

南京公园松针中多环芳烃的富集特征与源解析

汪福旺,王芳,杨兴伦,卞永荣,蒋新*

(中国科学院南京土壤研究所土壤与农业可持续发展国家重点实验室,南京 210008)

摘要:采用高效液相色谱测定了南京市 8 个代表性公园马尾松松针中 15 种多环芳烃(PAHs)的含量,研究了其组成特征,并采用特征化合物比值法分析了松针中 PAHs 的来源。结果显示,不同公园松针中 PAHs 总含量(\sum PAHs)范围为 909.8(灵谷寺)~2 129.6 ng·g⁻¹(莫愁湖公园),平均含量为 1 438.0 ng·g⁻¹。松针主要富集低环(2、3 环)PAHs 和中环(4 环)PAHs,分别占 \sum PAHs 的 66.4% 和 29.6%,高环(5、6 环)PAHs 仅占 \sum PAHs 的 4%。单种 PAHs 以菲(Phen)的含量最高,平均含量为 591.4 ng·g⁻¹;致癌性最强的苯并(a)芘(BaP)平均含量为 5.1 ng·g⁻¹。源解析结果表明,松针中 PAHs 主要来源于机动车的尾气排放。

关键词:多环芳烃;南京市;松针;富集特征;源解析

中图分类号:X171.5 文献标识码:A 文章编号:0250-3301(2010)02-0503-06

Enrichment Characteristics and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Pine (*Pinus massoniana* Lamb) Needles from Parks in Nanjing City, China

WANG Fu-wang, WANG Fang, YANG Xing-lun, BIAN Yong-rong, JIANG Xin

(State Key Laboratory of Soil and Sustainable Agriculture, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China)

Abstract: The concentrations of 15 polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in pine (*Pinus massoniana* Lamb) needles from 8 urban parks in Nanjing City (China) were determined using High Performance Liquid Chromatography, and the source apportionment of PAHs in pine needles was studied using diagnostic ratios. The results show that the total PAHs concentrations (\sum PAHs) accumulated in needles from different parks ranged from 909.8 (Linggu Temple) to 2 129.6 ng·g⁻¹ (Mochou Lake), with an average of 1 438.0 ng·g⁻¹. The PAHs in pine needles mainly associates with 2,3-ring PAHs and 4-ring PAHs, accounting for 66.4% and 29.6% of the \sum PAHs, respectively, while 5,6-ring PAHs only accounts for 4% of the \sum PAHs. Phenanthrene is the dominant PAH with an average concentration of 591.4 ng·g⁻¹. The average concentration of Benzo(a)pyrene, the most carcinogenic PAH, is 5.1 ng·g⁻¹. The source apportionment indicates that vehicle emission is the predominant source for PAHs in the pine needles.

Key words: polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs); Nanjing City; pine needles; enrichment characteristics; source apportionment

多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)是环境中广泛存在的一类有机污染物,在大气中能同时以气态和颗粒态存在,主要来源为森林火灾和化石燃料、有机物质的不完全燃烧^[1]。很多 PAHs 具有致癌和致畸效应,从而引起人们的广泛关注^[1-5]。PAHs 能通过大气传输而在区域甚至全球范围内分布,大部分通过干湿沉降进入土壤^[3,4],但仍有部分被植物所吸附^[1,2,6-14]。植物叶片如松针具有比表面积大、表层蜡脂含量高、分布广泛、易于采集等特点,已被国外许多环境科学家用于环境中有机污染物的生物指示和监测评价^[1,8-11],国内采用松针监测环境中 PAHs 的研究还不多,仅在北方、珠三角等地区做过部分研究^[2,12,13]。本研究以长三角地区的南京市城区公园中广泛分布的马尾松松针

为对象,测定松针中 15 种 PAHs(美国 EPA 优先控制污染物)的含量,探讨松针中 PAHs 的污染特征,采用特定 PAHs 的比值特征来推断城市公园松针中 PAHs 的来源,以期阐明南京市城区公园的 PAHs 污染状况和污染来源提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 松针样品采集

采样地点为南京市 8 个代表性公园,具体采样点见图 1。采样时间为 2008 年 4 月,无降水。以马

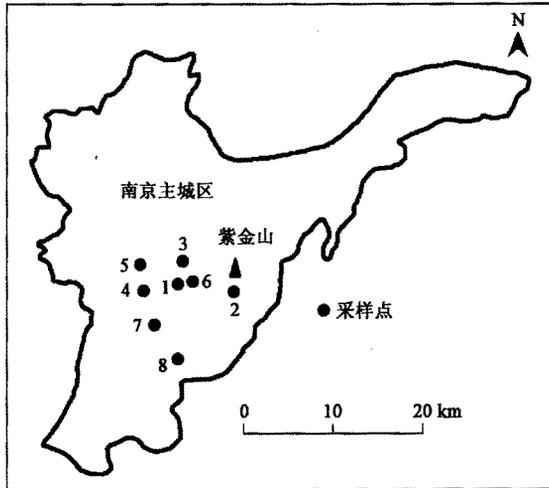
收稿日期:2009-03-31;修订日期:2009-05-18

基金项目:国家自然科学基金项目(40621001);中国科学院知识创新工程重要方向项目(KZCX2-YW-404)

作者简介:汪福旺(1984~),男,硕士研究生,主要研究方向环境化学与污染控制,E-mail:fwwang@issas.ac.cn

* 通讯联系人,E-mail:jiangxin@issas.ac.cn

尾松 (*Pinus massoniana* Lamb) 作为指示植物, 每个样品 (约 500 g) 均采自 3 棵以上松树的松针, 且每棵松树皆在高于地面 2 ~ 3 m 的高度和方位处采集, 松针生长期约为 1 ~ 2 a. 样品采集后立即用聚乙烯塑料袋封装, 带回实验室后, 用去离子水冲洗松针 3 次, 洗去表面的灰尘和颗粒物, 室温下晾干, 剪碎, 在 -20℃ 保存至分析.



1. 玄武湖公园, 2. 灵谷寺公园, 3. 红山森林动物园, 4. 古林公园, 5. 阅江楼公园, 6. 情侣园, 7. 莫愁湖公园, 8. 雨花台公园

图 1 采样点分布示意

Fig. 1 Schematic graphic of the sampling sites

1.2 试剂与仪器

美国 EPA 优先控制的 16 种 PAHs 混合标样, 购于 Supelco 公司 (美国); 正己烷、丙酮、二氯甲烷、无水硫酸钠等为分析纯, 购于南京化学试剂一厂; 色谱纯乙腈和弗罗里硅土 (60 ~ 100 目) 购于美国 TEDIA 公司; 水为 Millipore 超纯水. 主要仪器: 加速溶剂萃取仪 (ASE200, 美国戴安), 旋转蒸发仪 (RE-300, 中国上海), 配有 Supelco PAHs 专用柱 (250 mm × 4.6 mm, 5 μm, 美国) 的高效液相色谱仪 (HPLC, 日本岛津).

1.3 样品前处理及分析

称 2.0 g 经冷冻干燥后粉碎的松针样品, 加入到 ASE200 型的 22 mL 不锈钢萃取池, 萃取池下部填加 3.0 g 中性氧化铝粉末, 以正己烷/二氯甲烷混合液 (体积比 1/1) 为提取剂, 用加速溶剂萃取仪提取. 萃取条件: 压力 103.41×10^5 Pa (1 500 psi), 温度 120℃, 2 次循环, 每个样品持续提取约 20 min. 提取剂用旋转蒸发仪在 40℃ 浓缩到约 1 mL, 过 SPE 柱 (0.5 g Al_2O_3 + 1.5 g 弗罗里硅土), 用 20 mL 正己

烷/二氯甲烷 (体积比 9/1) 洗脱, 收集洗脱液用旋转蒸发仪在 40℃ 浓缩至约 1 mL, 加入 1.0 mL 乙腈, 氮气吹至 1.0 mL, 过 0.45 μm 滤膜, HPLC 测定. 具体色谱分析条件详见文献 [4].

1.4 质量控制

采用实验流程空白、溶剂空白、回收率、平行样 ($n=3$) 方法进行质量控制. 本实验目标化合物 HPLC 荧光检测按出峰时间顺序, 依次为: 萘 (naphthalene, Nap)、二氢萘 (acenaphthene, Ace)、芴 (fluorene, Flu)、菲 (phenanthrene, Phe)、蒽 (anthracene, Ant)、荧蒽 (fluoranthene, Flt)、芘 (pyrene, Pyr)、苯并 (a) 蒽 (benzo (a) anthracene, BaA)、屈 (chrysene, Chr)、苯并 (b) 荧蒽 [benzo (b) fluoranthene, BbF]、苯并 (k) 荧蒽 [benzo (k) fluoranthene, BkF]、苯并 (a) 芘 [benzo (a) pyrene, BaP]、二苯并 (a, h) 蒽 [dibenz (a, h) anthracene, DBA]、苯并 (g, h, i) 芘 [benzo (g, h, i) perylene, BghiP]、茚并 (1, 2, 3-cd) 芘 [indeno (1, 2, 3-c, d) pyrene, InP]. 空白均未检出目标物. 萘的回收率为 46%, 其它 14 种 PAHs 回收率在 72% ~ 102% 之间, 相对标准偏差 < 16%. 所有结果均以干重表示, 平均值为算术均值.

2 结果与讨论

2.1 松针中 PAHs 的含量

由表 1 可知, 除 7 号采样点的马尾松松针中没有检测到二苯并 (a, h) 蒽 (DBA) 以外, 其它采样点的松针中均能检测出 15 种 PAHs 在. 松针中 15 种多环芳烃的总含量 (\sum PAHs) 范围为 909.8 ~ 2 129.6 $ng \cdot g^{-1}$, 平均值为 1 438.0 $ng \cdot g^{-1}$. 与珠江三角洲地区马尾松松针中 PAHs 的含量 (刘国卿等^[12] 采集的松针中 \sum PAHs 平均值为 1 413.0 $ng \cdot g^{-1}$, 田晓雪等^[13] 采集的松针中 \sum PAHs 平均值为 1 034.7 $ng \cdot g^{-1}$) 和大连地区雪松松针中 PAHs 含量 (平均值为 1 101 $ng \cdot g^{-1}$)^[2] 较相近, 高于与欧洲部分地区, 如英国和捷克的欧洲赤松 (平均值分别为 323 $ng \cdot g^{-1}$ 和 609 $ng \cdot g^{-1}$)^[1,9] 以及德国的黑松 (平均值为 153 $ng \cdot g^{-1}$)^[8]. 植物叶片主要从大气中富集亲脂性的有机污染物^[15], 各个地区松针中 PAHs 含量的差异可能与当地的大气污染水平有关. 与欧洲部分地区相比, 可能南京市大气中 PAHs 污染水平较高导致松针中 PAHs 含量较高. 此外, 松针富集 PAHs 能力的大小受松针叶比表面积、脂含

表 1 南京市城区 8 个公园马尾松松针中 PAHs 的含量/ $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ Table 1 Concentrations of PAHs in pine needles from parks in Nanjing City, China/ $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$

化合物	采样点								平均值	标准偏差
	1	2	3	4	5	6	7	8		
Nap	135.9	131.6	210.4	123.0	100.3	111.6	105.5	173.2	136.4	37.6
Ace	9.6	13.5	9.7	12.7	14.9	13.8	17.0	27.2	14.8	5.6
Flu	187.2	91.1	163.7	159.2	185.3	172.3	270.0	124.3	169.1	52.1
Phe	363.8	353.4	655.1	551.7	608.5	580.1	1 028.4	590.2	591.4	208.9
Ant	25.3	18.3	33.5	39.2	53.2	46.2	59.0	27.2	37.8	14.3
Flt	233.0	137.2	243.7	195.5	201.5	198.5	343.8	196.4	218.7	59.6
Pyr	95.6	64.6	98.5	101.3	92.8	97.0	128.4	168.1	105.8	30.5
BaA	30.3	19.7	23.3	10.5	15.5	13.0	15.5	10.7	17.3	6.8
Chr	137.9	37.7	64.4	73.0	102.9	88.0	105.1	110.0	89.9	31.1
BbF	28.0	12.9	64.4	19.0	18.4	18.7	19.7	22.3	25.4	16.3
BkF	7.2	9.9	7.3	8.0	7.3	7.6	12.1	9.4	8.6	1.7
BaP	8.4	4.3	5.4	5.5	3.6	4.5	3.6	5.7	5.1	1.6
DBA	4.5	4.1	3.7	3.5	3.5	3.5	n. d. ¹⁾	4.3	3.4	1.4
BghiP	9.1	9.0	8.5	11.0	10.7	10.8	19.9	11.4	11.3	3.6
InP	3.8	2.4	3.5	3.6	2.6	3.1	1.6	3.0	2.9	0.7
\sum PAHs	1 279.6	909.8	1 595.0	1 316.8	1 420.8	1 368.8	2 129.6	1 483.5	1 438.0	344.1
\sum PAHscarc ²⁾	220.1	91.0	172.0	123.1	153.8	138.4	157.6	165.4	152.7	37.8

1) n. d. 表示未检出; 2) \sum PAHscarc 表示 7 种致癌性 PAHs(Chr, BaA, BbF, BkF, BaP, DBA, InP) 的总含量

量等因素的影响^[2,10],各个地区松针种类的不同也是 PAHs 在松针中含量差异的原因之一。

由表 1 可知,各个 PAHs 在马尾松松针中的含量不同,Nap、Flu、Phe、Flt、Pyr 和 Chr 是主要的化合物,其总含量约占 15 种化合物总含量的 90%,其他几种污染物的含量较低,与前人的研究结果^[1,7,8]相似。其中,Phe 是含量最高的单种化合物,其含量范围是 363.8 ~ 1 028.4 $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$,平均含量是 591.4 $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$,占总量的 28% ~ 48%,国内外很多研究也报道了菲是松针中的主要化合物^[1,7-9,13]。其它含量较高的化合物依次是 Flt、Flu,在松针中平均含量分别为 218.7 $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 169.1 $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。南京市公园松针中 Nap 的浓度相对较高,松针中平均含量为 136.4 $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。Liu 等^[6]测定的珠三角洲某山上苔藓以及王雅琴等^[14]在北京地区采集的多种植物叶片中萘也为优势化合物。7 种致癌性 PAHs 含量范围为 91 ~ 220.1 $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$,其中致癌性最强的 BaP 在松针中的含量为 3.6 ~ 8.4 $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$,平均含量为 5.14 $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 。

灵谷寺公园(2 号采样点)松针中 PAHs 总含量最低,7 种致癌性 PAHs 含量也最低,莫愁湖公园(7 号采样点)松针中 PAHs 总含量最高,其余公园采样点松针中 PAHs 含量比较接近,这与公园所处的位置有关。2 号采样点位于南京紫金山内部,距离交通干道较远,加之茂密的植被对大气中 PAHs 有较强

的吸收与净化作用,该采样点内大气相对洁净,故松针中 PAHs 含量最低,7 号采样点位于南京市中心区附近,距离交通干道近,可能导致其松针中 PAHs 含量最高;其余采样点离市中心交通干道距离相对 2 号采样点较近,其松针中的 PAHs 含量都较 2 号采样点高。

2.2 高环、中环和低环 PAHs 分布特征

由图 2 可知,8 个采样点马尾松松针中低环到高环的 PAHs 都检测到,其含量为低环(2 环 + 3 环) > 中环(4 环) > 高环(5 环 + 6 环)。8 个采样点松针中主要含低环 PAHs,2 环 + 3 环 PAHs(Nap、Ace、Flu、Phe、Ant)占 \sum PAHs 的 56.4% ~ 69.5%,平均质量分数为 66.4%;4 环 PAHs(Flt、Pyr、BaA、Chr)

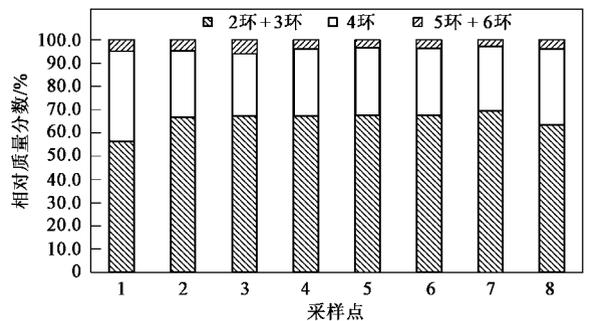


图 2 不同环数的 PAHs 在不同采样点松针中的相对质量分数

Fig. 2 Relative abundances of different rings of PAHs in the pine needles from sampling sites

次之,占 \sum PAHs 的 27.0% ~ 38.8%,平均质量分数为 29.6%;而 5 环 + 6 环 PAHs(BbF、BkF、BaP、DBA、BghiP、InP)最低,仅占 \sum PAHs 的 2.7% ~ 5.8%,平均质量分数为 4%. PAHs 为半挥发性有机物,随着分子量的增加挥发性逐渐降低,在大气中的赋存形态以及不同形态之间的相互转化特征也有不同.大量的研究结果表明^[1,2,8,16,17]:在大气中,高挥发性的 2 ~ 3 环 PAHs($\lg K_{oa} < 8$)通常以气态存在,使 2 ~ 3 环 PAHs 在植物叶片中的分配能随着时间达到平衡;4 环的 PAHs($8 < \lg K_{oa} < 11$)同时以气态和颗粒态存在,在植物叶片上的吸收受 PAHs 向叶面扩散速率限制(即供应限制);低挥发性的 5 ~ 6 环 PAHs($\lg K_{oa} > 11$)主要存在于颗粒物上,以颗粒态沉降到叶片表面.松针表面具有蜡质层,易于富集气态 PAHs,因此 2 ~ 3 环 PAHs 在松针中含量最高,4 环次之,而 5 ~ 6 环 PAHs 最少.松针中同时含有高环和低环 PAHs 说明其混合组分来源于气相和颗粒相的大气沉降.在本研究中,即使使用去离子水将松针表面的灰尘冲洗干净,松针中仍可检测到高环的 PAHs,可能存在两方面原因:一是松针可以吸收一部分颗粒态沉降的 PAHs,二是沉积的颗粒物可以进入松针的气孔内^[2],去离子水不能或不完全去除松针气孔中的颗粒物.该结果表明松针起到大气中 PAHs 的“被动采样器”的作用,能同时富集大气中低环到高环的 PAHs.

2.3 松针中 PAHs 来源

通过比较松针中 PAHs 的特征化合物比值特征

可以定性判断 PAHs 的来源^[18].选用特定 PAHs 的比值与 Flt/Pyr 作图判断大气 PAHs 的来源,因为 Flt 和 Pyr 同时具有气态和颗粒态,且物理化学属性相近^[8,19].已有人使用 Flt/Pyr 的比例来研究土壤^[20]、沉积物^[18,21,22]、植物^[8,11]等环境样品中 PAHs 的来源. Flt/Pyr > 1 时, Baumard 等^[18]认为 PAHs 来源于热成因(煤燃烧或汽车尾气); Lehndorff 等^[8]认为源于典型的交通尾气排放; Fernandes 等^[23]研究表明, Flt/Pyr 值较低主要来源于柴油燃料燃烧, Flt/Pyr 值较高则来源于汽油燃料燃烧.较高的 Flt/Pyr 值,也可能来自燃煤电厂释放的废气.本研究中松针的 Flt/Pyr 值均大于 1(图 3),表明松针中 PAHs 主要的来源可能是热成因的汽车尾气.因为本研究采样点位于南京市区的公园内,市区繁忙的交通会带来大量的尾气排放,导致城市空气中与交通相关的 PAHs 含量增高,从而松针中富集的 PAHs 也表现相应的分配比例.此外,松针中 PAHs 还可能来源于燃煤发电厂排放的废气,南京市周边有南京热电厂、大唐下关发电厂、华能南京电厂等火力发电厂,均为燃煤电厂,这些电厂排放的废气对松针中 PAHs 来源也有一定的贡献.

根据以上分析,可以初步判断松针中 PAHs 来源于热成因,采用 Phe/Ant 值进一步判断,有研究表明 Phe/Ant < 10 为有机物料高温燃烧产生^[18]. Adami 等^[21]认为,沉积物中 Phe/Ant > 10 指示石油源, Phe/Ant < 10 指示化石燃料燃烧源.然而本研究中松针的 Phe/Ant 值均大于 10[图 3(a)],与很多地区的研究结果相似,如在美国、墨西哥等地区松

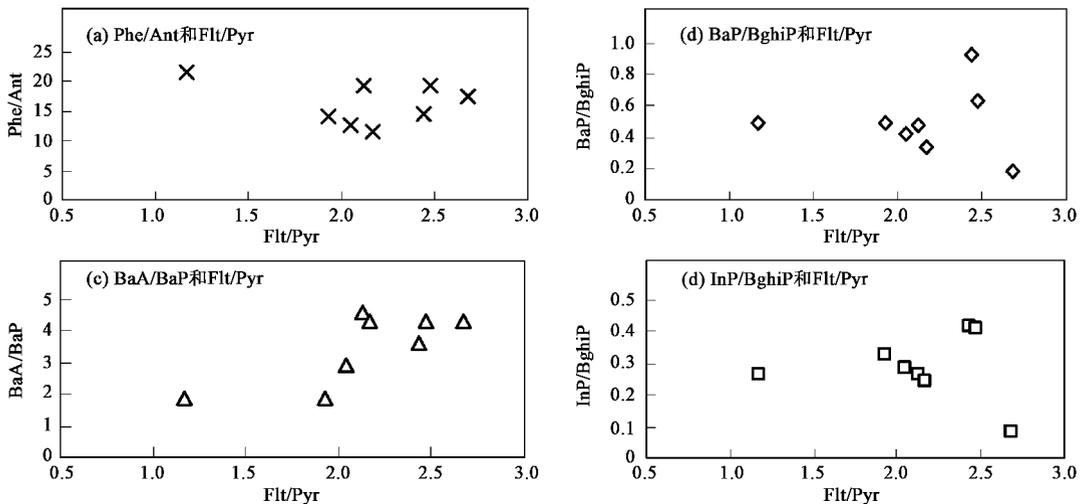


图 3 松针中特定 PAHs 比值与 Flt/Pyr 比值对照

Fig. 3 Plot of selected PAHs ratios versus the Flt/Pyr-ratio in pine needles

针中 Phe/Ant 值为 15 ~ 40^[11], 德国科隆地区松针中 Phe/Ant 值主要为 22 ~ 53^[8], 英国偏远地区松针中 Phe/Ant 值为 25 ~ 850^[1]. 松针中 Phe/Ant 值较高, 与 Ant 易于降解有关. 在大气传输过程中和植物体内, Ant 比 Phe 更易光降解^[6, 24], 从而导致植物富集 PAHs 后叶片中 Phe/Ant 值升高. 因此, 松针中 Phe/Ant > 10, 可能来自石油源, 但由于 Ant 比 Phe 易降解, 松针中 PAHs 更可能来源于化石燃料燃烧. 使用 Phe/Ant 比值对松针中 PAHs 的来源做判识时, 应该考虑 Ant 比 Phe 更易降解的因素.

其他特定 PAHs 之间的比值也可以反映松针中 PAHs 的来源. BaP/BghiP 值是其中之一, 因其对交通排放具有一定的指示^[8, 22]. 本研究中 BaP/BghiP 值在 0.4 附近[图 3(b)], 与汽油车和柴油车排放尾气中两者比值(0.3 ~ 0.81)^[25]相似; BaA/BaP 值也是评价 PAHs 来源时常用的指标, 南京公园松针中 BaA/BaP 值为 1.8 ~ 4.5[图 3(c)], 德国科隆地区大多采样点松针中 BaA/BaP 值也小于 4.5, Li 等^[26]认为汽油车排放废气中 PAHs 的 BaA/BaP 值为 0.5 ~ 3.7, 由此可见, 南京公园松针中 PAHs 与汽油燃烧相关, 与南京市大量机动车以汽油为燃料的实际情况相符; 另外, InP/BghiP 值也常用于评价 PAHs 的来源, 本研究松针中的 InP/BghiP 值基本处于 0.5 以下[图 3(d)], Lehndorff 等^[8]采集的松针样品中的 InP/BghiP 值大都小于 0.8, 并认为较高的 InP/BghiP 值来自生物质燃烧, 而较低的 InP/BghiP 值说明 PAHs 主要源于汽油燃烧^[22], 这从另一侧面表明南京公园松针中 PAHs 主要源于汽油燃料的燃烧.

综上所述, 南京地区马尾松松针中 PAHs 可能主要来源于化石燃料的燃烧如汽车尾气排放, 燃煤等也有一定贡献. 松针对大气中 PAHs 的富集是个长期的过程, 利用松针中特定 PAHs 的比例进行源解析判断, 可以反映一段时间内大气中 PAHs 的污染来源.

3 结论

(1) 南京市公园马尾松松针中 PAHs 的浓度在 909.8 ~ 2 129.6 ng · g⁻¹, Nap、Flu、Phe、Flt、Pyr 和 Chr 是主要的污染物, 约占 15 种化合物总量的 90%, 其中 Phe 的含量最高, 占总量的 28% ~ 48%.

(2) 松针对 PAHs 的富集主要以 2、3 环 PAHs 为主, 4 环 PAHs 次之, 5、6 环 PAHs 最少.

(3) 源解析结果表明南京市公园松针中 PAHs 可能主要来源于汽车尾气的排放.

参考文献:

- [1] Tremolada P, Burnett V, Calamari D, *et al.* Spatial distribution of PAHs in the UK atmosphere using pine needles [J]. *Environ Sci Technol*, 1996, **30**(12): 3570-3577.
- [2] 杨萍, 王震, 陈景文, 等. 松针生理性质对其富集多环芳烃行为的影响 [J]. *环境科学*, 2008, **29**(7): 2018-2023.
- [3] Wild S R, Jones K C. Polynuclear aromatic hydrocarbons in the United-Kingdom environment—a preliminary source inventory and budget [J]. *Environ Pollut*, 1995, **88**(1): 91-108.
- [4] Yin C Q, Jiang X, Yang X L, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in soils in the vicinity of Nanjing, China [J]. *Chemosphere*, 2008, **73**(3): 389-394.
- [5] Menzie C A, Potocki B B, Santodonato J. Exposure to carcinogenic PAHs in the environment [J]. *Environ Sci Technol*, 1992, **26**(7): 1278-1284.
- [6] Liu X, Zhang G, Jones K C, *et al.* Compositional fractionation of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in mosses (*Hypnum plumaeformae* WILS.) from the northern slope of Nanling, Mountains, South China [J]. *Atmos Environ*, 2005, **39**(30): 5490-5499.
- [7] Liu G Q, Zhang G, Li J, *et al.* Spatial distribution and seasonal variations of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) using semi-permeable membrane devices (SPMD) and pine needles in the Pearl River Delta, South China [J]. *Atmos Environ*, 2006, **40**(17): 3134-3143.
- [8] Lehndorff E, Schwark L. Biomonitoring of air quality in the Cologne Conurbation using pine needles as a passive sampler-Part II: polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) [J]. *Atmos Environ*, 2004, **38**(23): 3793-3808.
- [9] Holoubek I, Korinek P, Seda Z, *et al.* The use of mosses and pine needles to detect persistent organic pollutants at local and regional scales [J]. *Environ Pollut*, 2000, **109**(2): 283-292.
- [10] Simonich S L, Hites R A. Vegetation-atmosphere partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons [J]. *Environ Sci Technol*, 1994, **28**(5): 939-943.
- [11] Hwang H M, Wade T L, Sericano J L. Concentrations and source characterization of polycyclic aromatic hydrocarbons in pine needles from Korea, Mexico, and United States [J]. *Atmos Environ*, 2003, **37**(16): 2259-2267.
- [12] 刘国卿, 张干, 刘向, 等. 大气中多环芳烃 (PAHs) 在松针和 SPMD 上的分布 [J]. *环境化学*, 2005, **24**(1): 81-85.
- [13] 田晓雪, 周国逸, 彭平安. 珠江三角洲地区主要树种叶片多环芳烃含量特征及影响因素分析 [J]. *环境科学*, 2008, **29**(4): 849-854.
- [14] 王雅琴, 左谦, 焦杏春, 等. 北京大学及周边地区非取暖期植物叶片中的多环芳烃 [J]. *环境科学*, 2004, **25**(4): 23-27.
- [15] Simonich S L, Hites R A. Organic pollutant accumulation in vegetation [J]. *Environ Sci Technol*, 1995, **29**(12): 2905-2914.
- [16] 刘国卿, 张干, 刘德全, 等. 深圳南头半岛冬季大气中 PAHs 的分布特征与来源 [J]. *中国环境科学*, 2008, **28**(7): 588-592.

- [17] Su Y S , Wania F , Harner T , *et al.* Deposition of polybrominated diphenyl ethers , polychlorinated biphenyls , and polycyclic aromatic hydrocarbons to a Boreal Deciduous Forest [J]. *Environ Sci Technol* , 2007 , **41**(2) : 534-540.
- [18] Baumard P , Budzinski H , Garrigue P. Polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments and mussels of the Western Mediterranean Sea [J]. *Environ Toxicol Chem* , 1998 , **17**(5) : 765-776.
- [19] Weiss P. Vegetation/soil distribution of semivolatile organic compounds in relation to their physicochemical properties [J]. *Environ Sci Technol* , 2000 , **34**(9) : 1707-1714.
- [20] 丁爱芳 , 潘根兴 , 李恋卿. 江苏省部分地区农田表土多环芳烃含量比较及来源分析 [J]. *生态与农村环境学报* , 2007 , **23**(2) : 71-75.
- [21] Adami G , Barbieri P , Piselli S , *et al.* Detecting and characterizing sources of persistent organic pollutants (PAHs and PCBs) in surface sediments of an industrialized area (Harbor of Trieste , Northern Adriatic Sea) [J]. *J Environ Monit* , 2000 , **12**(2) : 261-265.
- [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]. *Org Geochem* , 2002 , **33**(24) : 489-515.
- [23] Fernandes M B , Brooks P. Characterization of carbonaceous combustion residues : II . Nonpolar organic compounds [J]. *Chemosphere* , 2003 , **53**(5) : 447-458.
- [24] Wild E , Dent J , Thomas G O , *et al.* Real-time visualization of PAH photodegradation on and within plant leaves [J]. *Environ Sci Technol* , 2005 , **39**(1) : 268-273.
- [25] Simcik M F , Eisenreich S J , Lioy P J. Source apportionment and source/sink relationships of PAHs in the coastal atmosphere of Chicago and Lake Michigan [J]. *Atmos Environ* , 1999 , **33**(30) : 5071-5079.
- [26] Li C K , Kamens R M. The use of polycyclic aromatic hydrocarbons as source signatures in receptor modeling [J]. *Atmos Environ A* , 1993 , **27**(4) : 523-532.