

太湖及周边河流表层沉积物中PAHs的分布、来源与风险评价

康杰^{1,2}, 胡健^{3*}, 朱兆洲¹, 刘小龙¹, 王中良¹, 白莉¹, 李军¹ (1.天津师范大学天津市水资源与水环境重点实验室, 天津 300387; 2.天津师范大学城市与环境科学学院, 天津 300387; 3.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, 贵州 贵阳 550002)

摘要: 对太湖及周边河流表层沉积物中 16 种美国环保署优先控制的 PAHs 含量进行了检测和分析。结果表明, 太湖沉积物中 PAHs 总量介于 0.77~4.20 $\mu\text{g/g}$ 之间, 平均值为 1.63 $\mu\text{g/g}$, 太湖周边河流沉积物中 PAHs 总量介于 0.58~6.13 $\mu\text{g/g}$ 之间, 平均值为 2.92 $\mu\text{g/g}$ 。不同湖区沉积物中 PAHs 的空间分布差异显著, 其中梅梁湾、贡湖湾以及东太湖沉积物中 PAHs 含量分别为(2.48 \pm 1.14) $\mu\text{g/g}$ 、(1.89 \pm 0.52) $\mu\text{g/g}$ 和(2.13 \pm 0.50) $\mu\text{g/g}$, 周边河流中梁溪河、吴淞江及长兴港含量分别为 7.34、6.13、5.54 $\mu\text{g/g}$ 。利用低环/高环比值法、同分异构体比值法和主成分分析-多元线性回归(PCA-MLR)模型分析了污染源类型及贡献率, 结果表明, 太湖及其周边河流表层沉积物中 PAHs 主要来源为燃烧来源, 太湖沉积物 PAHs 石油源贡献率为 24%, 燃烧源贡献率为 76%, 太湖周边河流石油源贡献率为 41%, 燃烧源贡献率为 59%。使用沉积物质量标准法(SQSs)和 BaPE(BaP 当量浓度)对 PAHs 毒性进行评估, 得出太湖及周边河流具有一定的潜在毒性, 尤其是太湖周边河流。

关键词: 多环芳烃; 沉积物; 来源; 风险评价; 太湖

中图分类号: X131 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2017)03-1162-09

Distribution, source and risk assessment of PAHs in surface sediments from Taihu Lake and its surrounding rivers.

KANG Jie^{1,2}, HU Jian^{3*}, ZHU Zhao-zhou¹, LIU Xiao-long¹, WANG Zhong-liang¹, BAI Li¹, LI Jun¹ (1.Tianjin Key Laboratory of Water Resources and Environment, Tianjin Normal University, Tianjin 300387, China; 2.Urban and Environmental Science College, Tianjin Normal University, Tianjin 300387, China; 3.State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China). *China Environmental Science*, 2017,37(3): 1162~1170

Abstract: The concentrations of 16US EPA priority PAHs in surface sediments from Taihu Lake and its surrounding rivers were detected and analyzed. It was found that the total concentrations of PAHs in surface sediments from Taihu Lake ranged from 0.77 to 4.20 $\mu\text{g/g}$, with a mean of 1.63 $\mu\text{g/g}$, and the total concentrations in surrounding rivers ranged from 0.58 to 6.13 $\mu\text{g/g}$, with a mean of 2.92 $\mu\text{g/g}$. A significant difference of PAHs was found in spatial distribution from different lake sediments. The mean concentrations of Meiliang Bay, Gonghu Bay and the East Taihu Lake were 2.48 \pm 1.14 $\mu\text{g/g}$, 1.89 \pm 0.52 $\mu\text{g/g}$ and 2.13 \pm 0.50 $\mu\text{g/g}$, respectively, and the mean concentrations of its surrounding rivers Liangxi River, Suzhou River and Changxing Harbor were 7.34 $\mu\text{g/g}$, 6.13 $\mu\text{g/g}$ and 5.54 $\mu\text{g/g}$, respectively. Using the ratio method, the isomer ratio method, and Principal Component Analysis and Multiple Linear Regression (PCA-MLR), this study analyzed the pollution sources and contribution rates, suggesting that the main source of PAHs in surface sediments from Taihu Lake and its surrounding rivers was the combustion source. The oil source contribution rate of Taihu Lake was 24%, and the combustion source contribution rate was 76%, while the oil source contribution rate of its surrounding rivers was 41%, and the combustion source contribution rate was 59%. Sediment quality criteria (SQSs) and BaPE(BaP equivalent concentrations) were employed to assess the toxicity of PAHs. It was concluded that Taihu Lake and its surrounding rivers had a certain potential toxicity, especially in its surrounding rivers.

Key words: PAHs; sediments; source; risk assessment; Taihu Lake

收稿日期: 2016-07-15

基金项目: 国家科技重大专项(2012ZX07503003001); 国家自然科学基金(41302285,41403082,40703021); 天津自然科学基金(14JJCQNJC08600,14JJCQNJC08800)

* 责任作者, 副研究员, hujian@vip.skleg.cn

多环芳烃(PAHs)是一类化学性质稳定、很难自然降解且具有生物积累性的持久性有机污染物,多数单体 PAH 具有致癌性、致畸性和致突变性,因此 PAHs 在自然环境中的累积和环境效应受到广泛的关注^[1].由于具有较高的辛醇-水分配系数,水体中的 PAHs 多吸附在悬浮颗粒物上,沉积物成了 PAHs 的主要载体和最终归宿^[2],而且沉积物中的 PAHs 会通过食物链逐级传递,危害人类健康并影响周围生态环境^[3].

太湖位于长江三角洲的南部,是我国第二大淡水湖.近年来,由于长三角地区经济发展迅速,太湖及其周边河流人类活动强度加大,农业生物质燃料、工业化石燃料燃烧、车船尾气排放和油类泄露产生的 PAHs 对太湖及周边河流产生了巨大的影响^[4-7].因而,近年来太湖及周边河流表层沉积物中 PAHs 的相关研究引起了广泛的关注,但当前对太湖及周边河流 PAHs 来源和风险评价的研究较少,研究多集中在湖泊沉积物^[8-10],缺乏对太湖及周边河流沉积物中 PAHs 差异的系统把握.本文选取了 25 个太湖湖区及 13 个周边河流采样点进行了沉积物 PAHs 含量研究,并对其中沉

积物中 PAHs 的潜在毒性做了评价,旨在为太湖的管理提供参考.

1 材料与方法

1.1 样品采集与处理

于 2015 年 9 月对太湖及周边河流进行了沉积物样品的采集,采样点位置根据 GPS 数据进行布设,使用抓斗式采泥器(德国 Hydro-Bios 公司)分别采集了 25 个湖区和 13 个周边河流表层沉积物样品,采样点分布见图 1.湖泊采样点主要按湖区功能和网格设置,河流样品主要在河流近湖口设置.太湖研究区主要包括梅梁湾(点位 1,2,3)、竺山湾(点位 8,9,10)、贡湖(点位 4,5,6)、胥湖(点位 14,20,21,22)、东太湖(点位 23,24,25)、西南沿岸区(点位 12,17,18,19)和湖心区(点位 7,11,13,15,16).样品保存于保温箱中运至实验室后,于-20℃冷冻干燥保存,过 100 目筛后备用.样品采用超声萃取方法,准确称量 5g 沉积物、3g 无水 Na₂SO₄ 于离心管中,添加回收率指示物 200μL,用二氯甲烷进行超声萃取,固相萃取小柱(沃特世 Oasis HLB 固相萃取小柱)回收,旋蒸至 1mL.

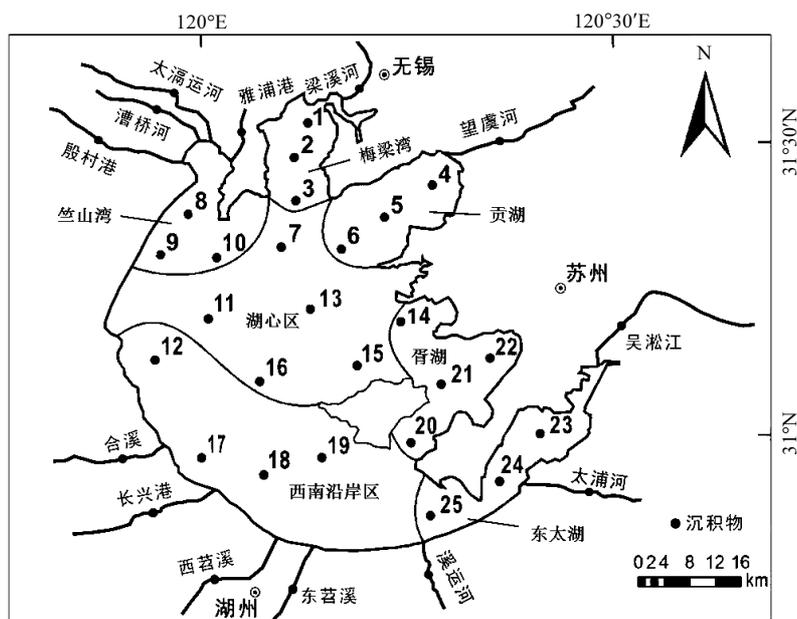


图 1 采样分布示意

Fig.1 Sampling point distribution

1.2 样品分析

本研究中测定的 16 种 PAHs,分别是萘(Nap)、蒽(Anth)、芘(Per)、苊(Flu)、菲(Phen)、蒽(Anth)、荧蒽(Fluoranthene)、芘(Pyrene)、苯并[a]蒽(BaA)、[Ch]、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[a]芘(BaP)、茚并[1,2,3-cd]芘(IcdP)、二苯并[a,h]蒽(DahA)、苯并[ghi]芘(BghiP)。PAHs 的测定采用 Thermo 气相色谱质谱联用仪(DSQ II Single Quadrupole GC/MS with FOCUS GC)。气相色谱柱为 Agilent 毛细管色谱柱(DB-5MS,60m×0.25mm×0.25μm),以高纯度氦气为载气,流速为 1mL/min。升温程序:起始温度 80℃,保持 5min,然后以 4℃/min 升温至 290℃,保持 20min 至样品完全流出。选择离子模式(SIM)进行 GC-MS 分析。

1.3 质量控制

本实验选取了 16 种 PAHs 标样、回收率指示物(Nap-d8、Ace-d10、Phe-d10、Chr-d12 和

Pyr-d12) 和内标物 (2-fluorobiphenyl、P-Terphenyl-d₁₄)定量,包括方法空白、加标空白、基质加标、基质加标平行、样品平行样进行质量保证和质量控制。样品的加标回收率为 72%~116%。平行样的相对标准偏差均控制在 18%以内。空白样品未检出目标污染物。

2 结果与讨论

2.1 太湖及周边河流沉积物中 PAHs 含量与组成

太湖及周边河流表层沉积物中 PAHs 的分析结果表明,16 种 PAHs 均有检出,如图 2,太湖 PAHs 总量介于 0.77~4.20μg/g 之间,平均值为 1.63μg/g,最小值点出现在太湖中部的 10 号点,最大值点出现在梅梁湾的 2 号点;太湖周边河流 PAHs 总量介于 0.58~6.13μg/g 之间,平均值为 2.92μg/g,最小值出现在漕桥河,最大值出现在吴淞江。

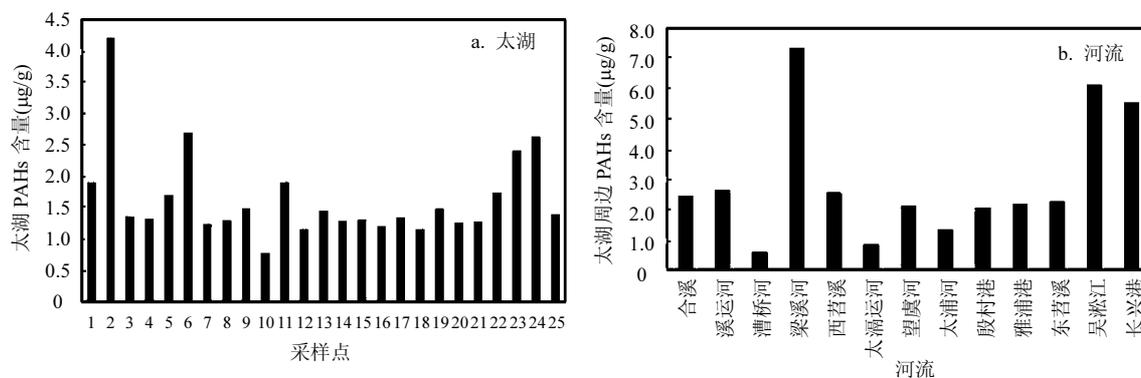


图 2 太湖及周边河流 PAHs 含量分布

Fig.2 Concentrations of PAHs in sediments from Taihu Lake and its surrounding rivers

结果显示表层沉积物中 PAHs 的空间分布具有显著差异。如图 3,梅梁湾、贡湖及东太湖含量较高,分别为 $2.48 \pm 1.14 \mu\text{g/g}$ 、 $1.89 \pm 0.52 \mu\text{g/g}$ 和 $2.13 \pm 0.50 \mu\text{g/g}$,其中梅梁湾不同点位间 PAHs 含量变化差异较大,已有的研究也发现,梅梁湾和贡湖湾往往具有较高的 PAHs 含量^[4]。

望虞河、梁溪河、雅浦港、太浦运河、漕桥河、殷村港、东苕溪、西苕溪和长兴港是太湖主要的入湖河流。太浦运河、漕桥河和殷村港所在的湖西区是入湖水量的主要来源,占入湖水量的

71%。望虞河是太湖入湖水量最大的入湖河流,沿岸人口密度大,工业集中,而且支流众多,污染较为严重,治理难度较大。太湖出湖河流主要为太浦河和吴淞江,其中太浦河是太湖主要的出湖河流,占出湖水量的 23%。周边河流表层沉积物中 PAHs 含量显著区别于湖区沉积物,总体来说,河流沉积物中具有较高的 PAHs,并且河流之间含量差异较大($2.92 \pm 1.57 \mu\text{g/g}$)。其中,河流沉积物中 PAHs 的最高含量出现在梁溪河($7.34 \mu\text{g/g}$)、吴淞江($6.13 \mu\text{g/g}$)和长兴港($5.54 \mu\text{g/g}$),而最低值出现

在漕桥河(0.58 $\mu\text{g/g}$)和太滬运河(0.83 $\mu\text{g/g}$),赵学强等对环太湖河流沉积物的研究发现,最高含量出现在太湖西北部河流,梅梁湾入口的梁溪河具有较高的暴露水平,这与本文的研究结果类似^[11].竺山湾及周边太湖运河、漕桥河和殷村港 PAHs 含量均较小,此区域受到的污染较小.长兴港是西南沿岸区中 PAHs 含量明显偏高的一个点,说明点源 PAHs 可能会显著影响部分河段,需要继续开展对类似河流的研究工作.

在采集的 25 个太湖沉积物样品中,PAHs 以 2~3 环为主,占 PAHs 平均比例为 46.44%,4 环所占平均比例为 29.24%,5~6 环为 24.31%.13 个太湖河流沉积物样品中 PAHs 以 4 环为主,占 43.96%,2~3 环所占 PAHs 平均比例的 29.24%,5 环占到 26.80%.陈启明^[12]、张明亮^[13]与本研究结果不同,可能由于所处区域 PAHs 来源方式不同所致.

如图 4,在组成上,太湖及其周边河流 PAHs 的组分 Flua、Pyr 比例均较大,而且变化幅度也很大,组分 Acy、Ace、Flu、Ant、DahA 变化范围较小.通过对比太湖及其周边河流各单体 PAH 的含量变化,发现湖泊与河流单体 PAH 之间的

浓度差异具有类似规律,并且与各单体在自然界中的差异性相一致.太湖各采样点中 Chr 检出率只有 36%,18 号采样点有 5 个组分未检出;太湖周边河流中 Chr 的检出率依旧很低,只有 38%,漕桥河有 7 个组分未检出,太滬运河有 4 个组分未检出,从检出率可以推断竺山湾所在区域受 PAHs 影响较小.

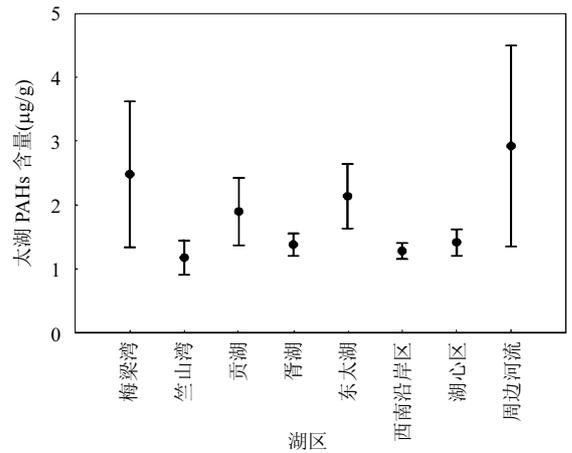


图 3 太湖沉积物 PAHs 含量空间分布
Fig.3 Spatial distribution of PAHs in sediments from Taihu Lake

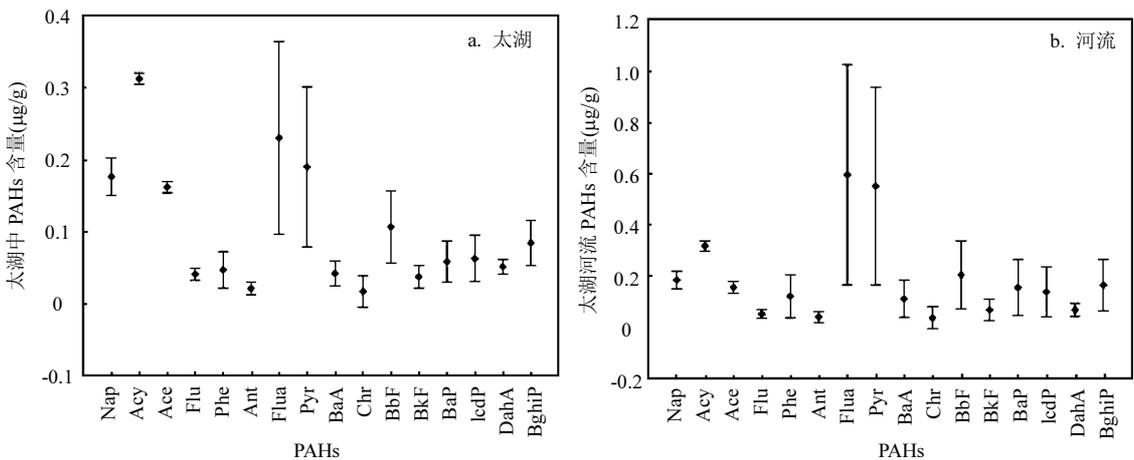


图 4 太湖及周边河流 PAHs 各组分平均含量

Fig.4 Average concentrations of individual PAH compound from Taihu Lake and its surrounding rivers

与国内外其他水体沉积物中 PAHs 含量对比见表 1,本次调查区域的 PAHs 含量,与环太湖河流^[11]、松花江^[14]、土耳其地中海沿岸河流^[15]和

法国城市河流^[16]沉积物中的含量比较接近,与千岛湖^[17]、巢湖^[10]和顿和下游^[18]沉积物中 PAHs 含量相比,处于较高水平,可以看出虽然近年来太

湖治理工作取得了显著进展,但是对太湖 PAHs 的控制并没有取得良好的效果,尚需要进一步开展有针对性的治理措施。

表 1 国内外水体沉积物 PAHs 含量比较

Table 1 Comparison of PAHs concentrations in sediments of different water body

样点	浓度范围($\mu\text{g/g}$)	平均含量($\mu\text{g/g}$)	参考文献
太湖	0.77~4.201	1.631	本研究
太湖周边河流	0.582~6.135	2.925	本研究
千岛湖	0.258~0.906	0.558	[17]
太湖	0.262~1.087	0.491	[4]
巢湖	0.116~2.832	0.898	[10]
环太湖河流	0.382~2.268	1.056	[11]
松花江	0.226~10.079	2.23	[14]
海河	0.445~2.185	0.964	[19]
土耳其地中海沿岸	0.51~4.04	1.85	[15]
法国城市河流	0.572~4.235	1.966	[16]
顿河下游	0.014~0.529	0.163	[18]

2.2 PAHs 来源分析

2.2.1 高低环比值法 PAHs 的来源通常分为高温燃烧和石油类污染,环数的高低可以判断 PAHs 的来源类型^[20-23],低环数的 PAHs(2~3 环)主要来源于石油污染,高环数的 PAHs(4~6 环)主

要来源于各种燃烧^[24-25].本实验中 25 个湖泊样品低环/高环(LMW/HMW)比值平均值为 0.46,表明 PAHs 主要来自高温燃烧,13 个河流样品平均比值为 0.29,指示燃烧污染的特征更加明显。

2.2.2 特征比值法 同分异构体比值法可以更具体的判定 PAHs 的来源,本研究选用 Ant/(Ant+Phe)和 Flua/(Flua+Pyr)的比值来判断表层沉积物中 PAHs 的来源^[8,11].当 Ant/(Ant+Phe)<0.1 时通常意味着油类排放来源,>0.1 则主要是燃烧来源;当 Flua/(Flua+Pyr)<0.4 时意味着油类排放来源,>0.5 主要是木柴、煤燃烧来源,位于 0.4~0.5 则意味着石油及其精炼产品的燃烧来源^[21,26].

借助对比太湖及其周边河流 PAHs 的两组同分异构体 Ant/(Ant+Phe)和 Flua/(Flua+Pyr)之间的关系,来示踪 PAHs 的来源^[27],如图 5 所示.太湖 Ant/(Ant+Phe)比值除一个样点外,其余比值均>0.1,Flua/(Flua+Pyr)比值有一个样点接近 0.5,其余都>0.5;太湖周边河流 Ant/(Ant+Phe)比值有两个样点<0.1,其余均>0.1,Flua/(Flua+Pyr)比值有一个样点介于 0.4~0.5,其余均>0.5.综合分析结果,太湖及其周边河流沉积物中 PAHs 主要以燃烧来源为主。

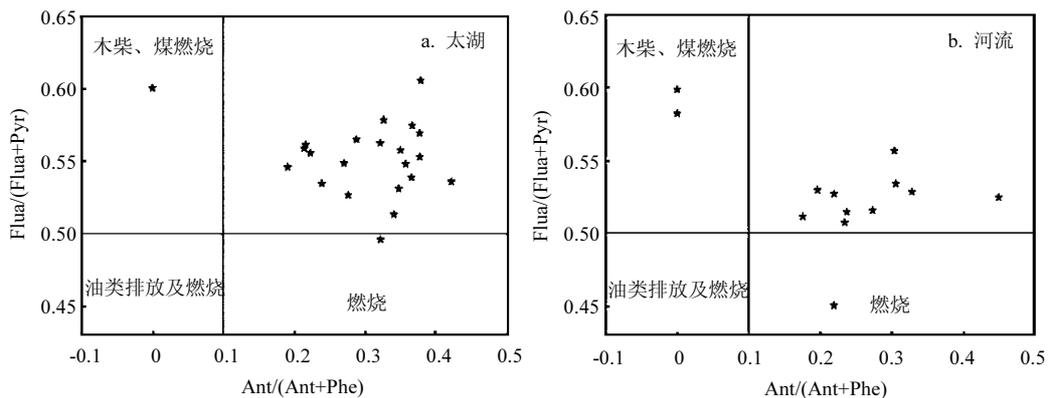


图 5 太湖及周边河流 PAHs 来源分析

Fig.5 Source apportionment of PAHs from Taihu Lake and its surrounding rivers

2.2.3 主成分分析-多元线性回归法 主成分分析-多元线性回归(PCA-MLR)模型是可定量分析沉积物中 PAHs 来源^[9],主要利用降维的思想^[28],来筛选代表 PAHs 在样品中含量的几个主

成分,通过主因子载荷来识别 PAHs 的来源类型,分析其两次最小二乘法多元线性回归,得到污染源的贡献率^[29].在来源判定中,将 16 种 PAHs 分为 4 类:低分子量 Nap、Acy、Ace、Flu 代表石油源

污染;高分子量 BbF、BkF、BaP、IcdP 代表燃油燃烧来源,Phe、Ant、Flua、Pyr 可能与生物质和化石燃料燃烧有关,BaA、Chr 代表天然气燃烧来源^[30-37]。

对太湖及周边河流表层沉积物中 PAHs 进行主成分分析,经过 Varimax 旋转,对 25 个湖泊样品提取出特征值大于 1 的因子有 3 个,累计方差贡献率达 91.94%。其中,因子 1 的载荷为 48.75%,以 BaP、Pyr、Chr、BghiP、IcdP、Flua、BaA 为主;因子 2 的载荷为 25.19%,以 Nap、Acy、Ace、Flu 为主;因子 3 的载荷为 18%,以 DahA、Ant 为主;其中因子 1 代表了各种燃烧来源,因子 2 代表了石油源污染,因子 3 特征不是很明确,近似归为燃烧来源。对 13 个河流样品提取出特征值大于 1 的因子有 3 个,累计方差贡献率达 97.34%。其中,因子 1 的载荷为 63.29%,以 BaA、BaP、BghiP、IcdP、Pyr、Flua、DahA 为主;因子 2 的载荷为 21.76%,以 Chr、Nap 为主;因子 3 的载荷为 12.28%,以 Ace 为主,其中因子 1 代表燃烧来源,因子 2、3 代表石油源污染^[4,9]。

根据 PCA 的结果,将计算得到的绝对主因子得分作为自变量,与 PAHs 总浓度进行回归分析,计算出各因子贡献率。太湖及周边河流沉积物中 PAHs 各因子贡献方程分别为:

$$\sum_{16} \text{PAHs}_{\text{湖泊}} = 0.83\text{PC1} + 0.39\text{PC2} + 0.38\text{PC3} \quad (1)$$

$$\sum_{16} \text{PAHs}_{\text{河流}} = 0.89\text{PC1} + 0.39\text{PC2} + 0.23\text{PC3} \quad (2)$$

根据公式分别计算湖泊和河流中污染物的贡献率,得到太湖沉积物 PAHs 石油源贡献率为 24%,燃烧源贡献率为 76%;太湖周边河流石油源贡献率为 41%,燃烧源贡献率为 59%。

入湖河流污染物输入是太湖主要污染来源,梁溪河是本次研究 PAHs 污染最严重的河流,是无锡入湖的主要通道,生活污水和工业废水是主要污染源,区域内的重点污染企业是机电和纺织,有 32 家重点污染企业^[38]。吴淞江是苏州的主要水上交通线和重要航道,作为太湖水体流出的重要河道,集中了数以千计的纺织厂、印刷厂、化工厂和石油化工机械设备厂,而且吴淞江流域船舶、港口、码头众多,吴淞江沉积物中 PAHs 受来源和太湖湖区沉积物物理搬运的双层影响,因而

PAHs 来源方式多样,含量偏高。梅梁湾、贡湖和东太湖所在区域主要位于太湖东部,为苏州和无锡的辖区,经济发达,工农业活动密度较大,船舶往来频繁,研究发现 1 船污染等于 21 万辆卡车,太湖船舶用于水产渔业运输居多,多不具备环保处理装置,船舶燃油和泄露污染成为了太湖流域 PAHs 最大的污染源。

综和污染源的排放角度和 PAHs 高低环比值、Ant/(Ant+Phe)和 Flua/(Flua+Pyr)同分异构体比值和 PCA-MLR 模型可知,燃烧源是太湖及其河流 PAHs 的主要来源,但差异主要是由于不同水域和河流车船及工业影响强度不同所致,石油源也占到一定的贡献比例^[4,8-9,11]。需要进一步加强太湖及其周边河流船舶的管理,并对太湖及周边工农业活动进行科学的管控。

2.3 PAHs 风险评价

2.3.1 沉积物质量标准法 沉积物质量标准法(SQSs)是一种综合考虑了社会、经济、自然等方面因素的分类方法,相对于常用的沉积物质量基准法(SQGs),其结果更加详细和具体^[39]。SQSs 通常分为 5 个阈值,分别是生物毒性影响的罕见效应浓度值(REL)、临界效应浓度值(TEL)、偶然效应浓度值(OEL)、可能效应浓度值(PEL)和频繁效应浓度值(FEL)^[40],分类标准和本研究结果见表 2。

表 2 加拿大魁北克沉积物 PAHs 质量评价标准($\mu\text{g/g}$)
Table 2 Sediment Quality Standards (SQSs) of PAHs($\mu\text{g/g}$)

PAHs 单体	沉积物质量标准					本次调查 平均值	
	REL	TEL	OEL	PEL	FEL	湖泊	河流
Nap	17	35	120	390	1200	176	182
Acy	3.3	5.9	30	130	340	313	315
Ace	3.7	6.7	21	89	940	162	154
Flu	10	21	61	140	1200	40	49
Phe	25	42	130	520	1100	46	118
Ant	16	47	110	240	1100	20	37
Flua	47	110	450	2400	4900	230	593
Pyr	29	53	230	880	1500	189	549
Chr	26	57	240	860	1600	16	35
BaA	14	32	120	390	760	41	109
BaP	11	32	150	780	3200	58	153
DahA	3.3	6.2	43	140	200	51	66

由表2可见,大多数PAHs单体处于TEL附近,太湖及周边河流中的Nap、Acy、Ace超过了OEL,周边河流中的Flua、Pyr也超过了OEL,需要引起重视.与母清林在长江口表层沉积物中PAHs的污染水平类似,多数呈现在TEL~OEL之间^[22],低于陈明华^[24]在太湖竺山湾湖滨带沉积物中PAHs的研究.在本次调查中16种PAHs单体,河流中含量大多数高于湖泊,说明河流对太湖的污染是显著地,对治理太湖流域PAHs有明确的导向作用,要重点防控入湖河流PAHs的污染. BbF、BkF、IcdP、BghiP是高环致癌的多环芳烃,没有最低安全阈值,在湖泊和河流中均有不同程度的检出.

2.3.2 BaP 当量浓度法 研究者通常利用BaP评估PAHs的潜在毒性,除了BaP外,BaA、BbF、BkF、DahA、IcdP也有很强的致癌性^[41-43],因而,利用BaPE(BaP当量浓度)定量评价沉积物中PAHs的潜在风险^[37,44-45].计算公式如下^[46]:

$$[\text{BaPE}]_i = [\text{BaA}]_i \times 0.06 + [\text{BbF}]_i \times 0.07 + [\text{BkF}]_i \times 0.07 + [\text{BaP}]_i + [\text{DahA}]_i \times 0.60 + [\text{IcdP}]_i \times 0.08 \quad (3)$$

其中: $[\text{BaPE}]_i$ 是第*i*个样品BaP当量浓度值(ng/g); $[\text{BaA}]_i$ 、 $[\text{BbF}]_i$ 、 $[\text{BkF}]_i$ 、 $[\text{BaP}]_i$ 、 $[\text{DahA}]_i$ 、 $[\text{IcdP}]_i$ 分别是第*i*个样品中BaA、BbF、BkF、BaP、DahA、IcdP的PAHs组分的浓度值,μg/g.

计算结果表明,太湖表层沉积物中PAHs的BaPE是0.10μg/g,表明湖泊沉积物中PAHs具有潜在毒性,另外,太湖周边河流的BaPE是0.22μg/g,显著高于湖泊表层沉积物,用BaP当量浓度法依然得出和沉积物质量标准法类似的结果,太湖周边河流PAHs的污染对太湖有显著地影响,说明相对于湖泊来说河流具有较高的潜在毒性^[11,47].与国内外其它研究的计算结果类似^[9,48],本研究发现梁溪河、吴淞江和长兴港的PAHs污染潜势较高,与周边人类活动强度大有关,尤其是梁溪河、吴淞江,船舶污染严重,需要开展持续监测及相应的治理工作.

3 结论

3.1 太湖沉积物中PAHs总量介于0.77~4.20μg/g之间,平均值为1.63μg/g,太湖周边河流

沉积物中PAHs总量介于0.58~6.13μg/g之间,平均值为2.92μg/g.空间分布表明,梅梁湾、贡湖湾以及太湖东部沉积物中PAHs含量偏高,周边河流中梁溪河、吴淞江及长兴港沉积物中含量较高,要重点监控周边河流对太湖的污染.

3.2 太湖沉积物PAHs石油源贡献率为24%,燃烧源贡献率为76%,太湖周边河流石油源贡献率为41%,燃烧源贡献率为59%.太湖及其周边河流表层沉积物中PAHs主要来源为燃烧来源,石油源也占到一定的贡献比例,船舶燃油和泄露污染成为了太湖及周边河流最大的污染源,需要严控太湖及周边河流行船污染物质的排放.

3.3 太湖及其周边河流部分PAHs单体超过了OEL,而且BbF、BkF、IcdP、BghiP等高环致癌PAHs单体均有不同程度的检出,已经呈现一定的潜在毒性,湖泊与河流BaPE含量均保持在较高水平,太湖周边河流检出值显著高于太湖,要重点防控入湖河流PAHs的污染,加大对太湖周边河流的持续监测和防控工作.

参考文献:

- [1] Wang Z, Chen J, Qiao X, et al. Distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons from urban to rural soils: A case study in Dalian, China [J]. *Chemosphere*, 2007,68(5):965-971.
- [2] Manariotis I D, Karapanagioti H K, Chrysikopoulos C V. Degradation of PAHs by high frequency ultrasound [J]. *Water Research*, 2011,45(8):2587-2594.
- [3] 郎印海,薛荔栋,刘爱霞,等.日照近岸海域表层沉积物中多环芳烃(PAHs)来源的识别和解析 [J]. *中国海洋大学学报:自然科学版*, 2009,39(3):535-542.
- [4] 余云龙,李圆圆,林田,等.太湖表层沉积物中多环芳烃的污染现状及来源分析 [J]. *环境化学*, 2013,32(12):2336-2341.
- [5] 李玉斌,刘征涛,冯流,等.太湖部分沉积物中多环芳烃生态风险评估 [J]. *环境化学*, 2011,30(10):1769-1774.
- [6] 刘楠楠,陈鹏,朱淑贞,等.辽河和太湖沉积物中PAHs和OCPs的分布特征及风险评估 [J]. *中国环境科学*, 2011,31(2):293-300.
- [7] Zhang Y, Shi GL, Guo CS, et al. Seasonal variations of concentrations, profiles and possible sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from Taihu Lake, China [J]. *Journal of Soils & Sediments*, 2012,12(6):933-941.
- [8] 陈明华,李春华,叶春,等.太湖竺山湾湖滨带沉积物中多环芳烃分布、来源及风险评估 [J]. *环境工程技术学报*, 2014,4(3):199-204.

- [9] 武 婷,刘贵荣,田瑛泽,等.太湖底泥多环芳烃分布及来源解析 [J]. 农业环境科学学报, 2015,34(1):124-129.
- [10] 宁 怡,柯用春,邓建才,等.巢湖表层沉积物中多环芳烃分布特征及来源 [J]. 湖泊科学, 2012,24(6):891-898.
- [11] 赵学强,袁旭音,李天元,等.环太湖河流沉积物中 PAHs 的空间分布、毒性及源解析 [J]. 农业环境科学学报, 2015,34(2):345-351.
- [12] 程启明,黄 青,廖祯妮,等.厦门杏林湾水系表层沉积物中 PAHs 分析与风险评估 [J]. 环境科学, 2015,36(1):179-185.
- [13] 张明亮,黎 慧,徐英江,等.莱州湾表层沉积物中多环芳烃 (PAHs) 来源及生态风险评价 [J]. 海洋环境科学, 2015,34(1):6-11.
- [14] 聂海峰,李 括,彭 敏,等.松花江底积物中多环芳烃生态风险评价 [J]. 中国地质, 2011,38(4):1102-1110.
- [15] Tuncel S G, Topal T. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in sea sediments of the Turkish Mediterranean coast, composition and sources [J]. Environmental Science & Pollution Research, 2014,22(6):4213-4221.
- [16] Kanzari F, Syakti A D, Asia L, et al. Distributions and sources of persistent organic pollutants (aliphatic hydrocarbons, PAHs, PCBs and pesticides) in surface sediments of an industrialized urban river (Huveaune), France [J]. Science Of the Total Environment, 2014,478:141-151.
- [17] 张 明,唐访良,吴志旭,等.千岛湖表层沉积物中多环芳烃污染特征及生态风险评价 [J]. 中国环境科学, 2014,34(1):253-258.
- [18] Sazykin I S, Sazykina M A, Khammami M I, et al. Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface sediments of lower reaches of the Don River (Russia) and their ecotoxicologic assessment by bacterial lux-biosensors [J]. Environmental Monitoring & Assessment, 2015,187(5):1-12.
- [19] 程远梅,祝凌燕,田胜艳,等.海河及渤海表层沉积物中多环芳烃的分布与来源 [J]. 环境科学学报, 2009,29(11):2420-2426.
- [20] Li W H, Tian Y Z, Shi G L, et al. Concentrations and sources of PAHs in surface sediments of the Fenne reservoir and watershed, China [J]. Ecotoxicology & Environmental Safety, 2011,75(1):198-206.
- [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(4):489-515.
- [22] Wang H S, Cheng Z, Liang P, et al. Characterization of PAHs in surface sediments of aquaculture farms around the Pearl River Delta [J]. Ecotoxicology & Environmental Safety, 2010,73(5):900-906.
- [23] Feng C, Xia X, Shen Z, et al. Distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in Wuhan section of the Yangtze River, China [J]. Environmental Monitoring & Assessment, 2007,133(1-3):447-458.
- [24] 母清林,方杰,邵君波,等.长江口及浙江近岸海域表层沉积物中多环芳烃分布、来源与风险评价 [J]. 环境科学, 2015,36(3):839-846.
- [25] 刘宪杰,洪文俊,王 莹,等.大连近海沉积物多环芳烃污染特征及源解析 [J]. 海洋环境科学, 2016,35(2):252-255.
- [26] Katsoyiannis A, Terzi E, Cai Q Y. On the use of PAH molecular diagnostic ratios in sewage sludge for the understanding of the PAH sources. Is this use appropriate? [J]. Chemosphere, 2007, 69(8):1337-1339.
- [27] 昌 盛,耿梦娇,刘 琰,等.滹沱河冲洪积扇地下水中多环芳烃的污染特征 [J]. 中国环境科学, 2016,36(7):2058-2066.
- [28] 孙 焰,祁士华,李 绘,等.福建闽江沿岸土壤中多环芳烃含量、来源及健康风险评价 [J]. 中国环境科学, 2016,36(6):1821-1829.
- [29] Hopke P K. Recent developments in receptor modeling [J]. Journal of Chemometrics, 2003,17(5):255-265.
- [30] Rogge W F, Hildemann L M, Mazurek M A, et al. Sources of fine organic aerosol. 2. Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavy-duty diesel trucks [J]. Environmental Science and Technology; (United States), 1993,27:4(4):636-651.
- [31] Simcik M F, Eisenreich S J, Liou P J. Source apportionment and source/sink relationships of PAHs in the coastal atmosphere of Chicago and Lake Michigan [J]. Atmospheric Environment, 1999,33(30):5071-5079.
- [32] Motelay-Massei A, Ollivon D, Garban B, et al. PAHs in the bulk atmospheric deposition of the Seine river basin: Source identification and apportionment by ratios, multivariate statistical techniques and scanning electron microscopy [J]. Antimicrobial Agents & Chemotherapy, 2009,53(3):1067-1073.
- [33] Larsen R K, Baker J E. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere: a comparison of three methods [J]. Environmental Science & Technology, 2003, 37(9):1873-1881.
- [34] Yan B, Abrajano T A, Bopp R F, et al. Molecular Tracers of Saturated and Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Inputs into Central Park Lake, New York City [J]. Environmental Science & Technology, 2005,39(18):7012-7019.
- [35] Volkman J K, Holdsworth D G. Identification of natural, anthropogenic and petroleum hydrocarbons in aquatic sediments [J]. Science of the Total Environment, 1992,112(2/3):203-219.
- [36] Mastral A M, Callén M, Murillo R. Assessment of PAH emissions as a function of coal combustion variables [J]. Fuel, 1996,75(13):1533-1536.
- [37] Khalili N R, Scheff P A, Holsen T M. PAH source fingerprints for coke ovens, diesel and, gasoline engines, highway tunnels, and wood combustion emissions [J]. Atmospheric Environment, 1995,

- 29(4):533-542.
- [38] Li F, Zeng X, Yang J, et al. Contamination of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surface sediments and plants of mangrove swamps in Shenzhen, China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014,85(2):590-596.
- [39] Kucuksezgin F, Pazi I, Gonul L T. Marine organic pollutants of the Eastern Aegean: aliphatic and polycyclic aromatic hydrocarbons in Candarli Gulf surficial sediments [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2012,64(11):2569-2575.
- [40] Kucuksezgin F, Pazi I, Gonul LT. Marine organic pollutants of the Eastern Aegean: Aliphatic and polycyclic aromatic hydrocarbons in Candarli Gulf surficial sediments [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2012,64(11):2569-2575.
- [41] Hester R E, Harrison R M, Larsen J C, et al. Chemical Carcinogens [J]. *Science*, 2007,203(5):132-135.
- [42] Chen Y, Bi X, Mai B, et al. Emission characterization of particulate/gaseous phases and size association for polycyclic aromatic hydrocarbons from residential coal combustion [J]. *Fuel*, 2004,83(7/8):781-790.
- [43] Cecinato A. Polynuclear aromatic hydrocarbons (PAH), benz(a)pyrene (BaPY) and nitrated-PAH (N-PAH) in suspended particulate matter (Proposal for revision of the Italian Reference Method) [J]. *Annali Di Chimica*, 1997,87(7):483-496.
- [44] Jian X, Guo J Y, Liu G R, et al. Historical trends of concentrations, source contributions and toxicities for PAHs in dated sediment cores from five lakes in western China [J]. *Science of the Total Environment*, 2013,470-471C(2):519-526.
- [45] Savinov V M, Savinova T N, Matishov G G, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and organochlorines (OCs) in bottom sediments of the Guba Pechenga, Barents Sea, Russia [J]. *Science of the Total Environment*, 2003,306(1-3):39-56.
- [46] Mehdinia A, Aghadadashi V, Fumani N S. Origin, distribution and toxicological potential of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface sediments from the Bushehr coast, The Persian Gulf [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2015,90(1/2):334-338.
- [47] 南炳旭,王丽平,刘录三等.天津近岸海域表层沉积物中 PAHs 污染特征及风险 [J]. *环境科学研究*, 2014,27(11):1323-1330.
- [48] 黄国培,陈颖军,林田等.渤海湾潮间带表层沉积物中多环芳烃的含量分布和生态风险 [J]. *中国环境科学*, 2011,31(11):1856-1863.

致谢: 本项目样品检测工作由天津师范大学天津市水资源与水环境重点实验室于雅琴实验员等协助完成,在此表示感谢。

作者简介: 康杰(1991-),男,山西吕梁人,天津师范大学硕士研究生,主要从事水生系统环境地球化学研究。