

环太湖河流沉积物中 PAHs 的空间分布、毒性及源解析

赵学强, 袁旭音*, 李天元, 王兵, 陈红燕

(河海大学环境学院, 南京 210098)

摘要:对环太湖 41 条河流表层沉积物中 16 种美国环保署优先控制的 PAHs 含量进行了检测, 并分析了其空间分布、毒性和来源。结果表明: 沉积物中 PAHs 浓度范围为 382.5~2 268.7 ng·g⁻¹, 平均值为 1 056.6 ng·g⁻¹, 其中 TEQ_{BaP} 的浓度为 36.3~224.0 ng·g⁻¹, 平均值为 98.8 ng·g⁻¹; PAHs 浓度的高值区出现在太湖西北部河流, 其中龙游河(TR8)最高, 漕桥河(TR10)次之。利用分子比值法和正定矩阵模型(PMF)对 PAHs 的来源进行定性和定量分析可知, 汽油、柴油燃烧对环太湖河道表层沉积物中 PAHs 贡献最大(44.6%), 其次为煤炭燃烧(39.1%)和生物质燃烧(16.3%); 使用 PMF-TEQ(正定矩阵模型和毒性当量)定量计算 3 种源对 PAHs 毒性(TEQ_{BaP})的贡献, 结果表明化石燃料燃烧的贡献最大。

关键词:多环芳烃; 河流沉积物; 源解析; 毒性; 太湖

中图分类号:X524 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2015)02-0345-07 doi:10.11654/jaes.2015.02.019

Spatial Distribution, Toxicity and Source Apportionment of PAHs in Sediments from Rivers Around Taihu Lake

ZHAO Xue-qiang, YUAN Xu-yin*, LI Tian-yuan, WANG Bing, CHEN Hong-yan

(College of Environment, Hohai University, Nanjing 210098, China)

Abstract: In this study, the concentrations of 16 US EPA priority PAHs were analyzed from 41 sediment samples collected from rivers around Taihu Lake, and their distributions, sources and ecological risks were further investigated. The total concentrations of PAHs ranged from 382.5~2 268.7 ng·g⁻¹ with a mean value of 1 056.6 ng·g⁻¹, while TEQ_{BaP} varied from 36.3~224.0 ng·g⁻¹ with an average of 98.8 ng·g⁻¹. The sample in Longyou River(TR8) had the highest concentration of PAHs, followed by Caoqiao River(TR10), which are located to the north of Taihu Lake. The major contributors to total PAHs in sediments were gasoline and diesel combustion(44.6%), followed by coal combustion(39.1%), and biomass combustion(16.3%). The fossil fuel combustion was the greatest contributor to the toxicity of PAHs in river sediments.

Keywords: PAHs; river sediments; source apportionment; toxicity; Taihu Lake

多环芳烃 (Polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 是一类持久性有机污染物, 具有较强的致癌和致突变性^[1]。由于 PAHs 水溶性极低, 易被悬浮物吸附并随颗粒物沉降到沉积物中, 而沉积物中的 PAHs 又能够重新释放进入水体, 成为新的污染源。此外, PAHs 也可通过食物链进入人体, 造成健康风险^[2-4]。因此, 研究河道沉积物中 PAHs 的分布、毒性和来源对于流域环境治理十分必要。

多环芳烃除自然成因(如火山爆发、森林火灾、生

收稿日期:2014-10-10

基金项目:国家自然科学基金项目(41372354);科技部国际科技合作专项(2012DFA60830)

作者简介:赵学强(1990—), 山东济南人, 硕士研究生, 主要从事水资源保护方面的研究。E-mail: zhaoxueqiangwf@126.com

*通信作者:袁旭音 E-mail: xyy_hjy@hhu.edu.cn

物合成等)外, 主要来自化石燃料使用过程中的泄漏以及化石燃料和生物质不完全燃烧产物的排放等^[5]。目前常用的 PAHs 源解析方法主要有比值法和受体模型法, 前者只能对 PAHs 的来源进行定性分析, 后者可以对 PAHs 的来源进行定量分析。近年来发展的受体模型主要有主成分分析/因子分析-多元线性回归(PCA/FA-MLR)、化学质量平衡模型(CMB)、UNMIX 模型和正定矩阵模型(PMF)。PMF 模型由 Paatero 提出并在应用中不断完善^[6-7], 与其他 PAHs 的源解析方法相比, PMF 模型在求解过程中对因子载荷和因子得分均予以非负约束, 避免矩阵分解的结果中出现负值, 使得因子载荷和因子得分具有可解释性和明确的物理意义^[8]。这些优点使得 PMF 模型在国际上得到了一致认可, 但其在我国的应用相对较少。

太湖流域是我国经济最发达、人口最密集的地区之一,随着经济的发展、人类活动影响的增强,太湖地区的污染日益严重。一些学者针对太湖湖体沉积物中PAHs的污染状况进行了研究,这些研究表明太湖沉积物已经受到了PAHs的污染^[9-11],但对于太湖周边河道的研究较少。环太湖河道相对于湖体,受人类活动的影响更大,污染物来源更复杂,因此研究太湖河道沉积物中PAHs的污染状况,可以更好的评价太湖流域PAHs的风险,对保障太湖流域生态系统安全具有重要的意义。

1 材料与方法

1.1 样品采集

通过对太湖周边的野外调研和考察,选定41条河流采集表层(0~20 cm)沉积物样品,这些河流分布相对均匀,采样区域可以反映太湖周边流域PAHs的来源和分布状况(图1)。样品采集后立即送回实验室,置于-20 °C保存至分析。

1.2 标准品与试剂

PAHs混标购自美国O2Si公司,包括美国EPA

优控的16种PAHs,即萘(NaP)、苊(Ace)、苊烯(Any)、芴(Flu)、菲(Phe)、蒽(Ant)、荧蒽(Flua)、芘(Pyr)、苯并[a]蒽(BaA)、䓛(Chr)、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(BghiA)。

所用试剂二氯甲烷、丙酮和石油醚为分析纯;正己烷和乙腈为色谱纯;无水Na₂SO₄为分析纯。

1.3 样品预处理

取5.000 g沉积物样品(干重)与2.000 g经高温活化的无水Na₂SO₄混合放入50 mL玻璃离心管中,分别使用15 mL石油醚:丙酮(2:1,V:V)和22 mL石油醚:二氯甲烷(3:1,V:V)溶液作为萃取剂超声萃取10 min,循环两次,合并上清液,旋转蒸发至1~2 mL过硅胶净化柱。用25 mL的石油醚:二氯甲烷(3:1,V:V)洗脱,收集洗脱液,经旋转蒸发后氮吹并定容至1 mL。

1.4 分析条件与质量控制

使用高效液相色谱仪(Agilent 1290 Infinity,美国)测定EPA优先控制的16种PAHs目标化合物。实验条件如下:色谱柱为Agilent ZORBAX Eclipse XDB-C18(4.6 mm×250 mm,5 μm),柱温为30 °C,进

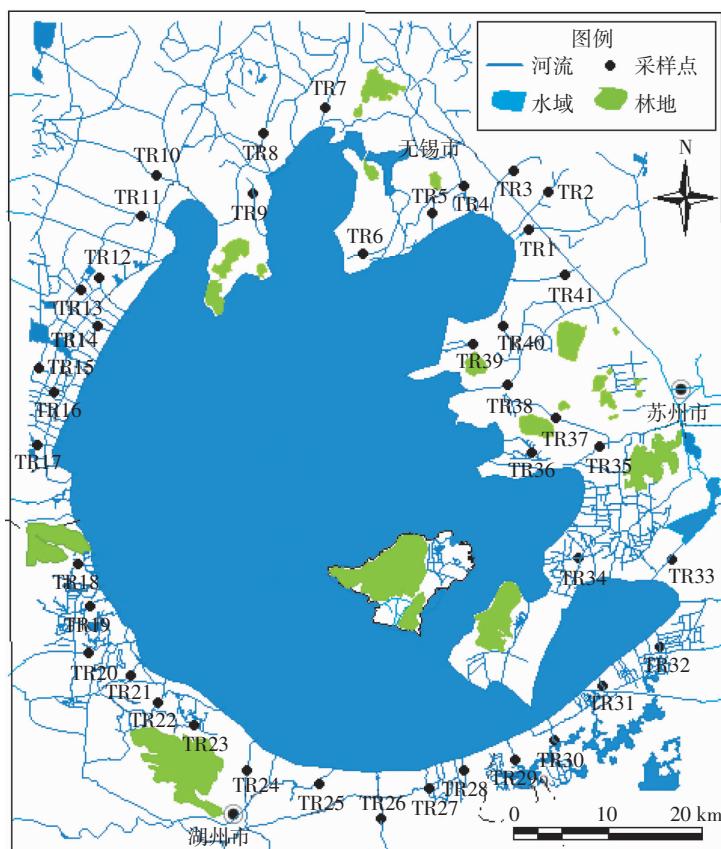


图1 研究区采样点分布示意图

Figure 1 Schematic map of sampling sites for river sediments

样量为 $1.0\text{ }\mu\text{L}$,流动相为乙腈和超纯水,流速为 $1.0\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$,采用梯度洗脱。

采用方法空白、样品平行、加标回收实验进行质量控制。回收率指示物䓛-d12的平均回收率为 $86.1\%\pm14.3\%$,16种PAHs单体的回收率范围为73.5%~106.8%。

1.5 数据分析处理

实验数据采用SPSS19.0分析,Mapinfo11.0和Origin8.0绘制相关图件。

源解析采用分子比值法和PMF模型方法,PMF模型是一种多因子分析工具,它可将污染物浓度矩阵分解成源贡献和源成分谱两个矩阵。利用源贡献矩阵和源成分谱矩阵可以判别污染物的来源,并计算每个来源的贡献率。

本研究采用EPA PMF3.0模型,基于算法ME-2。PMF的基本方程为:

$$X=GF+E \quad (1)$$

式中:样品浓度矩阵(X)为 n 个样品的 m 种化合物的浓度组成($n\times m$); F 表示源成分谱矩阵($p\times m$); G 表示源贡献率矩阵($n\times p$); E 表示残差矩阵($n\times m$)。

$$e_{ij}=x_{ij}-\sum_{k=1}^pg_{ik}f_{kj} \quad (2)$$

式中: x_{ij} 、 e_{ij} 、 g_{ik} 、 f_{kj} 分别为化合物实测浓度矩阵、残差矩阵、源贡献率矩阵和源成分谱矩阵的元素; p 表示 p 个不同的源。

$Q(E)$ 是模型的判据之一,只有当 $Q(E)$ 收敛时才可进一步分析。 $Q(E)$ 的计算公式如下:

$$Q(E)=\sum_{i=1}^m\sum_{j=1}^n\left[\frac{e_{ij}}{S_{ij}}\right]^2 \quad (3)$$

式中: S_{ij} 为第 i 个样品中第 j 种化合物的不确定性,其他各项含义同前。

模型中数据的不确定性计算方法如下:

$$\text{当 } x_{ij} \leq MDL \text{ 时}, S_{ij} = \frac{5}{6} \times MDL \quad (4)$$

$$\text{当 } x_{ij} > MDL \text{ 时}, S_{ij} = \sqrt{(RSD \times x_{ij})^2 + (MDL)^2} \quad (5)$$

式中: MDL 表示PAHs的最低检测限; RSD 表示化合物浓度值的相对标准偏差。

2 结果与讨论

2.1 环太湖河流沉积物中PAHs的空间分布

环太湖河流41件表层沉积物样品中,PAHs的总含量在 $382.5\sim2268.7\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (干重,下同)之间,平均值为 $1056.6\text{ ng}\cdot\text{g}^{-1}$ (图2)。PAHs含量的高值区出现在太湖西北部的河流,其中龙游河(TR8)最高,漕桥河(TR10)次之。这是由于这一地区较其他地区工业、农业活动更加强烈,使得河流沉积物中PAHs含量相对其他河流沉积物较高^[12]。

河流沉积物中不同环数PAHs的相对丰度如图3所示。PAHs单体化合物主要以3、4环和5环PAHs为主,其中4环PAHs(Flua、Pyr、BaA和Chr)最高,3环(Any、Ace、Flu、Phe和Ant)和5环PAHs(BbF、BkF、BaP和DahA)次之,6环PAHs(IcdP、BghiP)相对较少,2环PAHs(NaP)最少。

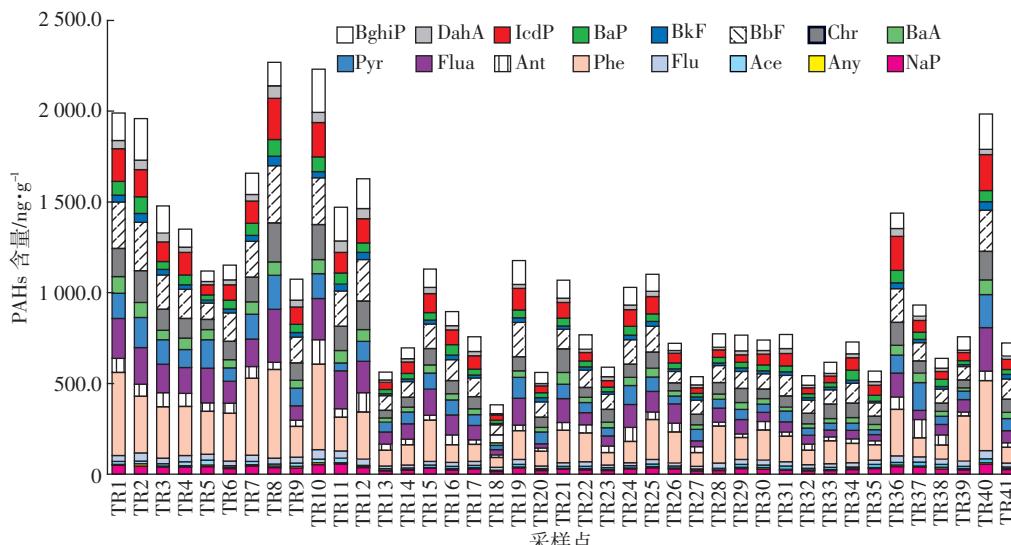


图2 环太湖河流沉积物中PAHs的含量分布

Figure 2 Concentrations of PAHs in sediments from rivers around Taihu Lake

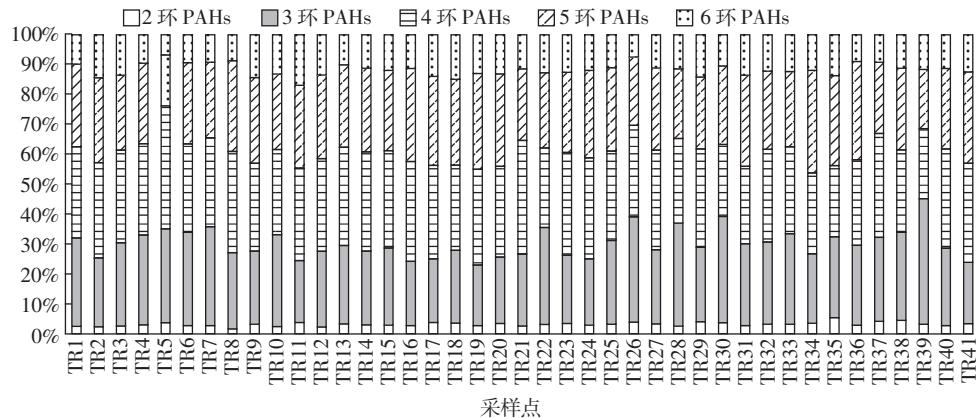


图3 沉积物中PAHs各组分的相对丰度

Figure 3 Relative abundance of different ring PAHs in sediments

与国内其他河流沉积物中PAHs的含量相比,环太湖河流沉积物中PAHs的含量与黄河兰州段处于同一水平,高于成渝经济区流域、丽江和淮河(淮南-蚌埠段)及太湖湖体,但低于海河流域和黄浦江(表1)。虽然环太湖河流沉积物中PAHs的含量均远低于Long等^[13]提出的效应区间中值(ERM,生态有害效应概率>50%),但Ace、Flu、Phe、Ant和DahA分别有11、32、13、3个和2个点位超过效应区间低值(ERL,生态有害效应概率<10%)。这表明,环太湖河流已受到PAHs的污染,有必要加强对PAHs的监测与管理。

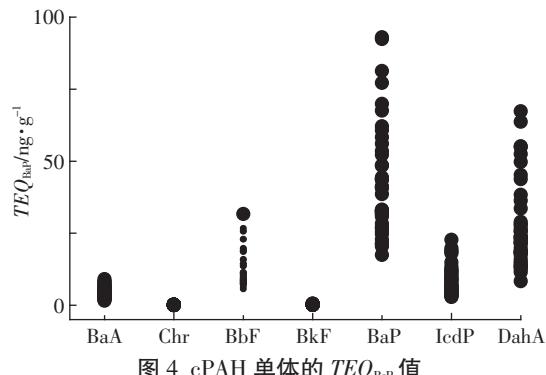
表1 我国不同流域沉积物中PAHs含量比较

Table 1 Comparisons of PAHs concentrations in sediments of different catchments in China

研究地点	Σ PAHs 含量/ng·g ⁻¹	检出PAHs 种类	文献
成渝经济区流域	48.2~723.1	16	[14]
黄河(兰州段)	464.0~2 621.0	16	[15]
丽江	160.0~602.0	16	[16]
北江	2.0~4 159.0	16	[17]
淮河(淮南-蚌埠段)	308.1~1 090.4	18	[18]
黄浦江	244.0~4 348.0	16	[19]
太湖湖体	209.0~1 003.0	15	[10]
环太湖河流	382.5~2 230.9	16	本研究

2.2 PAHs的毒性

16种EPA优控的PAHs中BaA、Chr、BbF、BkF、BaP、IcdP和DahA这7种同系物因具有致癌性而受到人们的关注^[12]。环太湖河流沉积物中这7种PAHs的含量为175.8~1 042.6 ng·g⁻¹,平均值为449.3 ng·g⁻¹,占PAHs总量的28.8%~52.5%。苯并(a)芘(BaP)是已知PAHs中致癌性最强的,在致癌性风险研究中以BaP为标准参考物,规定其毒性当量因子(TEF)为1来评价其他PAHs的当量浓度TEQ_{BaP}^[20]。本文通过下

Figure 4 TEQ_{BaP} for individual cPAH compound

式计算TEQ_{BaP}:

$$TEQ_{BaP} = \sum C_i \times TEF_i \quad (6)$$

式中: C_i 为第*i*个PAHs的质量浓度,ng·g⁻¹;TEQ_{BaP}为基于BaP的毒性当量,ng·g⁻¹;TEF_i为毒性当量因子。

沉积物中TEQ_{BaP}的含量为36.3~224.0 ng·g⁻¹,平均值为98.8 ng·g⁻¹(图4),与其他研究相比处于较低水平^[21~22]。PAHs含量最高的龙游河TEQ_{BaP}也最高,而梅花港(TR2)沉积物中PAHs的浓度虽然低于望虞河(TR1)、漕桥河(TR10)和金墅港(TR40),但其TEQ_{BaP}含量高于这三个采样点,可能是由于其PAHs组成中BaP的含量较高。7种致癌性PAHs中虽然BbF的浓度最高,但BaP和DahA对TEQ_{BaP}的贡献最大(72.3%),其次是BbF(13.4%)、IcdP(8.5%)、BaA(4.5%)、BkF(0.2%)和Chr(0.1%)。

2.3 PAHs和TEQ_{BaP}的源解析

分子比值法是目前识别PAHs来源的一种常用方法。通常Flu/(Flu+Pyr)<0.4或IcdP/(IcdP+BghiP)<0.2说明PAHs主要为石油来源,如果Flu/(Flu+Pyr)>0.5或IcdP/(IcdP+BghiP)>0.5则说明PAHs主要来自

煤和木材的燃烧,而Flu/(Flu+Pyr)介于0.4~0.5之间,IcdP/(IcdP+BghiP)介于0.2~0.5之间,说明PAHs主要来自石油的燃烧^[23~24]。本研究以Flu/(Flu+Pyr)和IcdP/(IcdP+BghiP)为x,y轴,对环太湖河流表层沉积物中PAHs的来源进行分析,结果如图5所示。该图中投点表明沉积物样品中的PAHs主要来自石油、煤和木材的燃烧。环太湖地区交通便利,汽车与船舶尾气排放可能是PAHs的重要来源之一,此外剧烈的工业、农业活动是环太湖河流表层沉积物中PAHs另一个主要来源。长兴港(TR20)、濮溇(TR27)和溪港(TR37)沉积物中Flu/(Flu+Pyr)<0.4而IcdP/(IcdP+BghiP)>0.2,表明其PAHs的来源可能为石油源和燃烧源的混合源。长兴港的航道行驶漏油可能是TR20中PAHs的重要来源之一,而TR27和TR37可能为工业区和居民区混合排放所致。

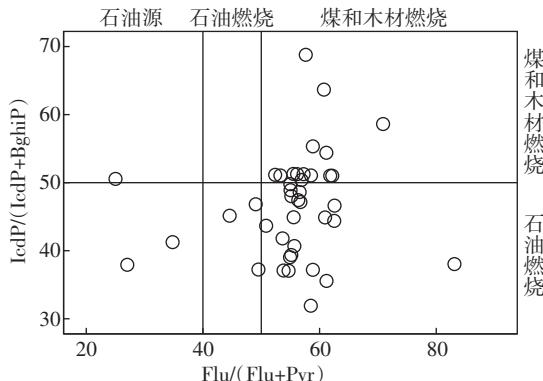


图5 PAHs的Flu/(Flu+Pyr)值与IcdP/(IcdP+BghiP)值判别图

Figure 5 Diagnostic plot of PAHs by ratios of Flu/(Flu+Pyr) vs IcdP/(IcdP+BghiP)

为了获得定量的来源贡献值,本研究将16×41的矩阵(16种PAHs单体和41个采样点)输入PMF3.0模型中。当选取3个因子且Fpeak=0.4时,绝大多数斜率接近1且R²介于0.62~0.96之间,符合模型要求^[25]。通过PMF模型得到的源指纹谱信息(即因子载荷)列于表2。因子1中Ant的载荷较高,而Ant为木材燃烧的标志物,因此推断其为生物质燃烧源^[26~27]。因子2中BaA、Chr、BbF、BkF、BaP、IcdP、DahA和BghiP有较高的载荷,其中IcdP是柴油燃烧排放的代表物质,BaA、BaP、BbF和BghiP常来自于汽油燃烧,因此推断因子2主要代表了汽油、柴油燃烧^[27~28]。因子3中Phe、Flua和Pyr的载荷较高,可能为煤炭燃烧源^[29]。根据提取的源指纹谱信息得到3个因子的贡献率,贡献率最高的为汽油、柴油燃烧源(44.6%),其次是煤炭燃烧源(39.1%)和生物质燃烧源(16.3%),这与分子比值法得到的结论

表2 PMF模型得到的多环芳烃的因子得分
Table 2 Factor scores of each PAH compound by using PMF model

PAHs	因子1	因子2	因子3
NaP	12.21	11.60	6.49
Any	3.02	3.39	0.00
Ace	8.59	2.76	1.37
Flu	9.80	13.07	2.73
Phe	11.06	78.28	79.07
Ant	27.26	0.00	16.03
Flua	0.00	41.25	61.49
Pyr	13.15	26.33	36.12
BaA	10.68	15.62	15.30
Chr	9.73	46.22	29.88
BbF	16.11	69.17	46.48
BkF	3.98	11.75	6.54
BaP	9.90	18.10	13.20
IcdP	6.12	38.67	37.52
DahA	4.76	12.20	8.66
BghiP	13.67	51.25	24.27
贡献率	16.3%	44.6%	39.1%
源识别	生物质燃烧	汽油、柴油燃烧	煤炭燃烧

一致。太湖沉积物中汽油、柴油燃烧源、煤炭燃烧源和生物质燃烧源的贡献分别为53.6%~54.3%、23.8%~28.8%和11.9%~16.0%^[10]。本研究中煤炭和生物质燃烧源的比例略高于太湖湖体,这是由于部分采样点位于农村地区,冬季燃煤取暖也是PAHs的重要来源之一。

2.3.2 TEQ_{BaP}的源解析

本研究基于PMF模型,根据Li等^[30]和Tian等^[31]的研究,将PAHs毒性当量(TEQ_{BaP})以及PMF模型解析出的源组成和源贡献矩阵结合起来,以定量计算不同PAHs来源所呈现出的毒性差异,计算公式如下:

$$(TEQ_{\text{contribution}})_{kp} = \sum_{i=1}^7 [TEF_i \times (PAH_i)_{kp}] \quad (7)$$

$$(PAH_i)_{kp} = g_{kp} f_{ip} \quad (8)$$

式中:(TEQ_{contribution})_{kp}为第k个沉积物样品第p个源的贡献,ng·g⁻¹;TEF_i为第i种cPAH的TEF值;(PAH_i)_{kp}为第p个源对第k个沉积物样品中第i个cPAHs的贡献;g_{kp}为通过PMF模型得到的源成分谱矩阵;f_{ip}为源贡献率矩阵。

三种源对TEQ_{BaP}的贡献如图6所示。化石燃料燃烧源(汽油、柴油燃烧和煤炭燃烧)对PAHs毒性(TEQ_{BaP})的贡献为28.4~194.7 ng·g⁻¹,平均值为77.0 ng·g⁻¹,占总贡献的80.6%,而对龙游河(TR8)和新渎港(TR12)的贡献更高达98.7%和97.6%,表明化石燃料



图 6 环太湖河流沉积物中不同源对 TEQ_{BaP} 的贡献($\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$)

Figure 6 Contributions of different PAHs sources to TEQ_{BaP} in sediments from rivers around Taihu Lake($\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$)

燃烧源为环太湖河流沉积物中 PAHs 毒性(TEQ_{BaP})的主要来源。太湖西南和东北部河流沉积物中,煤炭燃烧源的贡献值较大,可能与当地的工业活动和能源结构有关。这与 Zhang 等^[10]对太湖的研究一致。

3 结论

(1) 环太湖河流表层沉积物中 PAHs 主要以 3~5 环 PAHs 为主,并且北部明显高于南部,也明显高于湖体沉积物。32 个采样点中有不同数量的 PAH 单体超过了 ERL 值,应加强对 PAHs 污染的管理。

(2) 41 条河流中龙游河(TR8)沉积物中 PAHs 和 TEQ_{BaP} 的含量最高,分别为 $2\ 268.7\text{、}224.0\text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$,其来源主要为煤炭燃烧和汽油、柴油燃烧。

(3) 分子比值法与 PMF 模型的结果表明,环太湖河道沉积物中的 PAHs 主要来自燃烧源,而在燃烧源中,汽油、柴油燃烧、煤炭燃烧和生物质燃烧的贡献率分别为 44.6%、39.1% 和 16.3%。

(4) 化石燃料燃烧源(汽油、柴油燃烧和煤炭燃烧)对 PAHs 毒性(TEQ_{BaP})的贡献较大,而生物质燃烧源的贡献相对较低。

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] Mai B, Qi S, Zeng E Y, et al. Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in the coastal region of Macao, China: Assessment of input sources and transport pathways using compositional analysis[J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, 37(21): 4855–4863.
- [3] Shi Z, Tao S, Pan B, et al. Partitioning and source diagnostics of polycyclic aromatic hydrocarbons in rivers in Tianjin, China[J]. *Environmental Pollution*, 2007, 146(2): 492–500.
- [4] 杨建丽,冯 流,周俊丽,等.淮河盱眙段柱状沉积物中 PAHs 分布及生态风险评价[J].环境科学研究,2009,22(4):404–408.
YANG Jian-li, FENG Liu, ZHOU Jun-li, et al. Distribution and ecological risk assessment of PAHs in sediment core from Xuyi Section of Huaihe River[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2009, 22(4): 404–408.
- [5] 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.
MAI Bi-xian, LIN Zheng, ZHANG Gan, et al. Organic contaminants in surface sediments from rivers of the Pearl River Delta and Estuary: The distributions and characteristics of PAHs and organochlorine pesticides

- [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2000, 20(2): 192–197.
- [6] Paatero P, Tapper U. Analysis of different modes of factor analysis as least squares fit problems[J]. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 1993, 18(2): 183–194.
- [7] Paatero P. Least squares formulation of robust non-negative factor analysis[J]. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 1997, 37(1): 23–35.
- [8] Bzdusek P A, Christensen E R, Li A, et al. Source apportionment of sediment PAHs in Lake Calumet, Chicago: Application of factor analysis with nonnegative constraints[J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, 38(1): 97–103.
- [9] 袁旭音, 李阿梅, 王禹, 等. 太湖表层沉积物中的多环芳烃及其毒性评估[J]. 河海大学学报:自然科学版, 2005, 32(6): 607–610.
YUAN Xun-yin, LI A-mei, WANG Yu, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from Taihu Lake and their toxicity evaluation [J]. *Journal of Hohai University(Natural Sciences)*, 2005, 32(6): 607–610.
- [10] Zhang Y, Guo C S, Xu J, et al. Potential source contributions and risk assessment of PAHs in sediments from Taihu Lake, China: Comparison of three receptor models [J]. *Water Research*, 2012, 46(9): 3065–3073.
- [11] 武江越, 刘征涛, 冯流, 等. 太湖表层沉积物中PAHs的空间分布及风险评价 [J]. 环境科学研究, 2012, 25(4): 391–396.
WU Jiang-yue, LIU Zheng-tao, FENG Liu, et al. Spatial distribution and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in partial surface sediments of Taihu Lake[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2012, 25(4): 391–396.
- [12] Qiao M, Wang C, Huang S, et al. Composition, sources, and potential toxicological significance of PAHs in the surface sediments of the Meiliang Bay, Taihu Lake, China[J]. *Environment International*, 2006, 32(1): 28–33.
- [13] Long E R, Macdonald D D, Smith S L, et al. Incidence of adverse biological effects within ranges of chemical concentrations in marine and estuarine sediments[J]. *Environmental Management*, 1995, 19(1): 81–97.
- [14] 廖海清, 张亮, 郭建阳, 等. 成渝经济区河流表层沉积物中多环芳烃的分布, 来源及生态风险评价 [J]. 环境科学, 2011, 32(9): 2639–2644.
LIAO Hai-qing, ZHANG Liang, GUO Jian-yang, et al. Distribution, source and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in river sediment of Cheng-Yu Economic Zone[J]. *Environmental Sciences*, 2011, 32(9): 2639–2644.
- [15] Xu J, Yu Y, Wang P, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in the surface sediments from Yellow River, China[J]. *Chemosphere*, 2007, 67(7): 1408–1414.
- [16] Xue B, Wang Y, Zhang D, et al. Concentration, distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs) in surface sediments from Lijiang River, South China[J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2013, 90(4): 446–450.
- [17] Liu F, Liu J, Chen Q, et al. Pollution characteristics and ecological risk of polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs) in surface sediments of the southern part of the Haihe River system in China[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2013, 58(27): 3348–3356.
- [18] Zhang H, Huang P, Song M. Polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs) in the sediments of Beijiang River, China: Characteristics, sources and toxicity evaluation. The International Conference on Environmental Pollution and Public Health (EPPH 2011), Special Track within iCBBE2011.
- [19] 胡雄星, 周亚康, 韩中豪, 等. 黄浦江表层沉积物中多环芳烃的分布特征及来源[J]. 环境化学, 2005, 24(6): 74–77.
HU Xiong-xing, ZHOU Ya-kang, HAN Zhong-hao, et al. Distribution and source of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surface sediment of Huangpujiang River [J]. *Environmental Chemistry*, 2005, 24(6): 74–77.
- [20] Tsai P J, Shih T S, Chen H L, et al. Assessing and predicting the exposures of polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs) and their carcinogenic potencies from vehicle engine exhausts to highway toll station workers[J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(2): 333–343.
- [21] 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.
- [22] Sprovieri M, Feo M L, Prevedello L, et al. Heavy metals, polycyclic aromatic hydrocarbons and polychlorinated biphenyls in surface sediments of the Naples harbour(Southern Italy)[J]. *Chemosphere*, 2007, 67(5): 998–1009.
- [23] 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.
- [24] 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.
- [25] Henry R C, Christensen E R. Selecting an appropriate multivariate source apportionment model result[J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, 44(7): 2474–2481.
- [26] Harrison R M, Smith D, Luhana L. Source apportionment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons collected from an urban location in Birmingham, UK[J]. *Environmental Science & Technology*, 1996, 30(3): 825–832.
- [27] Li C K, Kamens R M. The use of polycyclic aromatic hydrocarbons as source signatures in receptor modeling[J]. *Atmospheric Environment Part A General Topics*, 1993, 27(4): 523–532.
- [28] Sofowote U M, McCarry B E, Marvin C H. Source apportionment of PAH in Hamilton Harbour suspended sediments: Comparison of two factor analysis methods[J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(16): 6007–6014.
- [29] 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]. *Atmospheric Environment*, 1999, 33(30): 5071–5079.
- [30] Li G, Lang Y, Yang W, et al. Source contributions of PAHs and toxicity in reed wetland soils of Liaohe estuary using a CMB-TEQ method[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 490: 199–204.
- [31] Tian Y Z, Li W H, Shi G L, et al. Relationships between PAHs and PCBs, and quantitative source apportionment of PAHs toxicity in sediments from Fenhe reservoir and watershed [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2013, 248: 89–96.