

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2017.06.2017021601

刘旭, 纪灵, 纪殿胜, 等. 渤海中部油气开采区石油烃环境质量评价及源解析[J]. 环境化学, 2017, 36(6): 1362-1368.

LIU Xu, JI Ling, JI Diansheng, et al. Environmental quality and source identification of petroleum hydrocarbons in the surface sediment of the oil and gas exploration zone in the central of Bohai Sea[J]. Environmental Chemistry, 2017, 36(6): 1362-1368.

渤海中部油气开采区石油烃环境质量评价及源解析*

刘旭^{1,2} 纪灵³ 纪殿胜³ 姜军成³ 李沅蔚⁴ 王传远^{4**}

(1. 中国海洋大学法学院, 青岛, 266100; 2. 国家海洋局北海分局, 青岛, 266100;
3. 国家海洋局烟台海洋环境监测中心站, 烟台, 264006; 4. 中国科学院烟台海岸带研究所, 烟台, 264003)

摘要 对渤海中部油气开采区表层沉积物中的石油烃含量进行了环境质量评价, 分析了正构烷烃和多环芳烃分子组成特征, 并对其来源进行了解析. 结果表明, 石油类浓度为 12.5—860 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 之间, 污染指数为 0.61—41.97; 随着与采油平台距离的增加, 平台周边海域石油烃含量和污染水平呈现降低的趋势; 沉积物沉积时为缺氧还原的沉积环境. 正构烷烃的分布特征和甾萜烷生物标志化合物表明, 源自大陆高等植物和海洋浮游生物的烷烃共存于渤海近代沉积物中, 石油类产品和化石燃料燃烧产物对其贡献不能忽视; 石油平台站位 PAHs 主要来自石油的直接输入, 其它站位主要来自燃烧源.

关键词 渤海, 溢油污染, 多环芳烃, 风险评价, 污染源, 石油开采.

Environmental quality and source identification of petroleum hydrocarbons in the surface sediment of the oil and gas exploration zone in the central of Bohai Sea

LIU Xu^{1,2} JI Ling³ JI Diansheng³ JIANG Juncheng³ LI Yuanwei⁴ WANG Chuanyuan^{4**}

(1. Law & Politics School of Ocean University of China, Qingdao, 266100, China; 2. North China Sea Branch of State Oceanic Administration, Qingdao, 266100, China; 3. Yantai Oceanic Environmental Monitoring Central Station, State Oceanic Administration, Yantai, 264006, China; 4. Yantai Institute of Coastal Zone Research, Chinese Academy of Sciences, Yantai, 264003, China)

Abstract: The concentrations of petroleum hydrocarbons from the surface sediments, collected from oil and gas exploration area in central Bohai Sea were measured to investigate the spatial distributions, analyze the sources according to the component characteristics of *n*-alkane and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), and evaluate environmental quality. The results showed that the petroleum hydrocarbons contents in surface sediments ranged from 12.5 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ to 860 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, and the pollutant standard index (PSI) was in the range of 0.61—41.97. The concentration and PSI in sediment decreased with the distanced from the oil drilling platform. The sediment environment was anoxic reduction. The distribution of *n*-alkanes and sterane, terpane biomarkers indicate that the alkanes from higher plants and marine plankton coexist in the sediments of Bohai Sea. Petroleum products and fossil fuel combustion products should not be ignored for modern sediments of Bohai Sea. PAHs in sediment from oil platform stations are mainly from the

2017年2月16日收稿(Received: February 16, 2017).

* 国家海洋局北海分局渤海中部公共海域沉积物现场微生物修复项目(QDZC20150420-002)和国家公益性科研专项(201205012)资助.

Supported by Project of On-Site Sediment Microbial Remediation of Public Area of Central Bohai Sea, North China Sea Branch of State Oceanic Administration (QDZC20150420-002) and Special Fund for National Research in the Public Interest (201205012).

** 通讯联系人, E-mail: cywang@yic.ac.cn

Corresponding author, E-mail: cywang@yic.ac.cn

direct input of oil, while other stations mainly from combustion sources.

Keywords: Bohai Sea, oil spill pollution, PAHs, risk assessment, pollution source, the oil and gas exploration zone.

烃类化合物是沉积有机质的重要组成部分,生物贡献源、细菌的降解和化石燃料的输入或燃烧等人为活动的输入是其主要来源。随着石油开采、加工和石油制品使用总量的增加,通过各种途径进入海洋的石油类化合物总量日益增加,海洋石油污染已成为近岸海域的主要污染物之一。渤海是我国最早实施油气开发的海域,其石油平台和海底管线在数量和密度上均为中国近海 4 个海区中最高^[1]。2011 年 6 月 11 日,位于渤海中部的蓬莱 19-3 油气田发生溢油事故,该事故造成劣四类海水面积 840 km²,事故附近海域海水石油烃浓度最高为 1280 μg·L⁻¹,超背景值 53 倍^[2]。此外,环渤海经济圈以及渤海海域是我国人类活动较为强烈的区域,黄河、海河、辽河等重要河流携带大量的污染物注入渤海。由于渤海是一个半封闭的陆架边缘海,与外海的水体交换受限,受污染物累计效应的影响,渤海已成为中国近海污染程度最为严重的区域之一。

近年来,有关渤海表层沉积物中烃类化合物的组成特征已有一定的研究^[1,3-4],而有关渤海石油开采区沉积物中石油烃类化合物的分布特征、来源的研究报道较少。正构烷烃和多环芳烃作为石油烃的主要成分,在海洋沉积物中普遍存在。本研究拟对渤海中部油气开采区以及溢油污染区表层沉积物中的石油烃含量的空间分布进行分析,研究了海洋沉积物样品中正构烷烃和多环芳烃的残留情况和组成特征,以进一步了解渤海海域石油烃污染状况,评估溢油事故影响海域的恢复情况,为评价油气开采和工业生产等人类活动对该海域的环境影响提供科学依据。

1 材料与方 法 (Materials and methods)

1.1 样品采集

表层沉积物用箱式取样器于 2015 年 8 月采集获得,采集站位如图 1 所示。其中 BH22、BH28 为非油气采集区,BHP7、BHP8、BHP14、BHP17、BHP18 和 BHP19 为石油平台外围点,PL4、PL5 和 PL6 为近石油平台采集点。采集后样品放入冰柜-20 °C 冷冻保存,送回至实验室分析。

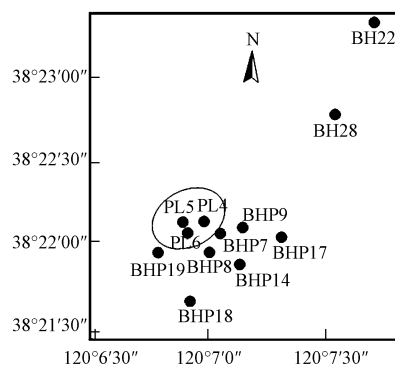


图 1 研究区域与采样站位

Fig.1 Study area and location of sampling sites in the Bohai

1.2 样品处理和分析测试

(1) 沉积物石油烃总量测定

石油烃总量测试采用紫外分光光度法。将风干的沉积物样品置于 50 mL 具塞比色管中,加 15.0 mL 正己烷,加盖振荡 2 min,待分层后吸出正己烷萃取液,注入盛有 20 mL 硫酸钠溶液的 60 mL 锥形分液漏斗中,用 10.0 mL 正己烷重复萃取 1 次,静置分层,将萃取液吸出并入分液漏斗中。于原比色管中加入 10 mL 硫酸钠溶液,将析出的正己烷吸出合并于上述分液漏斗中。振荡分液漏斗 2 min,静置分层后,弃去水相(下层)。再用 20 mL 硫酸钠液重复洗涤 2 次,弃去水相,用滤纸卷吸干锥形分液漏斗下端管颈内的

水分,将萃取液放入 25 mL 具塞比色管中.用紫外分光光度计进行测定.

(2) 沉积物样品的抽提和分离

沉积物样品冷冻干燥,经粉碎过筛后,滤纸包裹,进行索氏脂肪抽提 48 h,然后铜粉脱硫^[14].抽提液浓缩后用氧化铝/硅胶柱色谱进行柱层析分离.分别用正己烷和苯冲洗(体积比为 30:70)获得饱和烃和芳烃馏分.烷烃淋出液在旋转蒸发仪上浓缩.最后,对分离出的饱和烃馏分进行色谱-质谱联用仪(GC-MS)分析鉴定.

(3) 沉积物样品色谱-质谱分析

利用 6890N GC-5973N MSD 气相色谱-质谱联用仪(美国 Agilent 公司)进行饱和烃组分分析.所需色谱柱为:Agilent HP-5MS (30 m×0.25 mm×0.25 mm).气相色谱条件:进样口温度 280 °C;不分流进样;载气为 He,流量为 1.0 mL·min⁻¹.柱温箱升温程序:起始 50 °C,保持 2 min,以 6 °C·min⁻¹速率升到 300 °C 保持 16 min.质谱条件:电子轰击(EI)离子源,电子能量 70 eV,离子源温度 230 °C.

采用选择离子检测(SIM)方式进行 GC-MS 分析检测,其中选取特征碎片离子(*m/z* 85)对正构烷烃、姥鲛烷、植烷进行检测;用正构烷烃混合标准溶液进行定量.常用的多环芳烃质量色谱图及定性信息参考 GB/T 21247—2007.使用 D14-三联苯作为多环芳烃的内标.样品处理之前加入氘代多环芳烃(D8-Nap、D10-Phe、D10-Ace、D12-Chy、D12-Pery)进行回收率测定,回收率在 64.95%—112.69%之间.实验质量控制/质量保证(QA/QC)参考 USEPA 方法,每 10 个样品进行 1 个重复性实验和空白实验.

1.3 沉积物评价标准及方法

(1) 沉积物评价标准

表层沉积物评价标准执行《海洋沉积物质量》(GB18668—2002)中的一类标准,各类沉积物质量标准值列于表 1.

表 1 沉积物评价标准

Table 1 Marine sediment quality

项目 Test	一类标准 Standards of the first grade	二类标准 Standards of the second grade	三类标准 Standards of the third grade
石油类	≤500.0	≤1000.0	≤1500.0

(2) 沉积物单因子评价方法

采用 Hakanson 单因子指数法对沉积物中石油烃的污染状况进行评价.其公式如下:

$$I_i = C_i/S_i$$

式中, I_i 为 i 项污染物的标准指数; C_i 为 i 项污染物的实测浓度(平均值); S_i 为 i 项污染物评价标准.

用 I_i 来表征沉积物中单个污染物的污染水平; $I_i < 1$ 为未污染或污染水平低; $1 \leq I_i < 3$ 为中等污染水平; $3 \leq I_i < 6$ 为较高污染水平; $I_i > 6$ 为重度污染水平.

2 结果和讨论(Results and discussion)

2.1 表层沉积物石油烃环境质量评价

如果仅根据表 1 海洋沉积物质量国家标准,本次调查中,除渤海中部油气开采区海上采油平台站位 501—860 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 外,研究海域石油类污染物质含量 12.5—103 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ 均远小于 500×10^{-6} ,沉积物石油类均符合一类海洋沉积物质量标准.但是,依据历史演化判断,结论则不完全如此.根据前人对研究区柱状沉积物的研究^[4],在 40 cm 以下(即 20 世纪 30 年代以前)沉积物中石油烃的含量($20.49 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)较低,当时人类活动的影响较弱,可作为研究区的背景值.表层沉积物石油烃浓度和污染评价见图 2.非油田区站位 BH-22 和 BH-28 污染指数(0.61—0.91)显示为未污染或污染水平低;石油平台外围点(BHP-14、BHP-17、BHP-18 和 BHP-19)污染指数(1.01—2.42)显示为中等污染水平低;近平台点站位(BHP-7、BHP-8 和 BHP-9)为 3.98—5.03,显示为较高污染水平;石油平台站点(PL4、PL5、PL6)污染指数为 23.77—41.97,显示为重度污染水平.此外,研究结果还表明,由非油田区到靠近石油平台,随着距

离石油平台距离的减小,沉积物石油烃含量和污染水平逐渐增加。

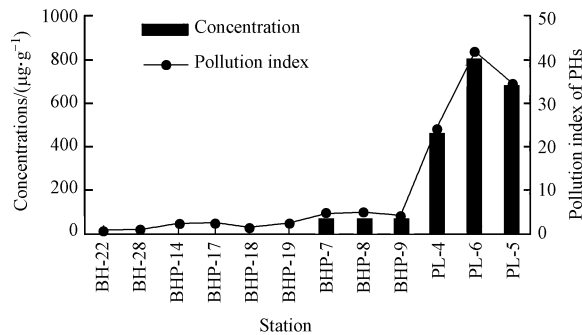


图2 表层沉积物石油烃浓度和污染物的标准指数

Fig.2 Concentrations and pollution index of the petroleum hydrocarbons (PHs) in the surface sediments

2.2 表层沉积物石油烃来源分析

2.2.1 正构烷烃

正构烷烃是指没有碳支链的饱和烷烃,是饱和烃中最主要的组分,也是较为常见的一类溯源生物标志物。对各站位沉积物中正构烷烃含量进行统计发现(图3),各站位谱图基本为“双峰”型模式分布,碳数分布范围分别为 C₁₀—C₃₅,前低碳数峰群和后高碳数峰群含量相当,轻重烃比值(LMW/HMW, $\Sigma C_{21}^+/C_{22}^+$)为 0.61—1.76。这反映了调查区域各站位正构烷烃链长的分布多呈现双峰群的陆、海混合来源型。总体而言,研究样品分为两种型式:第一类(例如 BH-22、BHP-17),呈明显双峰分布,且前峰无明显碳数优势,后峰呈以 C₃₀、C₃₂、C₃₄为主峰的偶碳数优势;第二类(例如 PL-6),前峰含量较高,无明显奇碳和偶碳优势;后峰含量较低,呈以 C₃₁、C₃₄、C₃₅为主峰的奇碳和偶碳数混合模式。

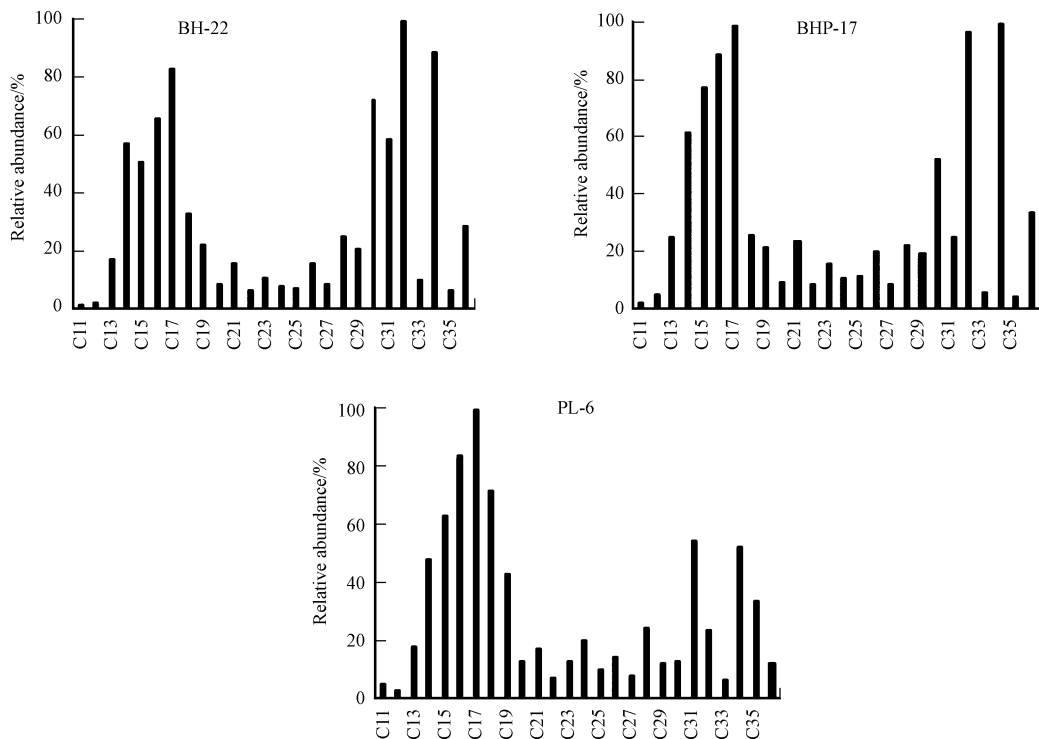


图3 典型采样站位沉积物中正构烷烃碳数分布模式图

Fig.3 Molecular distribution of *n*-alkanes concentrations in sediment of typical collecting stations

碳优势指数(Carbon preference index)CPI和奇偶优势指数OEP(Odd-even predominance)是评价海洋沉积物中正构烷烃来源的两个重要参数,一般情况下来源于高等植物的正构烷烃具有明显的奇偶优

势,其 OEP 通常在 8—10 之间,而人为活动输入的正构烷烃则无明显奇偶优势,该值更趋近于 1^[5-6]. 计算得出所有站位 OEP 指数(1.20—1.60)均低于 8,且接近于 1,表现为有较明显的人为活动输入.当 CPI 在 4—10 时也可视为高等陆生植物源^[6-7],而来源于原油、化石燃料燃烧的正构烷烃 CPI 值则随着影响程度的增加而更加接近于 1^[8-9].本研究区域样品中 CPI 值为 0.35—1.13,初步推断其来源于原油或化石燃料的燃烧.此外,C₁₆在未受石油污染的海域中很少出现,调查海域所有站位的表层沉积物都检出了 C₁₆(图 4).另外,∑n-alk/C₁₆比值也可作为指示石油污染的指标,沉积物中该比值小于 30 表明受到了原油污染,大于 50 则表明沉积物未被污染,且其烷烃主要来自生物源^[10].但本研究中各站位比值偏低,各站位该值均在 30 内,可推断该海域可能受到了石油污染,且受原油污染程度最大的为石油平台站点(8.37—8.57),污染程度最弱的为非油田区域站点(15.13—17.78).

2.2.2 异戊二烯烷烃

在现代沉积物中,广泛存在着 20 个碳以下的无环类异戊二烯化合物,如姥鲛烷(Pristane, Pr)和植烷(Phytane, Ph),这些化合物主要来自于叶绿素的直基侧链,是重要的生物标志物.Pr/Ph 小于或接近 1 时则意味着沉积物受到了石油污染^[11].研究区采油平台站位表层沉积物各个站位 Pr/Ph 比值的分布范围为 0.94—1.13,表明其受到了一定程度的石油污染的威胁;其它站位表层沉积物各个站位 Pr/Ph 比值的分布范围为 0.73—0.90,指示沉积环境为缺氧还原环境,且存在石油污染.由于姥鲛烷和植烷相对于相邻正构烷烃性质较为稳定,故他们之间的比值被作为较好的生物降解指标.比值较低表示存在石油降解产物;而比值较高则表示石油的降解程度低,当脂肪烃的浓度较高且具有较高的比值时表示有新鲜石油输入.由图 5 看出,各站位点可能存在石油降解产物,PL4、PL5 和 PL6 站位石油污染较严重.

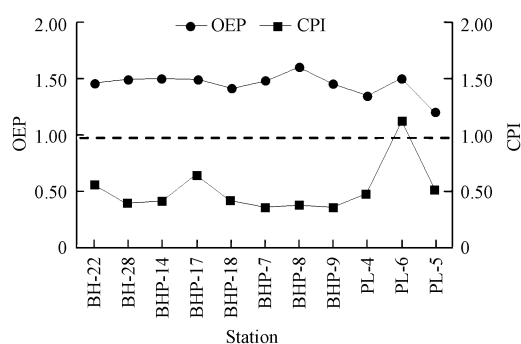


图 4 沉积物中 OEP 和 CPI 参数分布图

$$CPI = 1/2[(C_{23}+C_{25}+C_{27}+C_{29}+C_{31}) / (C_{22}+C_{24}+C_{26}+C_{28}+C_{30}) + (C_{23}+C_{25}+C_{27}+C_{29}+C_{31}) / (C_{24}+C_{26}+C_{28}+C_{30}+C_{32})]$$

$$OEP = (C_{25}+6C_{27}+C_{29}) / 4(C_{26}+C_{28})$$

Fig.4 Distribution of OEP and CPI in the sediment

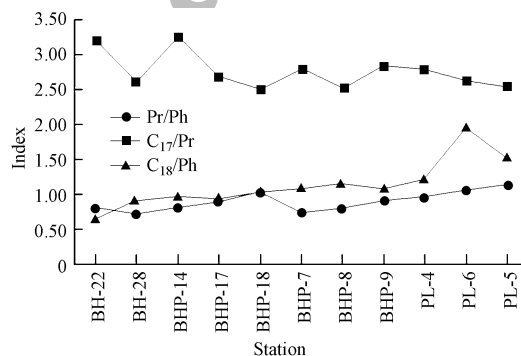


图 5 沉积物中 Pr/Ph、C₁₇/Pr 和 C₁₈/Ph 参数分布图

Fig.5 Distribution of Pr/Ph, C₁₇/Pr and C₁₈/Ph in the sediments

2.2.3 藿烷和甾烷生物标志化合物

藿烷和甾烷在海洋沉积物中广泛存在,它们的组成特征不仅可以反映沉积物有机质的生源构成,还可反映有机质的热降解程度(成熟度)及沉积环境的变化.藿烷主要以 17 α (H)、21 β (H) 系列为主,主要有 C₂₇-18 α (H)-三降藿烷(Ts)、C₂₇-17 α (H)-三降藿烷(Tm)、C₂₉-降藿烷、C₃₀-降藿烷、C₃₀-伽马蜡烷和 C₃₁-升藿烷等,同时还包括 $\beta\alpha$ 莫烷系列.另外,规则甾烷系列中,样品含量为 C₂₉>C₂₇>C₂₈,反映陆源有机质贡献占优势.成熟度参数 C₃₁藿烷 22S/(22S+22R) 值为 0.53—0.57, C₂₉甾烷 20S/(20S+20R) 值为 0.41—0.45,皆显示出较高的热成熟作用,这可能与石油烃的输入有关.

2.3 多环芳烃

2.3.1 芳烃含量及污染水平

由于溢油、漏油事件的发生,石油污染物进入周边水体和沉积物,原油中较难挥发和降解的多环芳烃易在底质中积累,这将会对平台周边的海洋环境及水生生物造成持久性的影响.除了苯并(e)芘外,各站位中常见的其它 15 种优先控制的 PAHs 基本都有检出.总体而言,PAHs 随着与平台的距离增加呈减

小趋势.其中非油田区 PAHs 含量最低,为 $63.82 \pm 9.45 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$;平台周围采样点可能受油气开采过程中溢油或漏油影响,PAHs 含量 ($171.66 \pm 93.38 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$) 最高;平台外围及近平台采样点含量介于二者之间,为 $99.57 \pm 38.92 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$. 与国内外相似表层沉积物中多环芳烃含量进行比较(表 2),西班牙桑坦德港(Santander Bay)平均含量值最低,渤海中部油气开采区含量与埃及密西西比湾岸(Mediterranean coast)相比处于较低的含量水平,与中国大部分类似区域水体相比处于低等水平,但高于崇明岛.

表 2 国内外表层沉积物多环芳烃比较

Table 2 Comparison of PAHs in the surface sediment in various regions of the world

地点 Sampling sites	$\Sigma \text{PAHs}/(\text{ng} \cdot \text{g}^{-1})$		参考文献 Reference
	含量范围 Content range	均值 Mean	
渤海中部	72.05—273.42	118.79	本研究
长江口	90.14—502.12	259.1	[12]
海河	134—2432	27074.08	[13]
珠江口	134—2432	885.17	[14]
崇明岛	38.7—136.2	107.05	[15]
西班牙桑坦德港	0.35—344.60	59.59	[16]
埃及密西西比湾岸	3.5—14100	787.24	[17]
以色列吉顺河	34.2—188	100.68	[18]

2.3.2 PAHs 源解析

同分异构体的比值,可以作为判别 PAHs 来源的依据^[19-22].非油气开采区,低分子量(2—4 环)与高分子量多环芳烃(5—6 环)比值 LMW/HMW-PAHs (0.90 ± 0.05) 低于 1.0;而采油平台及其周围附近区域该比值 (1.54 ± 0.54) 总体大于 1,表明石油及其产品的输入是平台周边多环芳烃污染的主要来源.此外,综合利用荧蒽/(荧蒽+芘) ($\text{Flu}/(\text{Flu}+\text{Pyr})$), 苯并(a)蒽/(苯并(a)蒽+蒽) ($\text{BaA}/(\text{BaA}+\text{Chy})$) 比值及蒽/(蒽+菲) ($\text{Ant}/(\text{Ant}+\text{Phy})$) 的比值(图 6)分析表明,渤海非采油区对比站位、石油平台外围点和近平台站位沉积物中的 PAHs 主要来自燃烧源,而石油平台站位 PAHs 来自石油的直接输入.

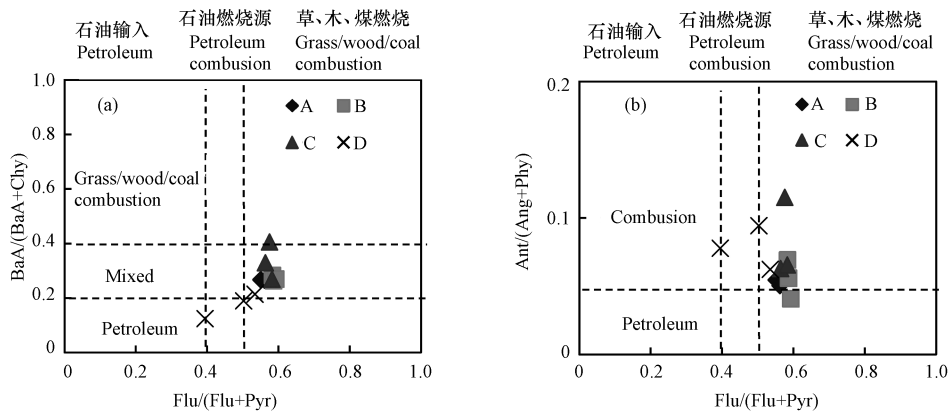


图 6 芳烃源解析的异构体比值参数

(A:非采油区;B:采油平台外围点;C:近平台点;D:平台点)

Fig.6 Plots of PAH isomer pair ratios for source identification

(A: Non oil producing area; B: Peripheral point of oil production platform; C: Near oil platform; D: Oil platform)

3 结论 (Conclusion)

(1) 非油田区站位为未污染或污染水平低,石油平台外围点为未污染或污染水平低,近平台点站位显示较高污染水平,石油平台站位点为重度污染水平.

(2) 随着与平台距离的增加,渤海区域石油开采平台周边海域石油烃和 PAHs 含量呈现降低的趋势.

(3)各站位正构烷烃链长的分布多呈现双峰群的陆、海混合来源型,包括陆生高等植物源、海洋生物源、人为污染源。渤海中部油气开采区沉积物各站位沉积物中正构烷烃的 Pr/Ph 值基本小于 1,说明沉积物沉积时为缺氧还原的沉积环境。

(4)渤海非采油区对比站位、石油平台外围点和近平台站位沉积物中的 PAHs 主要来自燃烧源,而石油平台站位 PAHs 来自石油的直接输入为主的混合源。

参考文献 (References)

- [1] HU L M, GUO Z G, SHI X F, et al. Temporal trends of aliphatic and polyaromatic hydrocarbons in the Bohai Sea, China: Evidence from the sedimentary record[J]. *Organic Geochemistry*, 2011, 42: 1181-1193.
- [2] 国家海洋局,2011年中国海洋环境状况公报[R].2012.
China's State Oceanic Administration.China marine environment bulletin 2011[R]. 2012(in Chinese).
- [3] 刘亮,王菊英,胡莹莹,等.渤海近岸海域石油类污染变化趋势[J].*海洋与湖沼*,2014,45(1):88-93.
LIU L, WANG J Y, HU Y Y, et al. Contamination by petroleum hydrocarbon in coastal waters of Bohai Bay[J].*Oceanologia et Limnologia Sinica*, 2014, 45(1): 88-93(in Chinese).
- [4] 刘明,张爱滨,廖永杰,等.渤海中部油气开采区沉积物中石油烃环境质量[J].*海洋环境科学*,2015,34(1):12-16.
LIU M, ZHANG A B, LIAO Y J, et al. Environmental quality of petroleum hydrocarbons in the surface sediment of the oil and gas exploration zone in the central of Bohai Sea[J]. *Marine Environmental Science*, 2015, 34(1):12-16(in Chinese).
- [5] SNEDAKER S C, GLYNN P W, RUMBOLD D G. Distribution of *n*-alkane in marine samples from southeast Florida[J].*Marine Pollution Bulletin*, 1995, 30(1): 83-89.
- [6] SALEM D M S A, MORSY F A E M, El NEMR A, et al.The monitoring and risk assessment of aliphatic and aromatic hydrocarbons in sediments of the Red Sea, Egypt[J]. *The Egyptian Journal of Aquatic Research*, 2014, 40:333-348.
- [7] MANDALAKIS M, POLYMENAKOU P N, TSELEPIDES A, et al.Distribution of aliphatic hydrocarbons, polycyclic aromatic hydrocarbons and organochlorinated pollutants in deep-sea sediments of the southern Cretan margin, eastern Mediterranean Sea: A baseline assessment [J]. *Chemosphere*, 2014, 106: 28-35.
- [8] AL-SAAD H T, FARID W A, ATEEK A A, et al. *n*-Alkanes in surficial soils of Basrah city, Southern Iraq[J]. *International Journal of Marine Science*, 2015, 5: 1-8.
- [9] WANG, J Z, YANG Z Y, CHEN T H. Source apportionment of sediment-associated aliphatic hydrocarbon in a eutrophicated shallow lake, China[J].*Environmental Science and Pollution Research*, 2012, 19: 4006-4015.
- [10] MILLE G, ASIA L, GUILIANO M, et al. Hydrocarbons in coastal sediments from the Mediterranean sea (Gulf of Fos area, France)[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2007, 54: 566-575.
- [11] COMMENDATORE M G, ESTEVES J L, COLOMBO J C. Hydrocarbons in coastal sediments of Patagonia, Argentina: Levels and probable sources[J]. *Marine Pollution Bulletin*,2000, 40: 989-998.
- [12] HUI Y M, ZHENG M H, LIU Z T, et al. Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from Yellow River Estuary and Yangtze River Estuary, China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2009, 21: 1625-1631.
- [13] BIN J A, ZHENG H L, HUANG G Q, et al. Characterization and distribution of polycyclic aromatic hydrocarbon in sediments of Haihe River, Tianjin, China[J]. *Journal of Environmental Sciences*,2007, 19:306-311.
- [14] Mai B X, Fu J M, Sheng G Y, et al Chlorinated and polycyclic aromatic hydrocarbons in riverine and estuarine sediments from Pearl River Delta China[J]. *Environmental Pollution*, 2002, 117, 457-474.
- [15] WANG Z, LIU Z, YANG Y, et al. Distribution of PAHs in tissues of wetland plants and the surrounding sediments in the Chongming wetland, Shanghai, China[J]. *Chemosphere*,2012, 89: 221-227.
- [16] VIGURI J, VERDE J, IRABIEN A. Environmental assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surface sediments of the Santander Bay, Northern Spain[J]. *Chemosphere*, 2002, 48: 157-165
- [17] BARAKAT A O, MOSTAFA A, WADE T L. Distribution and characteristics of PAHs in sediments from the Mediterranean coastal environment of Egypt[J].*Marine Pollution Bulletin*, 2011, 62: 1969-1978.
- [18] OREN A, AIZENSHTAT Z, CHEFETZ B. Persistent organic pollutants and sedimentary organic matter properties: A case study in the Kishon River, Israel[J]. *Environmental Pollution*,2006, 141: 265-274.
- [19] 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.
- [20] 薛荔栋,郎印海,刘爱霞,等.黄海近岸表层沉积物中多环芳烃来源解析[J].*生态环境*,2008,17(4):1369-1375.
XUE L D, LANG Y H, LI A X, et al. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in coastal surface sediments from the Yellow Sea [J]. *Ecology and Environment*, 2008, 17(4): 1369-1375(in Chinese).
- [21] 朱媛媛,田靖,魏恩琪,等.天津市土壤多环芳烃污染特征、源解析和生态风险评价[J].*环境化学*,2014,33(2):248-255.
ZH Y Y, TIAN J, WEI E Q, et al. Characteristics, sources apportionment and ecological risks assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils of Tianjin, China[J]. *Environmental Chemistry*, 2014, 33(2): 248-255(in Chinese).
- [22] RAHMANPOOR S, GHAFOURIAN H, HASHTROUDI S M, et al. Distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface sediments of the Hormuz strait, Persian Gulf [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, 78: 224-229.