

青海湖沉积物中多环芳烃的沉积记录^{*}

郭建阳^{1*} 廖海清² 张亮² 汤智² 吴丰昌²

¹中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550002 ²中国环境科学研究院湖泊生态环境研究中心
国家环境保护湖泊污染国家重点实验室, 北京 100080

摘要 采用 GC/MS 方法分析了青海湖沉积柱中 16 种美国 EPA 优先控制的多环芳烃 (TPAHs) 的垂直分布状况, 并对其来源进行了分析。研究表明, 0~20 cm 沉积柱中 TPAHs 的含量为 495.1~1172.5 ng·g⁻¹, 随沉积年代的更新 TPAHs 的含量呈增加趋势。这与珠江口和东海沉积柱中的记录基本一致, 但明显不同于发达国家同类研究的结果。青海湖沉积物 PAHs 以 2~3 环 (包括萘、苊、苊烯、芴、菲和葱) 为主, 其含量平均占沉积物中 PAHs 总量的 (72.4±8.9)%。青海湖沉积物中的 PAHs 主要来自长距离的大气传输, 家庭燃煤与木材的低温燃烧是其主要来源, 高温燃烧过程释放的 PAHs (如机动车尾气的排放) 近年来有明显增加的趋势。

关键词 青海湖; 沉积柱; 多环芳烃; 来源

中图分类号 X131.2 **文献标识码** A **文章编号** 1000-4890(2011)7-1467-06

Historical records of sediment polycyclic aromatic hydrocarbons in Qinghai Lake, Northwest China. GUO Jianyang^{*}, LIAO Haiqing, ZHANG Liang, TANG Zhi, WU Fengchang (¹ State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China; ² State Environmental Protection Key Laboratory for Lake Pollution Control, Research Center of Lake Eco-Environment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100080, China). Chinese Journal of Ecology, 2011, 30(7): 1467-1472.

Abstract By adopting GC/MS techniques, this paper analyzed the vertical distribution of 16 priority polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) proposed by US EPA in a dated 0-20 cm sediment core from Qinghai Lake in Northwest China, and identified the possible sources of the PAHs. The total PAHs (sum of 16 the priority PAHs, TPAHs) concentration in the core ranged from 495.1 to 1172.5 ng·g⁻¹, and had an increasing trend from deeper layer to surface layer. The vertical profile of the sediment PAHs in Qinghai Lake was basically similar to that in the East China Sea and the Pearl River Estuary, but clearly different from that in developed countries. The sediment PAHs in Qinghai Lake were dominated by 2-3 rings PAHs (including naphthalene, acenaphthylene, acenaphthene, fluorene, phenanthrene, and anthracene), accounting for 72.4%±8.9% of TPAHs on an average. The sediment PAHs in Qinghai Lake were mainly originated from the long distance atmospheric transport resulting from low temperature combustion of domestic coal and woods, but the PAHs from high temperature process (such as vehicle emission) had an obvious increasing trend in recent years.

Key words Qinghai Lake; sediment core; polycyclic aromatic hydrocarbon; source

多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 广泛存在于自然界中。由于其在环境中的持

久性、可长距离迁移和潜在的致癌、致畸能力, PAHs 成为大家广泛关注的持久性有机污染物之一。从全球范围来看, 发达国家和地区, 如美国、欧洲和日本 PAH 的排放在 20 世纪 70、80 年代达到顶峰, 随后基本呈下降的趋势 (Yamashita et al., 2000; Li et al.,

^{*} 国家自然科学基金项目 (40973087)、国家重点基础研究发展计划项目 (2009CB421103) 和中国科学院“西部之光”博士项目资助。

^{**} 通讯作者 E-mail: guojianyang@mails.gyig.ac.cn

收稿日期: 2010-11-15; 接受日期: 2011-04-18

2001; Rose & Røpke 2002)。然而, 格陵兰冰芯的研究发现, 自工业革命直至 20 世纪 90 年代, PAHs 一直呈上升的趋势 (Masclet et al., 1995), 这可能和发展中国家尤其是中国和印度等近年来 PAH 排放持续增长有关 (Zhang & Tao 2009)。最近的评估显示, 2003 年我国排放的 16 种美国 EPA 优先控制的 PAHs 总量已经达到 25300, 接近美国历年来排放量的最大值 (Xu et al., 2006)。湖泊沉积物是 PAHs 一个重要的汇, 大量的 PAH 排放使我国湖泊水环境承受着越来越大的压力。

使用钻孔沉积物是重建水环境有机污染物历史的很好方法, 国内外已经有了大量的工作 (王新红等, 1997; 吴莹和张经, 2001; Lima et al., 2003; Kannan et al., 2005; Liu et al., 2005; Guo et al., 2006; 郭建阳等, 2010)。本研究应用 ^{137}Cs 同位素方法对青海湖的沉积柱进行定年, 并利用 GC-MS 方法对沉积柱中 PAH 进行测定。目的是为了重新构建青海湖 PAH 的污染历史, 并根据沉积物中 PAH 的组成特征对其来源进行了分析和评价。

1 材料与方法

1.1 样品的采集

样品于 2006 年 8 月用自重力式采样器进行采集, 为了避免河流输入或生活污水的影响, 采样点定位于青海湖中心偏北的位置 ($36^{\circ}57'N$, $100^{\circ}05'E$)。沉积物现场用不锈钢刀进行切割, 然后装入密封袋冷藏保存, 尽快运回实验室后于 -20°C 保存。

1.2 试剂和仪器

仪器: PAHs 测定使用美国安捷伦公司生产的气相色谱质谱联用仪 (Agilent 6890-5973 GC-MSD); 沉积柱定年采用 Canbena 公司生产的 S100 多道能谱仪 (配备 GCW3022 HPLC 同轴检测器)。 ^{137}Cs 分析用光谱直接测定, 液体标准品由中国科学院原子能研究所提供。总有机碳 (TOC) 测定采用德国 Varjo EL II 元素分析仪进行分析。

试剂: 正己烷、二氯甲烷、甲醇和丙酮等有机溶剂均为分析纯, 并经二次蒸馏后使用; 无水 Na_2SO_4 为分析纯; 硅胶 (100~200 目) 和氧化铝 (80~100 目) 均为层析用, 使用前均用甲醇和二氯甲烷分别抽提 48 h。PAHs 标准物质购自美国 Ultra Scientific。所有玻璃器皿均用铬酸洗液清洗后, 在

马弗炉中焙烧, 使用前用溶剂淋洗。

1.3 样品预处理

样品经冷冻干燥、研磨、过筛, 于密封袋中 4°C 冰箱中保存备用。准确称取 5~10 g 样品加入回收率指示物后用 200 mL 正己烷-丙酮 (1:1 体积比) 混合溶剂索氏抽提 48 h。抽提液浓缩并置换为正己烷后, 过氧化铝-硅胶层析柱 (1:2 体积比) 进行分离纯化。PAHs 组分用 70 mL 二氯甲烷-正己烷 (3:7 体积比) 的混合溶剂淋洗, 淋洗液浓缩并置换溶剂为正己烷后定容为 200 μL 。加入内标 Fluorobio-Phenyl 和 Terphenyl-d4 后进行仪器分析。

1.4 仪器分析条件

PAH 采用美国安捷伦公司生产的气相色谱质谱联用仪 (Agilent 6890-5973 GC-MSD) 进行测定, 采用内标法和多点校正曲线进行定量分析。色谱条件: 色谱柱为 DB-ms (60 m \times 250 μm \times 0.25 μm); 升温程序: 80°C 保持 1 min 然后以 $10^{\circ}\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 180°C , $2^{\circ}\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 220°C , 最后以 $8^{\circ}\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 290°C , 保持 30 min。进样口温度为 280°C ; 载气为高纯氮气, 流量为 1.5 mL $\cdot \text{min}^{-1}$; 采用分流进样, 进样量为 1 μL 。

1.5 质量保证与质量控制

用空白、空白加标、基质加标、基质加标平行样进行质量控制。空白样品中有少量低环数的 PAHs 检出。空白加标中 16 种 PAH 的回收率为 $(75.8 \pm 4.9)\%$ ~ $(114.3 \pm 8.2)\%$ 。基质加标中 16 种 PAH 的回收率为 $(60.8 \pm 1.1)\%$ ~ $(120.9 \pm 9.1)\%$ 。平行样的相对标准偏差均低于 10%。氘代回收率指示物的平均回收率分别为萘-d₈ ($63.0 \pm 9.4\%$)、二氢茈-d₁₀ ($76.5 \pm 10.5\%$)、菲-d₁₀ ($77.2 \pm 13.8\%$)、屈-d₁₂ ($84.6 \pm 5.8\%$) 和北-d₁₂ ($86.2 \pm 18.0\%$)。仪器检测限定义为信噪比的 3 倍, 基于 5 g 沉积物 (定容为 200 L), 16 种 PAH 的检测限为 0.01~0.02 ng $\cdot \text{g}^{-1}$ (干重含量, 以下均以干重计), 最后结果经空白扣除和回收率校正。

2 结果与分析

2.1 青海湖钻孔沉积物中 PAHs 的垂直分布

由表 1 可见, 青海湖沉积物 0~20 cm 16 种美国 EPA 优先控制的 PAHs 在样品中均有检出, PAHs 的总量 (TPAHs) 为 495.1~1172.5 ng $\cdot \text{g}^{-1}$; 总有机

表 1 青海湖沉积柱中 TOC 和 PAH 的垂直分布
Table 1 Vertical distribution of TOC and PAHs in sediment core from Qinghai Lake

深度 (m)	TOC 含量 (%)	∑2~3环 (ng·g ⁻¹)	∑4环 (ng·g ⁻¹)	∑5~6环 (ng·g ⁻¹)	TPAHs (ng·g ⁻¹)
0~1	2.64	672.3	220.8	279.5	1172.5
1~2	2.69	467.4	149.4	198.8	815.5
2~3	2.73	352.5	110.6	141.2	604.3
3~4	2.44	444.1	116.4	121.5	682.0
4~5	2.31	438.0	105.2	91.9	635.1
5~6	2.30	427.6	74.9	58.8	561.3
6~7	2.14	446.0	86.4	33.6	566.0
7~8	2.30	412.0	68.7	37.1	517.8
8~9	2.32	465.1	98.4	39.6	603.1
9~10	2.09	536.4	195.5	42.4	774.2
10~12	2.03	436.7	62.8	35.7	535.3
12~14	2.04	476.6	99.1	39.4	615.1
14~16	2.00	392.2	64.0	38.8	495.1
16~18	1.43	490.9	79.6	35.9	606.5
18~20	1.66	528.8	106.1	40.8	675.7

碳含量归一化的 TPAHs 为 22.1~44.5 g·g⁻¹。沉积物 PAH 以菲和芴为主, 其中, 菲含量为 221.7~312.9 ng·g⁻¹, 占 TPAH 的 26.3%~45.1%; 芴含量为 96.2~131.2 ng·g⁻¹, 占 TPAHs 的 11.2%~20.5%; 二者平均占沉积物中 TPAH 的 (55.9±9.2)%。虽然菲和芴占 TPAH 的比例较大, 但其在沉积柱中的浓度变化波动较大, 只是在表层沉积物中才有明显的增加。值得一提的是, 高环 (5~6 环) 的 PAH 在沉积柱底部变化很小, 基本代表其在沉积物中的背景值。青海湖沉积物中 PAH 的背景值分别为苯并 [b] 荧蒹: (8.9±1.2) ng·g⁻¹, 苯并 [k] 荧蒹: (4.9±0.3) ng·g⁻¹, 苯并 [a] 芘: (3.4±0.2) ng·g⁻¹, 二苯并 [a,h] 蒹: (2.5±0.5) ng·g⁻¹, 茚并 [1,2,3-cd] 芘: (7.5±0.8) ng·g⁻¹, 苯并 [g,h] 花: (10.9±1.3) ng·g⁻¹。总体来看, 沉积物中 2~3 环的 PAHs (包括萘、蒽、芘、菲和蒹) 占 TPAH 的 (72.4±8.9)%, 4 环的 PAHs (包括荧蒹、芘、苯并 [a] 蒹和屈) 和 5~6 环的 PAHs (包括苯并 [b] 荧蒹、苯并 [k] 荧蒹、苯并 [a] 芘、二苯并 [a,h] 蒹、茚并 [1,2,3-cd] 芘和苯并 [g,h] 花) 分别占 TPAH 的 (16.1±3.3)% 和 (11.5±7.3)%。

根据 ¹³⁷C 同位素定年的结果, 青海湖沉积物在近半个世纪内的平均沉积速率为 0.07 cm·a⁻¹, 由此推算 20 cm 的沉积柱大约 300 年 (由于 ¹³⁷C 同位素定年的结果只能准确到 50 年, 因此在此之前的沉积时间均为推算值) (图 1)。从垂直分布看,

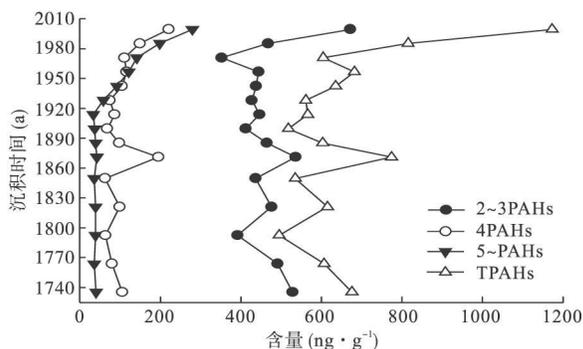


图 1 青海湖沉积柱中 PAHs 含量的垂直变化
Fig 1 Vertical profile of PAHs concentrations in sediment core in Qinghai Lake

TPAHs 在青海湖钻孔沉积物中的垂直变化基本上分为 3 个不同的阶段: 第 1 阶段 (20 世纪 50 年代前), TPAH 的垂直变化波动较大, 但没有明显上升的特征; 第 2 阶段 (20 世纪 50—80 年代), TPAH 的垂直变化呈现一个缓慢增长的过程, 但这一时期沉积物柱 5~6 环 PAH 的含量明显增加; 第 3 阶段 (20 世纪 80 年代至今), TPAHs 包括三类不同环数的 PAH 的垂直变化均快速增加。5~6 环的 PAHs 在第 1 阶段的前期基本上没有变化, 但后两个阶段明显上升, 而 2~3 环和 4 环的 PAH 的垂直变化基本上与 TPAH 类似。

20 世纪初是人类能源使用 (从木材到煤) 的一个转折期。在此之前, 人们使用的燃料以木材为主, 排放的 PAHs 是以中低环的 PAHs 为主。在 20 世纪 20 年代, 高环 (5~6) 的 PAH 含量变化较小, 基本代表沉积物中背景值, 此时期中低环 (2~4) 的 PAH 含量有点波动。20 世纪 50—80 年代, 由于煤在燃料结构中的比重逐渐增大, 中高环 (4~6) PAHs 含量在沉积物中逐渐增加, 但低环 (2~3) 的 PAHs 含量变化较小。而在 20 世纪 80 年代至今, 这是我国社会经济快速发展的一个时期, 燃料的使用 (尤其是石化燃料的使用) 进入一个快速增长的时期。这时, 沉积物中 PAHs 也呈现一个快速增长的过程, 其中高环数的 PAHs 增加的尤为明显。沉积物中 PAH 的垂直变化基本上反映了近年来我国社会经济的发展 and 燃料使用结构的状况。

2.2 不同国家和地区 PAH 的历史变化趋势

利用沉积柱来研究 PAH 的历史变化趋势, 国内外有许多相关的研究 (Fernandez et al., 2000; Liu et al., 2005; Guo et al., 2006; Ishitake et al., 2007)。

Li等(2005)对珠江口沉积柱的研究发现,沉积物中的 PAH 自下至上呈缓慢增长的趋势,但从 20 世纪 80 年代开始呈现一个快速增长的过程。这和青海湖沉积柱中 PAH 的垂直变化趋势基本一致。而 Guo等(2006)对东海沉积柱的研究显示,在 20 世纪 40 年代之前,沉积物中的 PAH 呈缓慢增长的趋势,随后沉积物中 PAH 浓度的增加明显加快。其中,20 世纪 60—70 年代有一个短暂略微下降的时期,这也与青海湖沉积柱中 PAH 的沉积记录非常吻合。

与国外同类的研究相比较,本研究结果明显不同于韩国(Yim et al., 2005)、日本(Ishitake et al., 2007)、美国(Sincik et al., 1996; Lima et al., 2003)和欧洲(Fernandez et al., 2000)沉积柱中 PAH 的垂直变化趋势。在 Michigan 湖(Sincik et al., 1999),沉积物中的 PAHs 在 1930—1975 年达到顶峰,而 Rhode 岛沉积柱中的 PAHs 在 20 世纪 50 年代达到峰值(Lima et al., 2003)。在日本 Osaka 沉积柱中的也是在 20 世纪 50 年代达到峰值(Ishitake et al., 2007),随后呈下降的趋势。在欧洲的湖泊沉积柱中(Fernandez et al., 2000),PAH 在 1960—1980 年达到最大值,随后也呈下降的趋势。而青海湖沉积柱中的 PAHs 在 1930 年至今一直呈增加趋势。

2.3 青海湖 PAH 的来源

环境中污染物来源的识别对于环境污染控制和制定相应的对策具有重要的意义,沉积物中 PAHs 可能来自当地的污染源,也可能是通过长距离大气传输的结果。有研究表明,苯并[a]蒎和苯并[a]芘比屈和苯并[a]芘在大气中更易发生光降解反应,因此苯并[a]蒎屈(BaA/Chry)和苯并[a]芘(BaP/BeP)比值常常用来表征 PAHs 受到光降解的程度(Goglio et al., 1996; Tolosa et al., 1996)从而可以判断 PAH 输送途径的长短。青海湖沉积柱中苯并[a]蒎屈(BaA/Chry)的值为 0.36~0.51(平均值为 0.41±0.04)而苯并[a]芘(BaP/BeP)的值为 0.39~0.49(平均值为 0.44±0.03)。表明青海湖沉积物中的 PAH 主要来自长距离的大气传输。

环境中 PAHs 的人为来源主要可分为油成源(如石油的意外泄漏)和热成源(如化石燃料和木材的燃烧)。目前对于环境中 PAHs 来源的识别有很多方法,包括分子比值法(Sincik et al., 1999; Colombo et al., 2006)、主成分分析法(Principal compo-

表 2 判定 PAHs 来源的特征分子比值 (Katsoyiannis et al., 2007)

Table 2 Characteristic PAH molecular diagnostic ratios

	油成源		热成源	
		石化燃料 高温燃烧	家庭燃煤和 木材燃烧	
Ant/Anth-Phen	< 0.1	> 0.1	> 0.1	
Flu/Flu+Pyr	< 0.4	0.4~0.5	> 0.5	
NP/NP+BghiP	< 0.2	0.2~0.5	> 0.5	

nent analysis PCA)(Guo et al., 2006)、因子分析法(factor analysis FA)(Christensen & Arora, 2007)和化学质量平衡法(chemical mass balance CMB)(Guo et al., 2003)等。其中分子比值法是最常见的一种方法。常用的特征分子比值包括蒎/蒎+菲(Ant/Anth-Phen)、荧蒎/荧蒎+芘(Flu/Flu+Pyr)、苯并[a]蒎/苯并[a]蒎+屈(BaA/BaA+Chry)、茚并[1,2,3-cd]芘/茚并[1,2,3-cd]芘+苯并[a]芘(NP/NP+BghiP)等。如果 Ant/Anth-Phen < 0.1、Flu/Flu+Pyr < 0.4 和 NP/NP+BghiP < 0.2 说明 PAH 主要是油成源,反之则为热成源。而热成源的 PAHs 又分为两类:家庭燃煤和木材的中低温燃烧,其特征分子比值为:Flu/Flu+Pyr 和 NP/NP+BghiP 均 > 0.5; 如果 Flu/Flu+Pyr 介于 0.4~0.5 之间和 NP/NP+BghiP 介于 0.2~0.5 之间,则说明 PAH 主要来自石化燃料的高温燃烧(表 2)。青海湖沉积物中 PAH 的特征分子比 Ant/Anth-Phen、NP/NP+BghiP 和 Flu/Flu+Pyr 的比值分别为 0.13±0.01、0.45±0.06 和 0.57±0.04。这些特征均说明青海湖的 PAH 主要来源于家庭燃煤和木材的燃烧。

从图 2 可以看出,中低环数的 PAHs(包括萘、

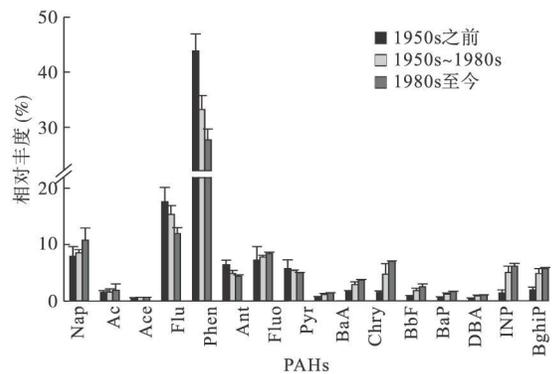


图 2 不同时间段青海湖沉积柱中各 PAH 的相对含量
Fig 2 Relative abundance of individual PAHs species in different time intervals

芘、芴、菲、蒽、荧蒽和芘)在沉积柱中的相对含量自下至上基本上呈逐渐下降的趋势,尤其是芴和菲;高环 PAHs(包括苯并[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]花)的相对含量均较小,但其在沉积柱中的相对含量呈明显上升的趋势,其中苯并[b]荧蒽、茚并[1,2,3-cd]芘和苯并[ghi]花表现得尤为突出。苯并[b]荧蒽是一个高温燃烧过程的主要产物(Mai et al., 2003),而茚并[1,2,3-cd]芘和苯并[ghi]花是机动车排放 PAHs的指示物(MGuel & Pereira 1989; Harrison et al., 1996)。这说明近年来高温燃烧过程排放的 PAHs(如机动车尾气的排放)在青海湖沉积物中有明显增加的趋势。

3 结论

青海湖沉积物中 16 种美国 EPA 优先控制的 PAHs 均有检出,其含量范围为 495.1 ~ 1172.5 ng·g⁻¹。青海湖沉积物中的 PAHs 由底层至表层基本上呈上升的趋势。青海湖沉积物中的 PAHs 以 2~3 环(包括萘、芘、芴、菲和蒽)的 PAH 为主。青海湖沉积物中的 PAH 主要来自远距离大气传输;而从沉积物中 PAH 的组成特征来看,青海湖沉积物中的 PAHs 主要来源于煤和木材的低温燃烧,但近年来高温燃烧过程排放的 PAHs(如机动车尾气的排放)在青海湖沉积物中有明显增加的趋势。

参考文献

- 郭建阳, 廖海清, 韩梅, 等. 2010 密云水库沉积物中多环芳烃的垂直分布、来源及生态风险评估. 环境科学, 31(3): 75-80
- 王新红, 徐立, 陈伟琪, 等. 1997 厦门西港沉积物中多环芳烃的垂直分布特征与污染追踪. 中国环境科学, 17(1): 19-22
- 吴莹, 张经. 2001 多环芳烃在渤海海峡柱状沉积物中的分布. 环境科学, 22(2): 74-77
- Christensen ER, Arora S. 2007. Source apportionment of PAHs in sediments using factor analysis by time records. Application to Lake Michigan, USA. Water Research, 41: 168-176
- Colombo JC, Cappelletti N, Lasci J, et al. 2006. Sources, vertical fluxes, and equivalent toxicity of aromatic hydrocarbons in coastal sediments of the Rode la Plata Estuary, Argentina. Environmental Science and Technology, 40: 734

- 740

- Fernandez P, Vilanova RM, Martinez C, et al. 2000. The historical record of atmospheric pyrolytic pollution over Europe registered in the sedimentary PAH from remote mountain lakes. Environmental Science and Technology, 34: 1906-1913
- Goglio A, Stratigakis N, Kanakidou M, et al. 1996. Organic aerosols in Eastern Mediterranean. Components source reconciliation by using molecular markers and atmospheric back trajectories. Organic Geochemistry, Organic Geochemistry, 25: 79-96
- Gu SH, Krupvec AC, Christensen ER, et al. 2003. Source apportionment of PAHs in dated sediments from the Black River, Ohio. Water Research, 37: 2149-2161
- Guo Z, Lin T, Zhang G, et al. 2006. High-resolution depositional records of polycyclic aromatic hydrocarbons in the central continental shelf mud of the East China Sea. Environmental Science and Technology, 40: 5304-5311
- Harrison RM, Smith DJ, Luhana L. 1996. Source apportionment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons collected from an urban location in Birmingham, UK. Environmental Science and Technology, 30: 825-832
- Ishizake M, Moriwaki H, Kawai H, et al. 2007. Vertical profile of polycyclic aromatic hydrocarbons in a sediment core from a reservoir in Osaka City. Environmental Geology, 52: 123-129
- Kannan K, Johnson-Restrepo B, Yohn SS, et al. 2005. Spatial and temporal distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from Michigan inland lakes. Environmental Science and Technology, 39: 4700-4706
- Katsoyiannis A, Terzi E, Cai QY. 2007. On the use of PAH molecular diagnostic ratios in sewage sludge for the understanding of the PAH sources. Is this use appropriate? Chemosphere, 69: 1337-1339
- Li K, Christensen ER, van Camp RP, et al. 2001. PAHs in dated sediments of ashtabula river, Ohio, USA. Environmental Science and Technology, 35: 2896-2902
- Lima AL, Eglington TJ, Reddy CM, et al. 2003. High-resolution record of pyrogenic polycyclic aromatic hydrocarbon deposition during the 20th Century. Environmental Science and Technology, 37: 53-61
- Liu QQ, Zhang G, Li XD, et al. 2005. Sedimentary record of polycyclic aromatic hydrocarbons in a sediment core from the Pearl River Estuary, South China. Marine Pollution Bulletin, 51: 912-921
- Mai BX, Qi SH, Zeng EY, et al. 2003. Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in the coastal region off Macao, China: Assessment of input sources and transport pathways using compositional analysis. Environmental Science and

- Technology **37**: 4855—4863
- Masclet P, Høvu V, Jaffrezou JL et al 1995 Evidence for the presence of polycyclic aromatic hydrocarbons in the polar atmosphere and in the polar ice of Greenland. *Analyst* **23**: 250—252
- Miguel AH, Pereira PAP 1989 Benz[a]fluoranthene, benz[ghi]perylene and indeno[1,2,3-cd]pyrene: New tracers of automotive emissions in receptor modeling. *Aerosol Science and Technology* **10**: 292—295
- Rose NL, Rippey B 2002 The historical record of PAH, PCB, trace metal and fly ash particle deposition at a remote lake in north-west Scotland. *Environmental Pollution* **117**: 121—132
- Sincik MF, Eisenreich SJ, Golden KA et al 1996 Atmospheric loading of polycyclic aromatic hydrocarbons to Lake Michigan as recorded in the sediments. *Environmental Science and Technology* **30**: 3039—3046
- Sincik MF, Eisenreich SJ, Liø PJ 1999 Source apportionment and source/sink relationships of PAHs in the coastal atmosphere of Chicago and Lake Michigan. *Atmospheric Environment* **33**: 5071—5079
- Topsa I, Bayouna M, Albaladejo J 1996 Aliphatic and polycyclic aromatic hydrocarbons and sulphur/oxygen derivatives in northwestern Mediterranean sediments. Spatial and temporal variability: fluxes and budgets. *Environmental Science and Technology* **30**: 2495—2503
- Xu S, Liu W, Tao S 2006 Emission of polycyclic aromatic hydrocarbons in China. *Environmental Science and Technology* **40**: 702—708
- Yamashita N, Kannan K, Imagawa T et al 2000 Vertical profile of polychlorinated dibenzo-p-dioxins, dibenzofurans, naphthalenes, biphenyls, polycyclic aromatic hydrocarbons, and alkyphenols in a sediment core from Tokyo Bay, Japan. *Environmental Science and Technology* **34**: 3560—3567
- Yin UH, Hong SH, Shin WJ et al 2005 Spatial-temporal distribution and characteristics of PAHs in sediments from Masan Bay, Korea. *Marine Pollution Bulletin* **50**: 319—326
- Zhang Y, Tao S 2009 Global atmospheric emission inventory of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) for 2004. *Atmospheric Environment* **43**: 812—819

作者简介 郭建阳, 男, 1972年生, 博士, 助理研究员。主要从事环境中持久性有机污染物的研究。E-mail: guojianyang@mails.gygc.cn

责任编辑 魏中青
