石油的输入.

另据文献报道,化石燃料不完全燃烧产生的PAHs以4~6环为主^[21].本研究中这3类化合物的含量占总PAHs的百分比为:4环42.6%,5环12.4%,6环6.0%.这3类化合物的含量占总PAHs的百分比61.0%.可见珠江三角洲区域农业土壤中多环芳烃的主要来源于化石燃料不完全燃烧(热解).

2.4 土壤中 PAHs 的污染水平

土壤中典型的内源性PAHs范围在1~10 ng·g⁻¹,它们主要来自植物的分解和自然火灾^[22].本研究区土壤中PAHs的含量远高于自然值,说明这些土壤均已受到人为因素的影响.目前我国还未制定土壤多环芳烃的允许浓度,只规定农用污泥中苯并(a)芘的最高容许含量为3 mg·kg⁻¹.根据Maliszewska-Kordybach对土壤中16种优控PAHs污染程度建立的分级标准^[23](见表2),珠江三角洲典型区域农业土壤所分析的260个样品中有5个样品

受到了PAHs的重度污染,占总分析样品数的1.9%,16个样品达到了一般污染水平,占6.2%,受到轻度污染的样品有65个,占25.0%,未受到污染的样品数有174个,占66.9%,也就是有33.1%的土壤样品受到不同程度PAHs的污染,这应该引起重视.

表2 土壤中 PAHs 污染程度分级

Table 2 Pollution degree of PAHs in soils

项目	土壤污染分级			
$\Sigma 16\text{PAHs}/\text{ng}\cdot\text{g}^{-1}$	< 200	200 ~ 600	600 ~ 1 000	> 1 000
污染级别	未污染	轻度污染	污染	重度污染

珠江三角洲典型区域农业土壤中PAHs含量低于爱沙尼亚城市土壤(含量范围2 200~12 390 ng·g⁻¹,平均值为7 817 ng·g⁻¹)^[24]、英国城市土壤(4 239 ng·g⁻¹)^[25]和天津西面的农业土壤(1 083 ng·g⁻¹)^[12]中的PAHs含量,与韩国山地(含量范围23.3~2 834 ng·g⁻¹,平均值为270 ng·g⁻¹)^[9]含量相近,但高于韩国稻田(含量范围38.3~1 057 ng·g⁻¹,平均值为209 ng·g⁻¹)^[9]、英国乡村土壤(187 ng·g⁻¹)^[25]和泰国城市土壤(含量范围11.7~376.2 ng·g⁻¹,平均值为129.2 ng·g⁻¹)^[26]中的PAHs含量.总的来说,珠江三角洲典型区域农业土壤中PAHs含量与国内外其他地方相比处于中等污染水平.

3 结论

(1)珠江三角洲典型区域农业土壤中16种PAHs的含量范围在3.3~4 079.0 ng·g⁻¹之间,平均值为244.2 ng·g⁻¹;检出率较高的单个化合物有菲、荧蒽、芘、萘、苯并[a]蒽和芴等,单个化合物的含量以菲、荧蒽和苯并[b]荧蒽3种化合物为主;土壤中的PAHs以3环和4环的含量最高;中心城区土壤中PAHs含量高于远郊区,菜地>水稻田>香蕉地>早坡地果园>甘蔗地;无论是单个的PAHs化合物和总的PAHs含量都属于强变异,这反映了珠江三角洲不同区域和不同土壤利用类型中PAHs污染存在较大的差异.

(2)珠江三角洲典型区域农业土壤中的PAHs主要来源于化石燃料不完全燃烧(热解),来源于石油的PAHs输入只占相当小的部分.

(3)对土壤污染水平的研究显示,珠江三角洲典型区域农业土壤受到一定程度的PAHs污染,与国内外其它地方研究结果相比较,该区域农业土壤中PAHs污染处于中等程度的污染水平.

参考文献:

- [1] Mekenyan O G, Ankley G T, Veith G D, *et al.* QSARs for photoinduced toxicity: I. Acute lethality of polycyclic aromatic hydrocarbons to *Daphnia magna*[J]. *Chemosphere*, 1994, **28**: 567 ~ 582.
- [2] 孙红文, 李书霞. 多环芳烃的光致毒效应[J]. *环境科学进展*, 1998, **6**(6): 1 ~ 11.
- [3] 段永红, 陶澍, 王学军, 等. 天津表层土壤中多环芳烃的主要来源[J]. *环境科学*, 2006, **27**(3): 524 ~ 527.
- [4] Jones K C, Stratford J A, Waterhouse K S, *et al.* Increases in the polynuclear aromatic hydrocarbon content of an agricultural soil over the last century[J]. *Environmental Science and Technology*, 1989, **23**: 95 ~ 101.
- [5] Wilcke W, Muller S, Kanchanakool N, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in hydromorphic soils of the tropical metropolis Bangkok[J]. *Geoderma*, 1999, **91**: 297 ~ 309.
- [6] Trapido M. Polycyclic aromatic hydrocarbons in Estonian soil: contamination and profiles[J]. *Environmental Pollution*, 1999, **105**: 67 ~ 74.
- [7] 李久海, 董元华, 曹志洪, 等. 古水稻土中多环芳烃的分布特征及其来源判定[J]. *环境科学*, 2006, **27**(6): 1235 ~ 1239.
- [8] 张天彬, 杨国义, 万洪富, 等. 东莞市土壤中多环芳烃的含量、代表物及其来源[J]. *土壤*, 2005, **37**(3): 265 ~ 271.
- [9] Nam J J, Song B H, Eom K C, *et al.* Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in agricultural soils in South Korea[J]. *Chemosphere*, 2003, **50**: 1281 ~ 1289.
- [10] 郝蓉, 彭少麟, 宋艳曦, 等. 汕头市经济特区土壤中优控多环芳烃的分布[J]. *生态环境*, 2004, **13**(3): 323 ~ 326.
- [11] 陈来国, 冉勇, 麦碧娴, 等. 广州周边菜地中多环芳烃污染现状[J]. *环境化学*, 2004, **23**(3): 341 ~ 344.
- [12] Tao S, Cui Y H, Xu F L, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in agricultural soil and vegetables from Tianjin[J]. *Science of the Total Environment*, 2004, **320**: 11 ~ 24.
- [13] Bakker M I, Casado B, Koerselman J W. Polycyclic aromatic hydrocarbons in soil and plant samples from the vicinity of an oil refinery[J]. *Science of the Total Environment*, 2000, **263**: 91 ~ 100.
- [14] Mielke H W, Wang G, Gonzalesa C R, *et al.* PAH and metal mixtures in New Orleans soils and sediments[J]. *Science of the Total Environment*, 2001, **281**: 217 ~ 227.
- [15] Masih A, Taneja A. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) concentrations and related carcinogenic potencies in soil at a semi-arid region of India[J]. *Chemosphere*, 2006, **65**: 449 ~ 456.
- [16] Berset J D, Holzer R. Organic Micropollutants in Swiss Agriculture: Distribution of Polynuclear Aromatic Hydrocarbons (PAH) and Polychlorinated Biphenyls (PCB) in Soil, Liquid Manure, Sewage Sludge, and Compost Samples: a Comparative Study[J]. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 1995, **59**: 145 ~ 165.
- [17] Wilcke W, Amelung W. Persistent Organic Pollutants in Native Grassland Soils along a Climosequence in North America[J]. *Soil Science Society of America Journal*, 2000, **64**: 2140 ~ 2148.
- [18] 郝蓉, 万洪富, 杜卫兵, 等. 亚热带地区农业土壤和植物中多环芳烃的分布[J]. *浙江大学学报(农业与生命科学版)*, 2005, **31**(4): 374 ~ 380.
- [19] Van Meter P C, Mahler B J, Furlong E T. Urban Sprawl Leaves Its PAH Signature[J]. *Environmental Science & Technology*, 2000, **34**: 4064 ~ 4070.
- [20] Milton L L, Vassilaros D L, Douglas W L. Capillary column gas chromatography of environmental Polycyclic aromatic compounds[J]. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 1982, **11**: 251 ~ 262.
- [21] 成玉, 陈立民, 盛国英, 等. 广州市气溶胶中多环芳烃分布、季节性变化及来源判别指标[J]. *中国环境科学*, 1998, **18**(2): 136 ~ 139.
- [22] Edwards N T. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the terrestrial environment-a review [J]. *Journal of Environmental Quality*, 1983, **12**: 427 ~ 441.
- [23] Maliszewska-Kordybach B. Polycyclic aromatic hydrocarbons in agricultural soils in Poland: preliminary proposals for criteria to evaluate the level of soil contamination[J]. *Applied Geochemistry*, 1996, **11**(1-2): 121 ~ 127.
- [24] Trapido M. Polycyclic aromatic hydrocarbons in Estonian soil: contamination and profiles[J]. *Environmental Pollution*, 1999, **105**: 67 ~ 74.
- [25] Wild S R, Jones K C. Polynuclear aromatic hydrocarbons in the United Kingdom environment: A preliminary source inventory and budget[J]. *Environmental Pollution*, 1995, **88**: 91 ~ 108.
- [26] Wilcke W, Muller S, Kanchanakool N, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in hydromorphic soils of the tropical metropolis Bangkok[J]. *Geoderma*, 1999, **91**: 297 ~ 309.