中国不同地区典型河流中多环芳烃分布特征研究

王 超[1]，杨忠芳[1]，夏学齐[1]，成杭新[2]，余 涛[1]

（1. 中国地质大学 地球科学与资源学院，北京 100083；2. 中国地质科学院 地球物理地球化学勘查研究所，河北 廊坊 065000）

摘要：为了调查研究我国大面积不同流域河流系统中多环芳烃分布特征以及不同地区之间的来源差异，选择了分别代表中国中部、西部和东北部的长江武汉段、涪江及松花江为研究区域，测定了河流水体中16种优先PAHs的含量，并进行了其污染来源识别。结果表明，16种多环芳烃含量范围为N. D. ~317.56 ng/L，最高值出现在长江武汉段；在16种多环芳烃单体中，不同地区呈现出不同的组成特征，涪江和松花江以低环PAH组成为主，而长江武汉段高环PAH含量增加；其组分含量高低及特征比值分析结果显示松花江和涪江的来源主要是燃烧源，而长江武汉段来源复杂。

关键词：多环芳烃；水体；污染来源；典型河流

中图分类号：P532；P597.2 **文献标志码**：A **文章编号**：1000－8527(2012)02－0400－07

Distribution and Sources of PAHs in Typical Chinese Rivers

WANG Chao[1], YANG Zhong-fang[1], XIA Xue-qi[1], CHENG Hang-xin[2], YU Tao[1]

(1. *School of Earth Sciences and Resources, China University of Geosciences, Beijing* 100083, *China*;
2. *Institute of Geophysical and Geochemical Exploration, Chinese Academy of Geological Sciences, Langfang, Hebei* 065000, *China*)

Abstract: In order to find out the PAHs distribution characteristics and differences of origins in different drainage areas all over China, we chose Fujiang, Songhuajiang, and the middle reaches of the Yangtze river as the aim area to represent middle, western and northeastern China, respectively. In this study, the distribution of 16 priority PAHs in the river water samples along the rivers was studied. The results showed that the concentration of PAHs ranged from N. D. to 317.56 ng/L and the highest value appeared in Wuhan section of the Yangtze river. The content of ΣPAHs, LPAHs/HPAHs and individual PAH in three rivers are studied. The light PAHs were the dominate form in the Fujiang and Songhuajiang river and the heavy PAHs increased significantly in the Yangtze river. The sources of PAHs were identified by characteristic ratio that PAHs were generally from combustion in Fujiang and Songhuajiang river, and the source in the Yangtze river was complicated.

Key words: PAHs; river water; pollution source; typical river

0 引 言

多环芳烃(Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, PAHs)主要来自煤、石油、木材、烟草等有机物的不完全燃烧，是广泛分布于环境中且危害很大的一类半挥发的非极性化合物。由于其结构的特殊性，可在环境中能够长期存在，具有致癌、致畸、致突变性，已被列为持久性有机污染物(POPs)。多环芳烃可以污染土壤及灌溉水，从而通过植物、动物向人体转移，最终积聚在人体中。车辆排放的尾气、煤气及其他取暖设施中排放的多环芳烃还可以直接污染大气[1-3]。研究发现，水体对于有机污染物具有吸附作用，这些污染物通过各种渠道进入环境中，引起局部水污染、土壤污染和水体沉积物污染等问题，从而造成污染物在环境中的富集。由于这些污染物具有长距离

收稿日期：2011－10－06；**改回日期**：2012－02－24；**责任编辑**：戚开静。

基金项目：中国地质调查局地质调查项目“中国农业生态地球化学评价体系研究与成果集成”(1212010511218)。

作者简介：王 超，男，硕士研究生，1984年出生，地球化学专业，从事环境地球化学研究。Email：lunwen1@yahoo.com.cn。

通信作者：杨忠芳，女，教授，博士生导师，1961年出生，地球化学专业，主要从事环境地球化学研究与教学工作。Email：zfyang01@126.com。

迁移性，可导致地下水体的污染。很多研究数据[1-6]表明，地表水环境普遍受到各种持久性有机物的污染，水源水、地下水水质也面临严峻的考验。此外，这些污染物易于在生物累积，其毒性可通过食物链富集放大，使位于生物链顶端的人类面临严重威胁。

在我国，传统的地球化学样品分析主要是对采集的土壤、水、大气等样品进行无机元素分析。随着全国多目标生态地球化学调查和评价工作的深入开展，研究者认识到，只考虑常规元素不能全面说明环境生态问题[4-5]，因此已经把环境介质中的有机污染物残留水平归入地球化学评价指标[6]。目前已经有很多研究工作针对中国各大河流流域水体、水体悬浮颗粒物以及沉积物中多环芳烃的分布状况进行了报道。马骁轩等[7]对珠江的重要支流西江、北江水体悬浮颗粒物中多环芳烃进行了采样分析，结果表明其来源主要为石油化工燃料的燃烧与排放。麦碧娴等[8]研究发现，珠江广州河段及澳门内港的 PAHs 含量最高，关于污染物的含量，珠江口西岸高于东岸，西江表层沉积物中 PAHs 的含量相对较高。

尽管这些研究工作已经对全国各大河流流域中 PAHs 的分布状况进行了大量的报道，但较多地局限于具体河流的特征分析，关于大面积不同流域中河流系统的污染物分布特征及对比的研究鲜有报道。据此，本文选取我国东北地区的松花江、中部地区长江武汉段以及西部四川地区的涪江为研究区域，对中国不同地区河流流域中的多环芳烃分布及来源的特征进行比较分析，旨在了解 PAHs 在这些区域的污染现状、来源及其分布规律，也为进一步研究河流系统中污染物的赋存与趋势提供依据。

1　材料与方法

1.1　样品采集

本文根据研究区的地形特征、可能污染源以及多环芳烃的分布富集影响因素，选择了主要城市附近河道比较平直、流速相对缓慢的区段进行布点。选择连续 3 个晴天、水质稳定的日子进行采样。河水样品的采样点选在河流开阔、水流平稳处，在距水体表面以下 20 cm、水体中上部位处采集，在可以直接汲水的场地用容器直接采样。采水容器(棕色玻璃暗光瓶，防止塑料容器对样品的影响)在第一次采水前需用稀释的硝酸浸泡 1 天，然后用自来水洗净，再用蒸馏水清洗 3 次，避免采样过程污染。采水前用要采集的水将暗光瓶洗 3 次，再采集水样。水体样品采集量为 1 L，相同点位采集 4 个样品做平行分析。在采集过程中，尽量避免受到船体、冲洗取样工具的影响，做到“轻扰动”水体与底部沉积物，且要注意不能混入水面上漂浮物，以保证样品的代表性。采集样品后，将暗光瓶瓶塞用封口膜包裹以免污染。样品迅速冷藏并尽快送实验室分析检测。

松花江流域位于我国东北地区北部，其研究流域位于 41°42′～51°38′N，119°52′～132°31′E，属北温带季风气候，大陆性气候特点明显，年内温差大。流域内有丰富的矿产资源，包括能源矿产、金属和非金属矿产，当地的工、农业也非常发达。作为东北地区的主要水运干线，松花江的水务运输业务十分繁重。本次研究中东北地区松花江河流样品分别采自松花江肇源上游段(No. 1)、松花江支流拉林河(No. 2)、松花江哈尔滨上游段(No. 3)、松花江哈尔滨下游段(No. 4)、松花江支流阿什河(No. 5)、松花江支流呼兰河(No. 6)和松花江巴彦县段(No. 7)(图 1)，采样时间为 2008 年丰水期。

长江武汉段处于长江中下游，其研究流域位于 29°00′～35°30′N，108°05′～116°15′E。武汉属于亚热带季风性气候，雨量充沛，夏季酷热，地处内陆，距海洋远，地形如盆地，故集热容易散热难。长江流域是我国重要的矿产资源产地，流域内的许多省份都是资源大省，是当地的重要产业支柱。沿江的工业企业密集，布局不尽合理。位于长江沿岸的化工企业有近万家，对长江水质影响较大，中下游普遍存在污染带。60% 的水体已经有不同程度的污染。本研究中长江武汉段河流样品分别采自宜昌市太平溪(No. 1)、宜昌市乐天溪(No. 2)、宜昌市红花套渡口(No. 3)、宜昌市宜都(No. 4)、荆州市大埠(No. 5)、荆州市埠河(No. 6)、荆州市公安(No. 7)、武汉市嘉鱼(No. 8)、武汉市沌口(No. 9)、武汉市汉阳(No. 10)、武汉市新洲(No. 11)、浠水市兰浠(No. 12)和鄂州市杨叶(No. 13)，采样时间为 2007 年丰水期。

涪江流域位于 30°10′～32°00′N，104°05′～105°20′E，气候条件属于亚热带季风气候，流域内气候温和，湿度大，雨量丰沛，分布有煤炭、钨矿、铅锌矿等矿产资源，涪江对该区通航和农

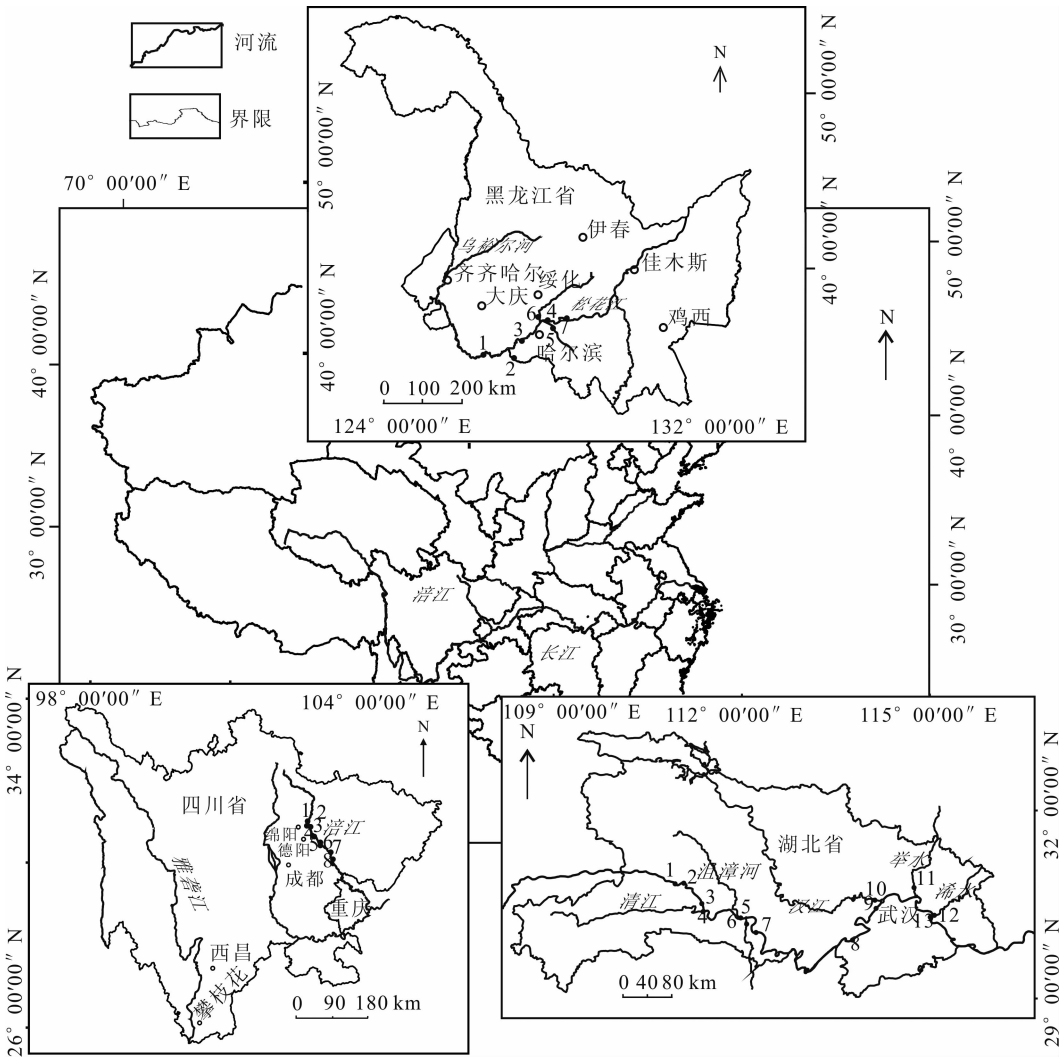


图 1 采样区域及采样点位置图

Fig. 1 Study area and sample location

业灌溉方面都有着重要的作用。本次研究的涪江河流样品分别采自涪江上游九岭段(No. 1)、安县安昌河中游(No. 2)、绵阳游仙(No. 3)、安昌河绵阳市区上游(No. 4)、绵阳市芦溪(No. 5)、涪江三台上游段(No. 6)、涪江射洪段上游(No. 7)、涪江射洪下游(No. 8),采样时间为 2008 年丰水期。

1.2 样品预处理

样品处理和测试由安徽省地质实验测试中心完成。样品处理过程如下:在 1 L 的分液漏斗中装入河水样品,以二氯甲烷作为提取剂,每次加入 20 mL 进行萃取,待样品分层后将有机相转移至烧瓶中,如此操作进行 3 次,合并提取液并进行浓缩;旋转蒸发将萃取液浓缩至 1 mL,加入 10 mL 正己烷并旋转蒸发至 1 mL 以置换溶剂,经层析柱净化;层析柱内依次放入比例为 3∶2∶1 的硅胶、氧化铝、无水硫酸钠作为净化、干燥物(所用的硅胶、氧化铝均经过溶剂抽提与活化以及去活化处理);再用溶剂淋洗,将淋洗液浓缩至 1 mL,以柔和氮气吹至 0.2 mL 定容进行检测。

1.3 样品测试与分析

检测仪器为气相色谱 - 质谱仪(GC - MSD),选择型号为 DB - 5(50 m × 0.25 mm × 0.25 μm)的色谱柱。初始温度 80 ℃并保持 5 min,然后以 30 ℃/min 的速度升至 185 ℃,接着以 3 ℃/min 的速度升至 275 ℃,再以 1 ℃/min 的速度升至 295 ℃,保持 2 min,不分流进样。载气为氦气,2.0 mL/min,柱压为 15 Psi(1 Psi = 6.895 kPa)。

为了提高数据分析的可靠性,承接分析测试的单位都严格按照《DD2005—2 区域生态地球化学评价技术要求》和《DD2005—3 生态地球化学评价样品分析技术要求》执行,通过标准参考物、实验室内部检查、密码抽查等手段,对各种样品

分析质量进行严格监控，对所有送检样品进行重复分析，要求同一样品两次测量值之间的相对误差≤30%。实验过程进行严格的监控，样品分析过程包括基质空白、溶剂空白和过程空白的分析，在本流程，基质空白样品中目标化合物较低。伴随全过程的空白实验和样品加标回收实验，16 种多环芳烃回收率为 60% ~ 120%，RSD 为 8% ~ 15%，二者的标准偏差分别为 11.5% 和 11.8%，达到了分析的要求。

2　结果与讨论

2.1　各种环境介质中多环芳烃的分布特征

本文对东北地区松花江、长江武汉段及四川地区涪江水体中的多环芳烃分布特征进行了系统的研究。美国环境保护局(EPA)推荐的 16 种优先控制的多环芳烃包括：萘、苊、二氢苊、芴、菲、蒽、荧蒽、芘、苯并[a]蒽、屈、苯并[b]荧蒽、苯并[k]荧蒽、苯并[a]芘、二苯并[a，h]蒽、茚并[1，2，3－cd]芘以及苯并[ghi]苝，在各样品中均有不同程度的检出。3 条河流水体中的多环芳烃含量分别为 88.58 ~ 139.78 ng/L、N. D. ~ 317.56 ng/L 和 43.94 ~ 81.04 ng/L(图 2)。

哈尔滨是我国的农业大省并且是我国最早的一批重型工业基地，农业以及制造加工业都久负盛名。丰富的矿产和发达的工、农业，促进了松花江水运的发展，使松花江成为东北地区主要的水运干线。研究结果表明，松花江哈尔滨附近的下游(No. 4)与上游(No. 3)，表现出下游水体中∑PAHs含量高于上游，反映了河流上游中多环芳烃对于下游的明显贡献。

在长江武汉段地区，上游地区多环芳烃检出量较低，而在武汉(No. 9)附近显著增加。多环芳烃主要来自煤、石油等有机物的不完全燃烧，因此人为因素对于其含量的影响非常重要。武汉是华中地区最大的工、商业城市，也是国家重点建设的工业城市，工业体系发达，人口众多，居全国第四。武汉当地的发展模式特点是沿江的化工企业密度大，长江水体局部承受过大压力。当地的大部分企业主要依靠土地和劳动力获得资本积累，依靠劳动密集型产品和中低端产品带动经济增长。高耗能、粗利用、乱排放的现象严重，因此该地区人为因素对多环芳烃的排放影响巨大。

绵阳人口稠密，城镇密集，涪江区段多环芳烃含量较高。涪江是绵阳市的一条主要河流，该地区工业基础坚实且矿产资源丰富，其储量在全省占有重要地位。据调查了解，涪江沿岸的采矿、化工企业对废水排放的管理不够，是影响涪江地区多环芳烃分布的重要因素。

与国内其他主要河流相比，本研究中东北地区各河流水体中∑PAHs 低于厦门港[9]、闽江口(9 900 ~ 474 000 ng/L)[10]、珠江(广州段)(987.1 ~ 2 878.5 ng/L)[11]、大亚湾(4 228 ~ 29 325 ng/L)[12]以及钱塘江(2 436 ~ 9 663 ng/L)[13]。

2.2　多环芳烃的来源

由多环芳烃的物理化学性质可知，它们大多不易溶于水，因此水体中的多环芳烃大部分以吸附形式存在。工业和生活所排放的多环芳烃通常来自“三废”的排泄，而这些排泄物可直接污染水体、大气以及土壤。此外，大气中的多环芳烃一方面可以直接吸附在大气颗粒物中，通过长距离传输污染其他地区土壤或水体，另一方面还可以通过气象环流随雨、雪沉降，从而再次污染水体[14]。受污染的土壤表层中会积累一定量的多环芳烃，地表的冲刷作用也会导致水体多环芳烃的污染。多环芳烃具有疏水性、亲脂性等特点，因

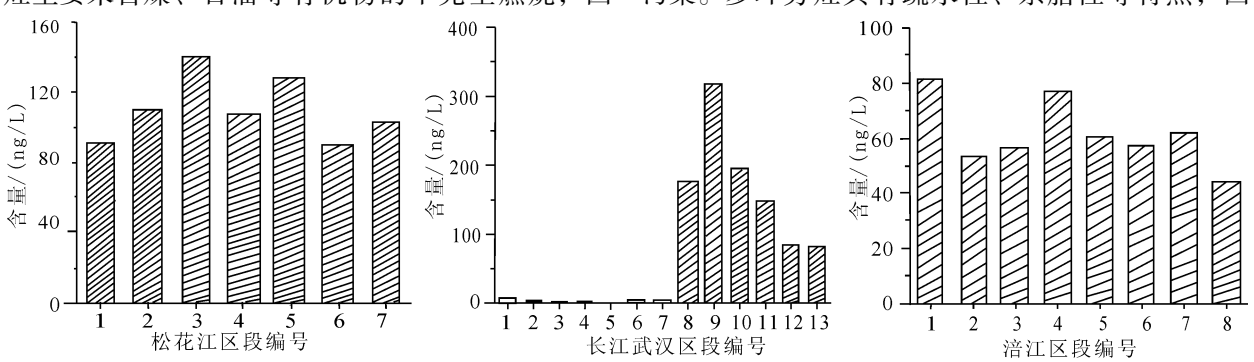


图 2　水体中多环芳烃含量

Fig. 2　The content of ∑PAHs in river water

此更倾向吸附于颗粒物和沉积物中，沉积物中积累的多环芳烃会与上覆水体发生频繁的交换作用逐渐释放，再次污染水体，这种水体污染相对于工业污染更具持久性[15]。

多环芳烃主要来自煤、石油等有机物的不完全燃烧。据研究，多环芳烃环数相对丰度可以反映其主要来源。通常低分子量多环芳烃(2－3 环，LPAHs)主要来自石油类污染，而四环及以上的多环芳烃(HPAHs)则主要是源于化石燃料高温燃烧[16]。本研究对不同环境介质中低环(主要包括萘、苊、二氢苊、芴、菲、蒽和荧蒽)及高环(包括苊、苯并[a]蒽、屈、苯并[b]荧蒽、苯并[k]荧蒽、苯并[a]芘、二苯并[a，h]蒽、茚并[1，2，3－cd]芘和苯并[ghi]苝)的百分含量进行了统计研究(图 3，图 4)。结果表明，在同期检测的水体中，松花江以及涪江地区 16 种 PAHs 以低环 PAH 为优势组分，长江武汉段水体中低环比例降低而高环比例相应增加，不同地区表现出相异的组成特征。本研究中所有样品均采自夏季，由于武汉地处内陆，距海洋远，特殊的地理位置使该地区夏季酷热而且散热慢，相对于高环的 PAHs 而言，低环 PAHs 易挥发且降解速度较快，因此该地区特殊的地理特征也是导致水体中低环比例较其他两地低的原因之一。

对于多环芳烃这类污染质，同分异构体如 M178(菲，蒽)、M202(荧蒽，芘)、M228(苯并[a]蒽，屈)、M252(苯并[b]荧蒽、苯并[k]荧蒽、苯并[a]芘)和 M276(茚并 [1，2，3－cd]芘、苯并[ghi]苝)之间具有相似的物理化学性质。在燃料油中，M178 的组合占主要优势；煤灰中，M202 和 252 的 PAHs 组合为主要组成；汽油燃烧生成物中主要是 M202、228 和 252 组合[17－19]。

本文对松花江、长江武汉段及涪江水体中多环芳烃单体进行了比较。结果表明，不同河流地区多环芳烃的组成具有明显差异。在松花江流域河流水体样品中，萘(Nap)和菲(Phe)普遍含量较高。Hwang 等[20]的研究表明，在自然界中蒽的降解速度大于菲，并且水体中浮游植物也会对菲起到生物泵的作用，从而使菲的含量大大增加。M178 含量占主要优势，认为水体中的多环芳烃主要来源于燃料油的污染，这可能是受河流通航过程中航船的影响。在长江武汉段，不同的点位表现出组成差异较大且整体含量水平高于松花江地区的特点，此结果表明该地区多环芳烃来源较复杂，分布状况受人为影响较大。在涪江流域，萘、菲和蒽较其他单体含量高，M178 含量占优势，表明多环芳烃主要来自燃料油的污染。同时，蒽和菲含量相当，表明污染物的较新来源，由于排放到环境中的时间较短，所以蒽降解现象不明显。

由于多环芳烃同分异构体组合具有明显的相似特征，因此通常用它们之间的特征比值对多环芳烃的来源进行示踪[16－18]。国内外一些研究者还根据不同来源 PAHs 组成差异上的规律，利用一些特殊指标对 PAHs 的来源进行判别。Yunker 等[21]研究认为，对于分子量均为 178 的蒽和菲，蒽/(菲＋蒽)比值小于 0.1，认为多环芳烃主要是石油来源；大于 0.1 时，可能主要为燃烧来源。此外，分子量同为 202 的荧蒽和芘，荧蒽/(荧蒽＋芘)的比值低于 0.4 为石油来源，依此，比值在 0.4 到 0.5 之间则为石油燃烧来源，而高于 0.5 时，多环芳烃可能来自煤的燃烧。根据这些指标，本文也对所采集的各种样品按不同河流的平均值

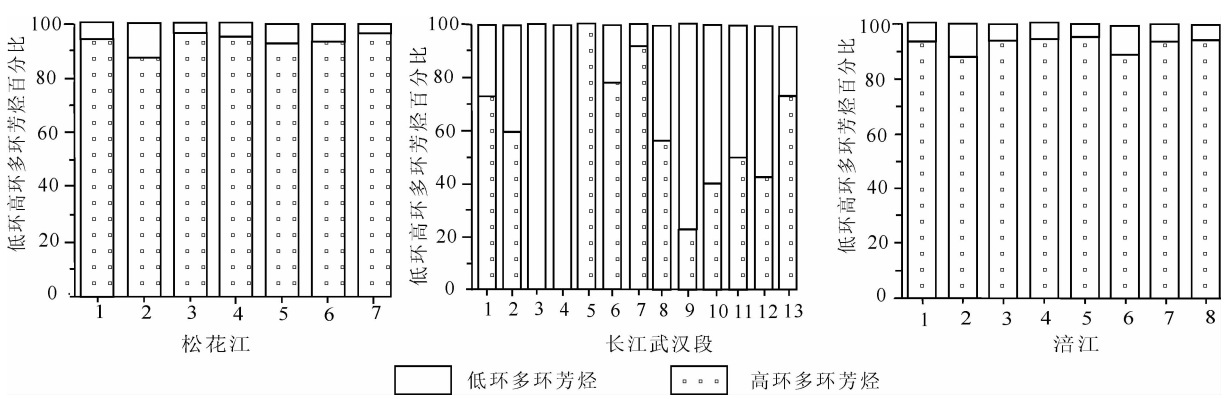


图 3 水体中低环、高环多环芳烃百分比

Fig. 3 The percentage of LPAHs and HPAHs in river water

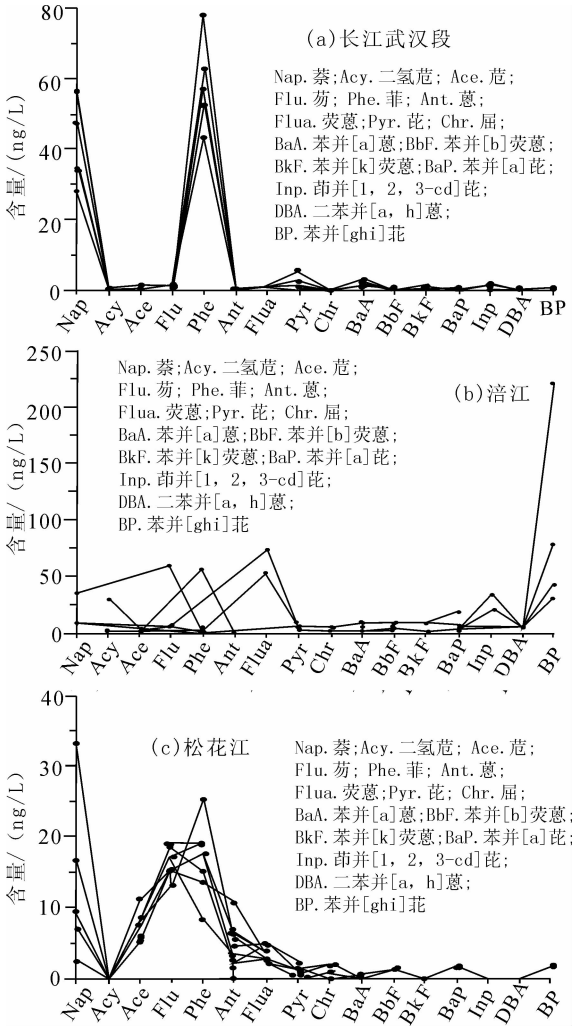


图 4　不同河流地区 16 种多环芳烃的组成特征比较

Fig. 4　Comparison of individual PAHs composition in different areas

进行了分析研究。

研究结果表明，在松花江水体样品中，蒽/(菲 + 蒽)比值均低于 0.1(图 5)，表明了河水水体中多环芳烃主要为石油来源。荧蒽/(荧蒽 + 芘)的比值主要为 <0.4 或介于 0.4 与 0.5 之间，为石油或燃烧源，两特征比值结果基本一致，并且与上文中多环芳烃同分异构体分析结果一致。长江武汉段水体样品中，由于大多数样品中蒽均未检出，且荧蒽检出率也较低，造成有些样品中此比值无法计算，再次证明了长江武汉段水体中多环芳烃来源的多样性，其分布所受的影响因素较多，较复杂。对于涪江流域，样品中蒽/(菲 + 蒽)比值均大于 0.1，且荧蒽/(荧蒽 + 芘)的比值大于 0.5，两种分析结果完全一致，表明多环芳烃主要来自燃烧源。

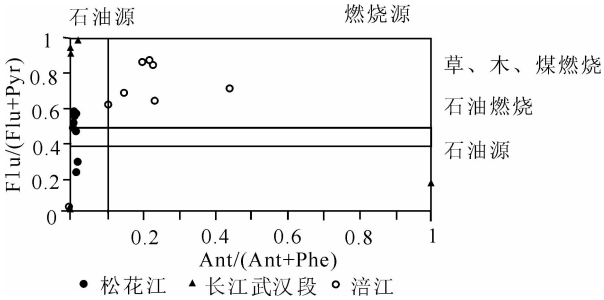


图 5　各流域水体中 PAHs 的来源

Fig. 5　The origin of PAHs in river water

中国是一个燃煤、燃油大国，多环芳烃类污染现象比较普遍。根据排放因子和相关排放活动的统计资料，估算了 16 种多环芳烃的全国年排放量[22]。结果表明，1999 年 16 种多环芳烃排放总量约为 9 799 t，其中 7 种致癌性多环芳烃排放总量约 2 000 t。为了减少多环芳烃在环境中的污染，各国都开始制定严格的排放标准和环境质量标准。根据国家环境保护总局和国家质量监督检验检疫总局于 2002 年 4 月 28 日发布的《地表水环境质量标准》(GB 3838—2002)，集中式生活饮用水地表水源地苯并[a]芘含量不得超过 2.8 ng/L。在本研究中，东北地区松花江流域水体样品中苯并[a]芘含量均低于此标准，其检出率为 100%，有可能污染源输入存在潜在威胁，所以仍需加强监测。在长江武汉段的 13 件样品中，有 5 件样品中苯并[a]芘含量高于我国生活饮用水标准，水体质量应引起有关部门注意，我们也会在今后的工作中继续对高值点进行深入调查研究。对于涪江水体，仅 1 件样品中有苯并[a]芘检出，且含量较低。

针对我国的国情，应制定一些具体的减少多环芳烃排放的方案，如工业区发展清洁能源，尽量使用燃油代替燃煤，发动机燃料用天然气来代替汽油等；另外在大城市生活区采用集中供暖，逐步实现家庭煤气化；同时，炼焦厂、炼油厂、发电厂、化工厂等应注重研发新工艺降低污染水平，边生产边治理，加大环保工作力度。

3　结　论

本文主要对东北地区的松花江、中部地区长江的武汉段以及西部四川地区的涪江流域水体中多环芳烃的污染状况进行了系统分析研究，得出以下结论。

(1)河流水体样品中 PAHs 含量分别为 88.58 ~ 139.78 ng/L、0.57 ~ 317.56 ng/L 和 43.94 ~

81.04 ng/L。

(2)在同期检测的水体中，松花江和涪江地区16种PAHs以低环PAH为优势组分，而长江武汉段水体中低环比例降低而高环比例相应增加，显示出各个流域组成特征的差异。

(3)根据多环芳烃同分异构体之间有相似的物理化学性质，对其单体之间含量进行了比较。根据多环芳烃各种同分异构体的结构特征，应用特征值比值分析方法对其来源进行探究。两种研究得出基本一致的分析结果：在松花江和涪江流域，多环芳烃主要来自燃料油的污染，而在长江武汉段流域多环芳烃来源具有多样性，其分布所受的影响因素较多，较复杂。

参考文献：

[1] Li X H, Ma L L, Liu X F, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbon in urban soil from Beijing, China [J]. Journal of Environmental Science, 2006, 18(5): 944 - 950.

[2] Kanaly R A, Shigeaki H. Biodegradation of high-molecular-weight polycyclic aromatic hydrocarbons by bacteria [J]. Journal of Bacteriology, 2000, 182: 2059 - 2067.

[3] 董雪玲，刘大锰，袁杨森，等. 北京市大气PM_{10}中有机污染物的分布特征 [J]. 现代地质，2008，22(2)：325 - 332.

[4] 秦雯雯，杨忠芳，侯青叶，等. 江西省鄱阳湖地区饮用水健康风险评价 [J]. 现代地质，2011，25(1)：182 - 188.

[5] 成杭新，杨忠芳，赵传冬，等. 区域生态地球化学预警：问题与讨论 [J]. 地学前缘，2004，11(2)：607 - 615.

[6] 祁士华，游远航，苏秋克，等. 生态地球化学调查中的有机氯农药研究 [J]. 地质通报，2005，24(8)：704 - 709.

[7] 马骁轩，冉勇，孙可，等. 珠江水系两条重要河流水体中悬浮颗粒物的有机污染物含量 [J]. 生态环境，2007，16(2)：378 - 383.

[8] 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：多环芳烃和有机氯农药的分布及特征 [J]. 环境科学学报，2000，20(2)：192 - 197.

[9] Zhou J L, Hong H, Zhang Z, et al. Multi-phase distribution of organic micropollutants in Xiamen Harbor, China [J]. Water Research, 2000, 34: 2132 - 2150.

[10] Zhang Z L, Hong H S, Zhou J L, et al. Phase association of polycyclic aromatic hydrocarbons in the Minjiang River Estuary, China [J]. Science of the Total Environment, 2004, 323(1/3): 71 - 86.

[11] 杨清书，欧素英，谢萍，等. 珠江虎门潮汐水道水体中多环芳烃的分布及季节变化 [J]. 海洋学报，2004，26(6)：37 - 48.

[12] Zhou J L, Maskaoui K. Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in water and surface sediments from Daya Bay, China [J]. Environmental Pollution, 2003, 121(2): 269 - 281.

[13] Chen Y, Zhu L, Zhou R. Characterization and distribution of polycyclic aromatic hydrocarbon in surface water and sediment from Qiantang River, China [J]. Journal of Hazard Material, 2007, 141: 148 - 155.

[14] Guo Y, Meng X Z, Tang H L, et al. Distribution of polybrominated diphenyl ethers in fish tissues from the Pearl River Delta, China: Levels, compositions, and potential sources [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 2008, 27: 576 - 582.

[15] Harmann P C, Quinn J G, Caims R W, et al. The distribution and source of polycyclic aromatic hydrocarbons in Narragansett Bay surface sediments [J]. Marine Pollution Bulletin, 2004, 48: 359 - 370.

[16] Baek S, Field R A, Goldstone M E. A review of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons: Sources, fate and behavior [J]. Water, Air & Soil Pollution, 1991, 60: 279 - 300.

[17] Blumer M. Polycyclic aromatic hydrocarbons in nature [J]. Science, 1976, 234: 34 - 35.

[18] Yunker M B, Snowdon L R, Macdonald R W, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons composition and optional source for sediments samples from the Beaufort and Barents Seas [J]. Environmental Science and Technology, 1996, 225: 181 - 205.

[19] Sicre M A, Marty J C, Saliot J. Aliphatic and aromatic hydrocarbons in different sized aerosols over the Mediterranean sea: occurrence and origin [J]. Atmospheric Environment, 1987, 21: 2247 - 2259.

[20] 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]. Atmosphere Environment, 2003, 37: 2259 - 2267.

[21] 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.

[22] 许姗姗，刘文新，陶澎. 全国多环芳烃年排放量估算 [J]. 农业环境科学学报，2005，24(3)：476 - 479.