

DOI: 10.7524/AJE.1673-5897.20180409001

李海燕, 赖子尼, 曾艳艺, 等. 广东典型湿地环境沉积物及鱼体中多环芳烃的污染特征及风险评估[J]. 生态毒理学报, 2019, 14(5): 296-307

Li H Y, Lai Z N, Zeng Y Y, et al. Pollution characteristics and risk assessment of PAHs in sediments and fishes from typical wetlands of Guangdong Province [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2019, 14(5): 296-307 (in Chinese)

## 广东典型湿地环境沉积物及鱼体中多环芳烃的污染特征及风险评估

李海燕, 赖子尼\*, 曾艳艺, 杨婉玲, 高原

中国水产科学研究院珠江水产研究所, 广州 510380

收稿日期: 2018-04-09 录用日期: 2018-10-08

**摘要:** 为了解广东典型湿地环境表层沉积物及鱼体中多环芳烃(PAHs)的污染特征, 分别于2014年10月和2015年4月采集沉积物及鱼类样品, 分析其中16种US EPA优控多环芳烃的主要来源和风险。结果表明, 广东典型湿地环境表层沉积物中多环芳烃的含量范围为139.4~1134.3 ng·g<sup>-1</sup>干重, 鱼类肌肉中多环芳烃含量范围为11.1~33.9 ng·g<sup>-1</sup>湿重。表层沉积物中有机碳与不同环数的多环芳烃含量均呈现显著的正相关关系。来源分析的结果表明, 研究区域表层沉积物中多环芳烃的主要来源为石油排放及燃烧来源的混合。风险评估的结果表明, 该区域表层沉积物中多环芳烃存在一定的生态风险, 需引起重视; 通过食用鱼类造成的致癌风险为2.25×10<sup>-6</sup>~4.23×10<sup>-6</sup>, 略高于美国环保局(US EPA)推荐的可接受风险(10<sup>-6</sup>), 存在一定的潜在致癌风险。对于成年人来说, 研究区域鱼类肌肉中多环芳烃产生致癌风险允许的最大日食用量(CR<sub>lim</sub>)范围为124.5~234.6 g·d<sup>-1</sup>, 尽管食用这几种鱼的致癌风险不大, 居民摄入时仍应加以控制。

**关键词:** 多环芳烃; 湿地环境; 来源; 风险

文章编号: 1673-5897(2019)5-296-12 中图分类号: X171.5 文献标识码: A

## Pollution Characteristics and Risk Assessment of PAHs in Sediments and Fishes from Typical Wetlands of Guangdong Province

Li Haiyan, Lai Zini\*, Zeng Yanyi, Yang Wanling, Gao Yuan

Pearl River Fisheries Research Institute, Chinese Academy of Fishery Science, Guangzhou 510380, China

Received 9 April 2018 accepted 8 October 2018

**Abstract:** In order to investigate the pollution characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons, (PAHs) in sediments and fishes of typical wetland environment in Guangdong, surface sediment and fish samples from wetlands were collected in October, 2014 and April, 2015, respectively. Main source and risk assessment of 16 US EPA priority PAHs in the study area were examined. The results showed that the concentration of PAHs ranged from 139.4 to 1134.3 ng·g<sup>-1</sup> dry weight in the sediment samples and ranged from 11.1 to 33.9 ng·g<sup>-1</sup> wet weight in the fish muscle samples. The concentrations of total organic carbon (TOC) were highly significantly correlated with those of 2-rings, 3-rings, 4-rings and 5, 6-rings of PAHs respectively. PAH isomer pair ratios analysis indica-

**基金项目:** 国家自然科学基金青年基金项目(31600420); 中国水产科学研究院中央级公益性科研院所基本科研业务费专项资金项目(2016HY-ZC0501); 中国水产科学研究院基本科研业务费专项课题(2015A01YY02)

**作者简介:** 李海燕(1985—), 女, 博士, 研究方向为水环境中持久性有机污染物的迁移转化及健康风险, E-mail: lihaiyan@prfri.ac.cn

\* 通讯作者( Corresponding author), E-mail: znlai01@prfri.ac.cn

ted that main source were derived from petroleum emission and combustion in the sediments, while from mixed combustion in the fish muscles. The ecological risk of PAHs in surface sediments was relatively low but more attention were needed to be paid. The carcinogenic risks through fish ingestion were in the range of  $2.25 \times 10^{-6} \sim 4.23 \times 10^{-6}$  and slightly higher than the baseline value of acceptable risk ( $10^{-6}$ ). Based on the maximum acceptable level of PAHs cancer control, the maximum acceptable daily intakes of fishes should be  $124.5 \sim 234.6 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$  (by wet mass) in the study regions. Although little carcinogenic risks were found in these fish species, it should be controlled when ingested by residents.

**Keywords:** polycyclic aromatic hydrocarbons; wetland environment; source; risks

多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 是一类典型的持久性有毒污染物, 在水、土壤、大气和沉积物等环境介质中广泛存在, 其带来的生态效应已引起了国际社会的广泛关注。多环芳烃的主要来源包括自然来源和人为来源。自然来源主要是森林和草原大火、火山喷发、植物和微生物的合成<sup>[1]</sup>。人为来源主要来自工业生产和加工(如焦炭、黑炭和煤焦油的生产、原油及其衍生物的精炼和分馏等), 以及有机燃料的不完全燃烧等过程。早期的研究发现, 表层沉积物中多环芳烃的主要来源包括陆源的人为排污<sup>[2]</sup>和煤炭输入<sup>[3]</sup>。Laender 等<sup>[4]</sup>研究发现, 石油源的多环芳烃已成为了北极圈生态系统中占主要地位的持久性有机污染物。由于多环芳烃对人和生物体具有毒害性, 并且能够通过食物链在生物体内富集和传递, 极大地威胁着人类健康, 但是这种潜在的危害作用却是一个长期的过程, 已有国内外学者对多环芳烃的暴露水平进行了健康风险评估。对加纳、韩国等地鱼类组织中多环芳烃的研究发现, 通过摄食水产品引起的致癌风险高于美国环保局 (US EPA) 规定的致癌风险限值  $1.0 \times 10^{-6}$ <sup>[5-6]</sup>。于紫玲等<sup>[7]</sup>对海南岛沿岸牡蛎体中多环芳烃的健康风险进行研究, 建议居民对八所港牡蛎和海南其他牡蛎的日均消费量分别不超过 56 g 和 67 g。

湿地是水陆相互作用形成的自然综合体, 能够为动植物提供栖息地, 并在维持区域生态平衡等方面发挥着不可替代的作用。广东海珠湖国家湿地公园(简称海珠湿地)东起珠江后航道, 西至广州大道南, 北起黄埔涌, 南至珠江后航道, 是广州规模最大、保存最完整的生态绿核, 被誉为广州的“绿心”。海珠湿地区域内河网纵横交错, 湿地资源丰富, 既是重要的生物栖息场所, 也是众多环境污染物迁移转化的归宿和蓄积库。相关研究表明, 多环芳烃等有机污染物易于吸附到富含有机质的沉积物中<sup>[8-9]</sup>, 进一步蓄积在鱼体内, 通过食物链传递和放大作用, 对食

用这些鱼类的人群产生更大的危害, 因而研究湿地中多环芳烃的污染特征能够反映该区域的污染水平, 有指示区域环境质量状态和变化趋势的作用。

本研究通过分析测定海珠湿地表层沉积物及鱼类肌肉中多环芳烃的含量, 采用同系物比值法对海珠湿地表层沉积物中多环芳烃的分布特征和来源进行研究, 以便于对海珠湿地多环芳烃的污染状况进行准确定位; 并进一步利用终生致癌风险增量模型 (incremental lifetime cancer risk, ILCR) 估算食用不同鱼类产生的健康风险, 在此基础上为该地居民的部分鱼类日食用量提出建议, 从而为评价湿地污染状况提供所需的背景资料, 具有重要的现实意义。

## 1 材料与方法 (Materials and methods)

### 1.1 样品的采集

表层沉积物的采样点列于图 1。表层沉积物样品采集于 2014 年 10 月 (枯水期) 及 2015 年 4 月 (丰水期), 鱼类样品采集于 2015 年 4 月。用不锈钢抓斗式采泥器采集表层沉积物 (0 ~ 20 cm) 样品, 样品采集后封存于聚乙烯密实袋中, 运回实验室后于  $-20 \text{ }^{\circ}\text{C}$  冷冻保存; 使用围网和刺网等采集鱼类样品, 鱼类包括大头鱼 (*Aristichthys nobilis*)、白鲢 (*Hypophthalmichthys molitrix*)、广东鲂 (*Megalobrama terminalis*)、麦瑞加拉鲮 (*Cirrhina mrigala*)、尼罗罗非鱼 (*Tilapia nilotica*) 和鲤鱼 (*Cyprinus carpio*) 6 种, 每种不少于 3 尾, 测定每尾鱼的体重和体长, 运回实验室后, 于  $-20 \text{ }^{\circ}\text{C}$  冷冻保存。

### 1.2 样品的前处理

沉积物样品冷冻干燥后研磨过 80 目不锈钢筛, 混合均匀。取大约 10 g 沉积物样品, 加入回收率指示物, 用二氯甲烷 (色谱纯, 德国默克) 索氏提取 72 h。将抽提液旋转蒸发至 1 mL 后置换溶剂为正己烷, 过硅胶氧化铝层析柱进行分离纯化, 层析柱 (i.d. 2 cm) 采用干法装柱, 自下而上依次为中性硅胶 2 g、中性氧化铝 2 g、无水硫酸钠 1 g。然后依次用 15 mL

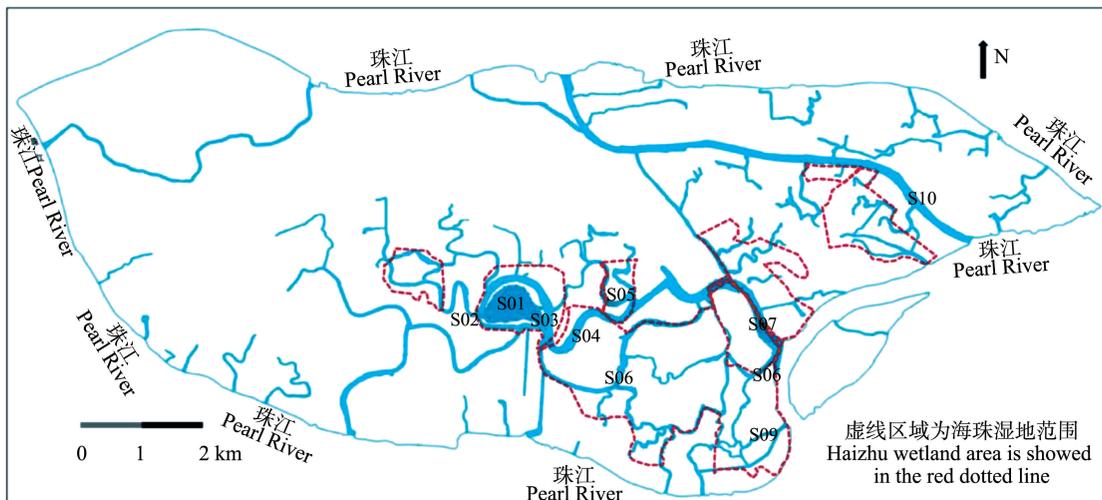


图1 海珠湿地采样点分布

Fig. 1 Sampling sites in the Haizhu Wetland

正己烷(色谱纯,德国默克)、5 mL 体积比为 9/1 的正己烷/二氯甲烷混合溶剂,以及 20 mL 体积比为 4/1 的正己烷/二氯甲烷混合溶剂淋洗层析柱,收集所有组分。将收集到的组分旋转蒸发浓缩后再用柔和的氮气浓缩定容至 0.5 mL,进行气相色谱-质谱分析。

取出鱼类样品,在常温下解冻,清洗干净,取背部肌肉约 25 g,冷冻干燥(Christ Alpha-4, Germany)、研磨、包装后,加入回收率指示物,用二氯甲烷索氏提取 72 h,抽提液旋蒸浓缩并置换溶剂为正己烷,然后用凝胶渗透色谱柱(GPC)去除脂肪大分子,过完 GPC 柱后的样品旋蒸浓缩后过硅胶氧化铝层析柱进行分离纯化(同沉积物),收集到的组分浓缩定容至 0.1 mL,进行气相色谱-质谱分析。

### 1.3 色谱条件

16 种多环芳烃混合标样萘(Nap)、蒽(Acy)、芘(Ace)、芴(Flo)、蒽(Ant)、菲(Phe)、苯并[a]蒽(BaA)、蒽(Chry)、荧蒽(Flu)、芘(Pyr)、苯并[a]芘(BaP)、二苯并[a,h]蒽(DbA)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[g,h,i]芘(BgP)和茚并[1,2,3-cd]芘(InP)在 HP-6890/5975 气相色谱质谱联用(美国 Agilent Technologies Inc.)系统上以选择离子扫描方式对多环芳烃进行测定。色谱柱为 30 m 的 DB-5 石英毛细管色谱柱(30 m×0.32 mm×0.25 μm),质谱采用 70 eV 的电子轰击源(EI)。色谱升温条件如下:进样口温度为 280 °C,柱温 60 °C 开始,以 10 °C·min<sup>-1</sup>的速度升温至 200 °C,然后以 2 °C·min<sup>-1</sup>的速度升温至 214 °C,以 5 °C·min<sup>-1</sup>的速度升温至 255 °C,并保持 2 min,最后以 20 °C·min<sup>-1</sup>的速度升温至 290 °C,保持 12 min。载

气为高纯氮,流速 1 mL·min<sup>-1</sup>,无分流进样。采用全扫模式( $m/z=50 \sim 550$ )进行样品定性,采用选择离子监测模式进行样品定量。

### 1.4 质量保证与质量控制(QA/QC)

实验分析过程中运行 QA/QC 监控整个实验过程,每 10 个样品增加 1 个方法空白和 1 个标样。方法空白中除萘外,其他多环芳烃含量小于样品含量的 5%,所有样品添加回收率指示物标样,5 种氘代回收率指示物萘-d<sub>8</sub>、蒽-d<sub>10</sub>、菲-d<sub>10</sub>、屈-d<sub>12</sub> 和芘-d<sub>12</sub> 的回收率分别为 55% ± 11%、76% ± 15%、88% ± 17%、93% ± 12% 和 109% ± 16%,多环芳烃的定量限范围为 0.15 ~ 3.2 ng·g<sup>-1</sup>。最后结果经空白扣除,但未经回收率校正。由于萘本底值较高,最终结果只分析了 15 种多环芳烃,记为 ΣPAHs。

### 1.5 有机碳(TOC)的测定

取 5 g 冷冻干燥过筛样品,用 10% 的盐酸处理 24 h 以去除无机碳酸盐,然后在 105 °C 隔夜烘干。取大约 10 mg,利用元素分析仪 CHNS(Vario EL III Elementar, Germany),乙酰苯胺 Ace(C<sub>8</sub>H<sub>9</sub>NO)外标法测定 TOC<sup>[10]</sup>。每个样品重复测定 2 次,结果取其平均值。

### 1.6 多环芳烃的来源辨析

目前,运用于多环芳烃源解析的受体模型方法主要分为定量方法和定性(半定量)方法。总的来说,定量方法更加准确,但该方法要求数据量大,并且计算非常复杂;而定性(半定量)方法则简便易行,但是得到的结果相对粗略。由于此处数据量相对较少,笔者采用定性(半定量)方法对海珠湿地表层沉

沉积物中多环芳烃的来源进行了粗略的辨识。

常用多环芳烃污染源解析的定性(半定量)方法包括特征化合物法、轮廓图法和比值法<sup>[11]</sup>。其中特定化合物法只能粗略识别污染源,一般不单独使用;轮廓图法直观明了,但需事先知道特征污染源的轮廓图,应用较少;比值法运用某些多环芳烃的比值高低来识别污染源,该方法简单,应用较为广泛,因此,此处采用多环芳烃的同分异构体比值法。

通常运用于来源解析的多环芳烃异构体包括分子量为 202、228 及 276 的这几组化合物,即荧蒽/202(Flu/202)、苯并[a]蒽/228(BaA/228)和茚并[1,2,3-cd]芘/276(InP/276)。一般来说,Flu/202 的比值小于 0.4 则意味着石油污染来源,大于 0.5 则主要是煤和生物质燃烧来源,介于两者之间意味着液体燃料的燃烧来源<sup>[12]</sup>。BaA/228 的比值小于 0.2 表明石油排放来源,大于 0.35 则主要是燃烧来源,而位于 0.2 与 0.35 之间则可能是石油污染与燃料燃烧的混合来源<sup>[13]</sup>。InP/276 比值小于 0.2 表明主要是石油排放来源,大于 0.5 则主要是煤和生物质燃烧来源,介于两者之间为液体燃料燃烧来源<sup>[13]</sup>。

## 1.7 风险评价方法

### 1.7.1 沉积物质量基准

我国在沉积物质量基准方面的研究起步较晚,沉积物中多环芳烃质量基准研究尚属空白。国外研究者提出了 10 多种沉积物质量基准建立的方法,如背景值法、水质基准法、相平衡分配法和生物效应数据库法等。其中相平衡法是计算沉积物中有机物质量基准的重要方法,该方法充分利用了大量生物毒性毒理实验所得的水质基准值(Water Quality Criteria, WQC),将其包含的上覆水中污染物生物有效性的信息直接引入沉积物质量基准,计算公式<sup>[14]</sup>如下:

$$SQC = K_{oc} \times f_{oc} \times C_{wqc} \quad (1)$$

式中:SQC(Sediment Quality Criteria)为沉积物质量基准值, $K_{oc}$ 为固相有机碳分配系数, $f_{oc}$ 为沉积物中有机碳质量分数, $C_{wqc}$ 为 US EPA 提供的化合物的水质基准值<sup>[15]</sup>。其中  $K_{oc}$  值由如下公式计算获得<sup>[14]</sup>:

$$\lg K_{oc} = 0.00028 + 0.9831 \times \lg K_{ow} \quad (2)$$

### 1.7.2 沉积物质量基准比较法(Sediment Quality Guideline, SQG)

目前,对于沉积物中污染物风险评价尚未建立统一的标准,当今国内学者多采用 Long 等<sup>[16]</sup>提出的沉积物质量基准比较法评价表层沉积物中多环芳

烃的潜在生态风险。该方法将有机污染物的浓度与相应的生物毒性效应区间低值(effect range low, ERL, 生物毒害效应概率 < 10%)或效应区间高值(effect range medium, ERM, 生物毒害效应概率 > 50%)进行比较,低于 ERL 值说明污染物污染程度较低,极少引起生物毒害效应;高于 ERM 值时则被认为受到中度或重度污染,生物毒害效应将频繁发生;如果介于两者之间,则表示生物毒性效应会偶尔发生。

### 1.7.3 毒性当量因子评价法(TEQ 法)

目前,主要采用各多环芳烃单体相对于 BaP 的毒性当量因子(toxicity equivalence factor, TEF)来评估沉积物中多环芳烃等持久性污染物的致癌风险<sup>[17-18]</sup>。以 BaP 为标准参考物,计算公式如下:

$$TEQ_{BaP} = \sum (C_i \times TEF_i) \quad (3)$$

式中: $C_i$ 为某种多环芳烃单体的浓度,TEF<sub>i</sub>为某种多环芳烃单体相对于 BaP 的毒性当量因子。

### 1.7.4 终生致癌风险增量模型(ILCR)

目前,国内外常用某一致癌物对人体产生的终生致癌风险增量模型评价其对人体的健康风险,以 ILCR 作为度量指标<sup>[19-20]</sup>。根据 US EPA 规定的 ILCR 风险范围,ILCR 低于  $10^{-6}$  认为是可以接受的安全范围,ILCR 超过  $10^{-4}$  意味着有较大的潜在风险,而介于两者之间则表示存在一定的潜在风险。ILCR 计算公式如下<sup>[21-22]</sup>:

$$ILCR = \frac{E_D \times ED \times EF \times CSF}{BW \times AT \times 10^6} \quad (4)$$

$$ED = B(A)P_{eq} \times IR \quad (5)$$

$$B(A)P_{eq} = \sum_{i=1}^n C_i \times TEF_i \quad (6)$$

式(1)~(3)中: $E_D$ 为暴露年数(70 a);ED为日摄入量( $ng \cdot g^{-1} \cdot d^{-1}$ );EF为暴露频率( $365 d \cdot a^{-1}$ );CSF为致癌斜率因子( $7.3 kg \cdot d \cdot mg^{-1}$ );BW为成人平均体重(60 kg);AT为人均寿命( $365 d \cdot a^{-1} \times$ 暴露年限)。B(A)P<sub>eq</sub>为多环芳烃单体基于苯并[a]芘的毒性当量浓度之和;IR为成年人每天鱼类等水产品的进食率( $60.3 g \cdot d^{-1}$ )<sup>[23]</sup>;C<sub>i</sub>为第i个多环芳烃单体在鱼体的质量浓度( $ng \cdot g^{-1}$ );TEF<sub>i</sub>为多环芳烃单体i基于BaP的毒性当量因子(无量纲),BaA、BaP、BbF、BkF、InP、DbA和Chry的毒性当量因子依次为0.1、1、0.1、0.01、0.1、1和0.001<sup>[17]</sup>。

### 1.7.5 生物最大日食用量

在考虑生物有效性的前提下,每日允许的最大

鱼摄入量可以用以下公式计算<sup>[24]</sup>:

$$CR_{lim} = \frac{BW \times ARL}{\sum_{m=1}^x C_i \times B(A)P_i \times AR_i \times CSF} \quad (7)$$

式中:CR<sub>lim</sub> 为产生致癌健康风险允许的最大日摄入量(g·d<sup>-1</sup>);ARL 为最大可接受的致癌风险控制水平(10<sup>-5</sup>);B(A)P<sub>i</sub> 为污染物*i*的BaP毒性当量浓度;AR<sub>i</sub> 为污染物*i*在人体肠胃中的吸收速率(%),即其生物有效性,AR<sub>i</sub>=1.9×C<sub>lipid</sub>+34.2<sup>[25]</sup>。

## 2 结果与讨论 (Results and discussion)

### 2.1 多环芳烃的含量分布特征

#### 2.1.1 表层沉积物中多环芳烃的分布特征

海珠湿地表层沉积物中的多环芳烃分布如图2所示,ΣPAHs含量范围为139.4~1134.3 ng·g<sup>-1</sup>,其中,枯水期(10月)沉积物中含量范围为139.4~825.3 ng·g<sup>-1</sup>,丰水期(4月)沉积物中含量范围为204.0~1134.3 ng·g<sup>-1</sup>。除S2和S3这2个站点含量相当外,其他站点沉积物中多环芳烃含量均为丰水期高于枯水期。从站点分布来看,2个季节的沉积物样品中,多环芳烃含量最高值均出现在S8、S9和S10这3个站点。S8(西江涌)和S9(塘涌)2个站点为珠江贯穿海珠湿地的典型河涌水系,河道水面狭窄,水体交换缓慢且周围村庄密集,大量的生活和生产污水直接排入河涌,使多环芳烃在涌内累积造成沉积物中多环芳烃浓度较高;而S10站点(黄埔涌)坐落于适合旅游观光的黄埔古村,人口相对集中,车辆产生的尾气加重了该区域多环芳烃的污染。

图3为海珠湿地表层沉积物中多环芳烃的组成

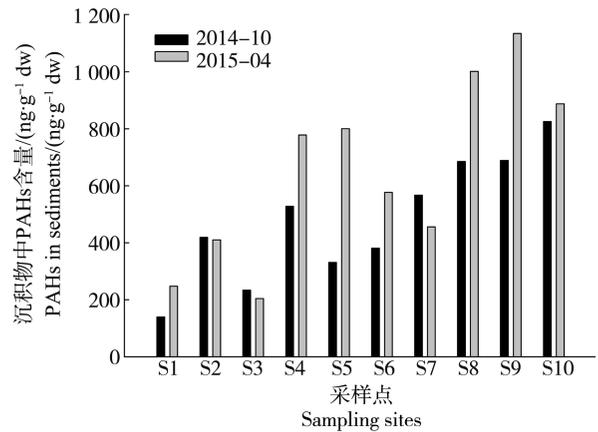


图2 海珠湿地表层沉积物中多环芳烃的空间分布

Fig. 2 Spatial distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surface sediments from the Haizhu Wetland

特征。从组成上来看,所有沉积物中,多环芳烃主要以4环和5环为主,分别占到总量的35.4%~49.1%和20.0%~37.4%,Zhang等<sup>[26]</sup>的研究也发现类似的趋势。分析原因可能主要由于高分子量多环芳烃具有更多排放源<sup>[27]</sup>,其溶解度和蒸气压比低分子量多环芳烃低,而辛醇-水分配系数(K<sub>ow</sub>)、有机碳归一化系数(K<sub>oc</sub>)值都较高,且水相迁移能力较弱,因此,在其迁移分配的过程中,高环多环芳烃更易于富集在沉积物中<sup>[28]</sup>。

表1列出了国内外一些研究区域表层沉积物中多环芳烃的含量,通过对比可以发现海珠湿地表层沉积物中PAHs含量处于中等水平,高于扎龙湿地(31.9~290 ng·g<sup>-1</sup>)<sup>[31]</sup>、米埔(85~373 ng·g<sup>-1</sup>)<sup>[32]</sup>以及长江口(31.8~384 ng·g<sup>-1</sup>)<sup>[33]</sup>沉积物中的含量;与白

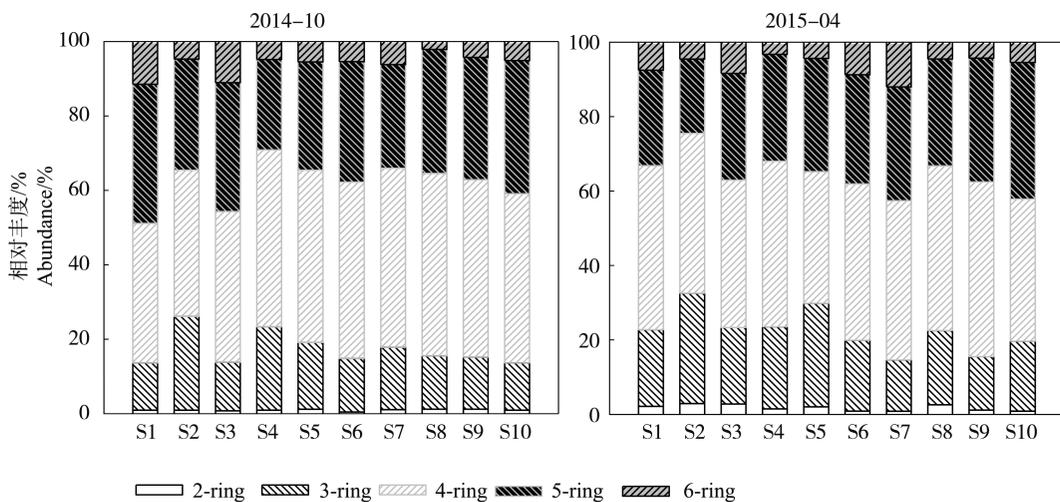


图3 海珠湿地表层沉积物中15种多环芳烃的组成特征

Fig. 3 The composition of 15 PAHs in surface sediment of the Haizhu Wetland

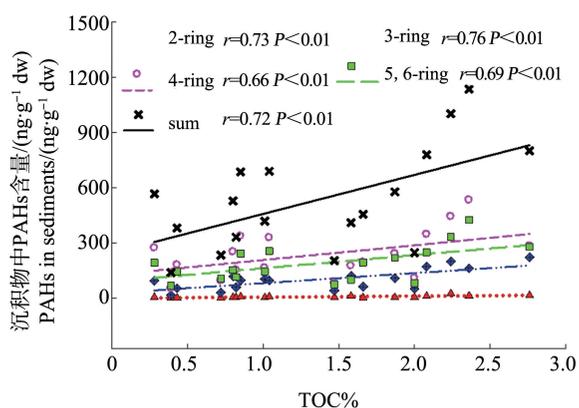


图 4 表层沉积物中总有机碳 (TOC) 与多环芳烃总量之间的相关性 (n=18)

Fig. 4 Correlations of total organic carbon (TOC) with PAHs in the sediments (n=18)

洋淀<sup>[29]</sup>(163 ~ 861 ng·g<sup>-1</sup>)、尼罗河(723 ~ 1 078 ng·g<sup>-1</sup>)<sup>[5]</sup>及珠江口(189 ~ 637 ng·g<sup>-1</sup>)<sup>[30]</sup>表层沉积物中含量相当;远远低于太湖流域(337 ~ 7 398 ng·g<sup>-1</sup>)<sup>[34]</sup>和纽约港(1 900 ~ 7 000 ng·g<sup>-1</sup>)<sup>[36]</sup>表层沉积物中的含量。

已有研究表明,多环芳烃的含量随有机碳含量的增加而直线增加<sup>[10,37-38]</sup>,海珠湿地表层沉积物中有机碳的含量范围为 0.28% ~ 2.76%。总体来看,与多环芳烃含量相类似,丰水期沉积物中有机碳含量高于枯水期。总有机碳含量与多环芳烃含量分布的相似性,表明在海珠湿地范围内,有机碳对多环芳烃的归宿有一定的影响。将研究区域内表层沉积物中有机碳含量和不同环数的多环芳烃含量进行回归分析(图 4),其中 S10 位点样品中的有机碳含量未测,此处样品数只有 18 个,结果表明,不同环数的多环芳烃与 TOC 含量均存在着显著的相关性(P<0.01),

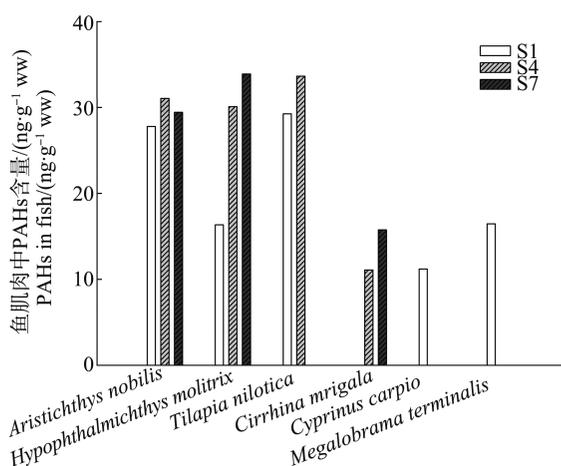


图 5 海珠湿地鱼类肌肉中多环芳烃的空间分布  
Fig. 5 Spatial distribution of PAHs in the muscles of fishes from the Haizhu Wetland

其中 2 环、3 环、4 环、5、6 环以及  $\Sigma$ PAHs 与 TOC 相关系数分别为 0.73、0.76、0.66、0.69 和 0.72,说明有机碳对于多环芳烃在沉积物中的吸附/解吸中,确实起着非常重要的作用。

### 2.1.2 鱼类肌肉中多环芳烃的分布特征

鱼类肌肉中多环芳烃的分布如图 5 所示,其组成特征见图 6。可以发现, $\Sigma$ PAHs 的平均含量范围为 11.1 ~ 33.9 ng·g<sup>-1</sup> ww,其中,大头鱼(27.8 ~ 31.0 ng·g<sup>-1</sup> ww)和罗非鱼(29.3 ~ 33.6 ng·g<sup>-1</sup> ww)含量相当,略高于白鲢(16.3 ~ 33.9 ng·g<sup>-1</sup> ww),其次为广东鲂(16.5 ng·g<sup>-1</sup> ww)和麦鲮(11.1 ~ 15.8 ng·g<sup>-1</sup> ww),鲤鱼肌肉中  $\Sigma$ PAHs 含量最低(11.2 ng·g<sup>-1</sup> ww)。15 种多环芳烃中,芘、菲和蒽的含量最高,占总多环芳烃含量的比重依次为 14.3%、25.8% 和 13.5%。PAHs

表 1 不同研究区域表层沉积物中多环芳烃的污染状况

Table 1 Summary of total PAHs in surface sediments from various estuary and coastal regions

地点 Location	含量/(ng·g <sup>-1</sup> ) Concentration/(ng·g <sup>-1</sup> )	种类 N	参考文献 References
海珠湿地 Haizhu Wetland	139 ~ 1 134	15	本研究 This study
白洋淀 Baiyangdian Lake	163 ~ 861	16	Gao et al. <sup>[29]</sup>
珠江口 Pearl River Estuary	189 ~ 637	18	Luo et al. <sup>[30]</sup>
扎龙湿地 Zhalong Wetland	31.9 ~ 290	15	Liu et al. <sup>[31]</sup>
米埔 Maipo	85 ~ 373	15	Liang et al. <sup>[32]</sup>
长江口 Yangtze Estuary	31.8 ~ 384	16	Mu et al. <sup>[33]</sup>
太湖流域 Taihu Basin	337 ~ 7 398	16	Yu et al. <sup>[34]</sup>
尼罗河 River Nile	723 ~ 1 078	11	Omar et al. <sup>[35]</sup>
纽约港 New York Harbor	1 900 ~ 7 000	22	Yan et al. <sup>[36]</sup>

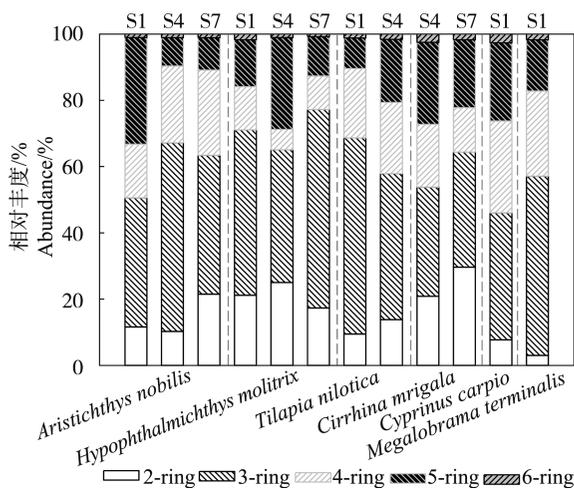


图6 海珠湿地鱼类肌肉中15种多环芳烃的组成特征

Fig. 6 The composition of 15 PAHs in the muscles of fishes from the Haizhu Wetland

主要以3环和4环为主,分别占多环芳烃总量的33.0%~59.9%和10.1%~27.7%。对于不同采样点的同一种鱼而言,其肌肉中 $\Sigma$ PAHs的含量与沉积物中 $\Sigma$ PAHs含量变化趋势基本一致,说明不同鱼类之间多环芳烃的含量差别除了与其饮食习惯和生活习性相关外,还受到其外界环境污染程度的影响。

表2列出了国内外一些区域生物体中多环芳烃的含量水平,结果发现,海珠湿地鱼类肌肉中多环芳烃含量处于中等水平,略高于米埔( $50 \sim 57 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1} \text{ dw}$ )<sup>[32]</sup>和那不勒斯湾( $5.45 \sim 17.9 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ )<sup>[39]</sup>的含量;与小白洋淀( $7.5 \sim 62.4 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ )<sup>[40]</sup>及安徽巢湖( $25.9 \sim 90.6 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ )<sup>[41]</sup>生物体中含量相当;低于太湖流域( $8.3 \sim 325 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ )<sup>[42]</sup>、珠江三角洲( $1.91 \sim 130.7 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ )<sup>[43]</sup>和厦门湾( $49.6 \sim 251 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ )<sup>[44]</sup>生物体中的含量。

## 2.2 表层沉积物中多环芳烃的来源辨析

表层水体沉积物中的多环芳烃一般存在如下输

入途径,如水气交换、航运、大气干湿沉降以及油类的泄漏。只有充分了解不同环境中多环芳烃的主要来源,才能够找到控制和减少其排放的科学方法。因此,笔者根据沉积物中多环芳烃同系物比值做PAHs的来源诊断图,如图7所示。结果表明,Flu/202值在海珠湿地沉积物大部分样品中均介于0.4~0.5之间,只有个别采样点小于0.4或大于0.5,表明了研究区域表层沉积物中多环芳烃的主要来源可能是液体燃料燃烧,同时存在少量石油排放和高温燃烧来源;BaA/228值在所有采样点中都大于0.35,说明煤和生物质等高温燃烧也是海珠湿地表层沉积物中多环芳烃的主要来源之一;计算了海珠湿地表层沉积物中InP/276值,结果表明,除个别站点介于0.2~0.5之间外,大部分都大于0.5,进一步证实该研究区域存在着液体燃料燃烧和生物质燃烧的混合来源。

综合以上几个指标的结果可以看出,海珠湿地表层沉积物中多环芳烃污染主要来源于石油排放和液体燃料、煤和生物质燃烧的共同作用。这与海珠湿地污染源众多且生活污染源与工业污染源混杂的情况相吻合,并且该地区交通网络密集,机动车以及船舶造成的尾气排放、油料泄露等均造成不同程度的多环芳烃污染。

## 2.3 表层沉积物及鱼类中多环芳烃的风险评价

### 2.3.1 表层沉积物中多环芳烃的生态风险评价

本研究根据公式(1),通过相平衡法计算了海珠湿地沉积物中多环芳烃的质量基准值SQC(表3),并对其产生的风险进行了评价。相平衡法SQC值与其他质量基准值存在较大差异,特别是Ace、Flo、Ant、Flu和Pyr都远大于对应的ERM值,而BaA、Chry和BaP则远低于对应的ERL值,造成这种现象的主要原因可能是由于相平衡理论认为沉积物中

表2 不同研究区域鱼肌肉中多环芳烃的污染状况

Table 2 Summary of total PAHs in muscle of fishes from various estuary and coastal regions

地点 Location	含量/( $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1} \text{ ww}$ ) Concentration/( $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1} \text{ ww}$ )	种类数 N	参考文献 References
海珠湿地 Haizhu Wetland	11.1 ~ 33.9	15	本研究 This study
小白洋淀 Small Baiyangdian Lake	7.5 ~ 62.4	16	Xu et al. <sup>[40]</sup>
安徽巢湖 Chaohu Lake	25.9 ~ 90.6	16	Qin et al. <sup>[41]</sup>
珠江三角洲 Pearl River Delta	1.91 ~ 130.7	16	Kong et al. <sup>[43]</sup>
厦门湾 Xiamen Harbor	49.6 ~ 251	16	Li et al. <sup>[44]</sup>
太湖流域 Taihu Basin	8.3 ~ 325	15	Wang et al. <sup>[42]</sup>
米埔 Maipo	50 ~ 57 (dw)	14	Liang et al. <sup>[32]</sup>
那不勒斯湾 The Gulf of Naples, Italy	5.45 ~ 17.9	16	Perugini et al. <sup>[39]</sup>

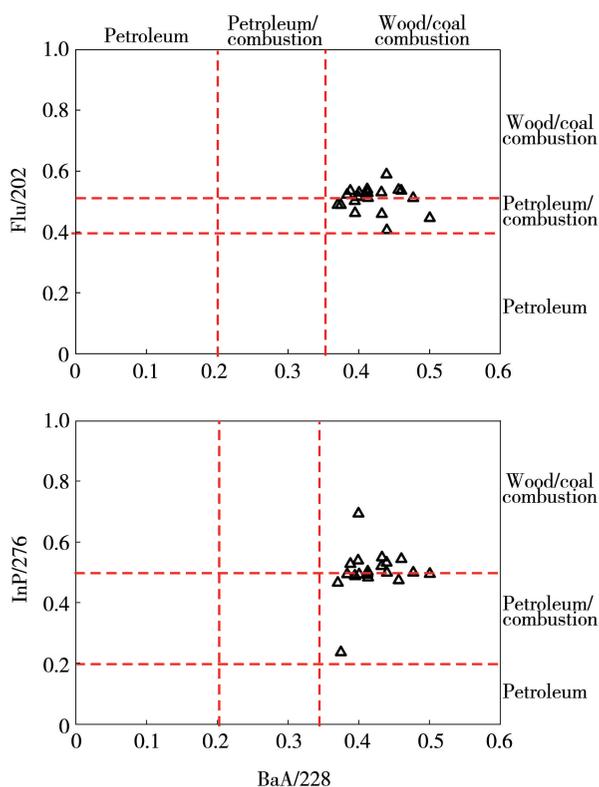


图 7 海珠湿地表层沉积物中多环芳烃的来源诊断图

Fig. 7 Plots of PAHs isomer pair ratios for source identification of sediments from Haizhu Wetland

化学物质的生物有效性与间隙水中该物质的游离浓度有良好相关性,而与总浓度无关;认为底栖生物和上覆水生物对化学物质具有相近的敏感性,却并没有考虑不可逆吸附及底栖生物对沉积物颗粒摄取的影响。根据相平衡方法建立的沉积物质量基准值发现,几乎所有采样站位表层沉积物中 BaA、Chry 和 BaP 这三种化合物均超出了 SQC 值,说明沉积物中这三种有机污染物已具有潜在的生态风险,可能会对底栖生物造成威胁,需要重点关注。

由于沉积物中 PAHs 环境风险评价的基准和方法尚未统一,相平衡分配法模型还存在一些不足,在实际中应用较少。目前在生态风险评价中应用最广泛的是 Long 等<sup>[16]</sup>提出的沉积物质量基准(sediment quality guideline, SQG)比较法。为了便于和其他研究进行比较,本研究同样也采用 SQG 法对海珠湿地表层沉积物中 PAHs 进行了生态风险评价,结果如表 3 所示。总体上来看,海珠湿地表层沉积物中多环芳烃的浓度与风险评价的高值相差很远,严重的生态风险在海珠湿地表层沉积物中不存在,因此,主要考虑是否超过低的风险评价标准。为此定义一低风险指标,即风险系数 RCF,定义为沉积物中多环芳烃的浓度与风险评价的低值的比值,比值大于 1

表 3 海珠湿地表层沉积物中 PAHs 生态风险评价

Table 3 Ecological risk assessment of PAHs compounds in sediments of Haizhu Wetland

化合物 Compounds	SQC /(ng·g <sup>-1</sup> )	ERL /(ng·g <sup>-1</sup> dw)	ERM /(ng·g <sup>-1</sup> dw)	本次研究/(ng·g <sup>-1</sup> dw) This study/(ng·g <sup>-1</sup> dw)	RCF>1 的站位 Stations with RCF>1
Acy	/	44	640	0.40 ~ 2.43(1.28)	
Ace	18 827 ~ 185 576	16	500	0.90 ~ 23.3(6.39)	S8
Flo	39 649 ~ 390 824	19	540	3.17 ~ 39.4(16.0)	S4, S5, S8, S9, S10
Phe	/	240	1 500	11.2 ~ 158.7(75.0)	
Ant	551 259 ~ 5 433 838	85.3	1 100	3.34 ~ 26.6(13.5)	
Flu	23 912 ~ 235 706	600	5 100	3.59 ~ 147.2(57.6)	
Pyr	145 913 ~ 1 438 282	665	2 600	15.0 ~ 183.9(93.6)	
BaA	3.49 ~ 34.4	261	1 600	8.93 ~ 77.9(37.4)	
Chry	1.26 ~ 12.4	384	2 800	12.6 ~ 123.5(59.3)	
BbF	9.44 ~ 98.1	/	/	4.34 ~ 153.4(69.2)	
BaP	32.8 ~ 323.2	430	1 600	8.79 ~ 70.7(33.7)	
InP	56.5 ~ 556.5	/	/	5.08 ~ 43.0(20.1)	
DbA	31.3 ~ 309	63.4	260	0.89 ~ 5.05(1.77)	
Σ PAHs	/	4 022	40 792	139.4 ~ 1 134.3(564.6)	

注:括号内数据为算术平均值,/表示没有这个值。SQC 表示沉积物质量基准,ERL 表示生物毒性效应区间低值,ERM 表示生物毒性效应区间高值,RCF 表示风险系数,RCF=沉积物中多环芳烃的浓度/ERL。

Note: The data in brackets are arithmetic means. / means no value was indicated. SQC represents sediment quality criteria; ERL represents effect range low; ERM represents effect range medium; RCF represents relative contaminated factor, RCF=PAHs concentration/ERL.

则表明该化合物可能对该区的生物造成负面影响。表3列出了海珠湿地表层沉积物中多环芳烃的风险评价价值。

S4、S5、S8、S9和S10等站位表层沉积物中均存在化合物浓度超过了风险评价低值,即其风险系数RCF大于1,并且超标的化合物均为Ace和Flo,这些成分主要指示石油排放来源的多环芳烃<sup>[45]</sup>,说明石油排放来源的PAHs在这几个站位存在着潜在的生物毒性效应,这可能与海珠湿地周边汽车和船舶等交通运输时石油类的排放及泄露有关。上述结果表明,海珠湿地表层沉积物已存在着一定的生物风险,需引起重视。

### 2.3.2 表层沉积物中多环芳烃的致癌风险评价

由于多环芳烃对人和生物体具有毒害性,而沉积物中的多环芳烃会通过再悬浮等作用迁移到水体中,并通过食物链在生物体内富集,因此,对沉积物中多环芳烃进行致癌风险分析显得尤为重要。根据Tsai等<sup>[46]</sup>研究所得的15种多环芳烃的TEF值来计算总的 $\sum_{15} \text{TEQ}_{\text{BaP}}$ 以及7种强致癌多环芳烃(BaA、BaP、BbF、BkF、InP、DBA以及Chry)的 $\sum_7 \text{TEQ}_{\text{BaP}}$ 值,结果表明,所有沉积物中 $\sum_{15} \text{TEQ}_{\text{BaP}}$ 的范围在 $21.1 \sim 140.2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 之间,均值为 $63.3 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ ,其中S8、S9和S10这3个站位的 $\sum_{15} \text{TEQ}_{\text{BaP}}$ 值较高,这3个TEQ值较高的站位均为周围村庄密集、人口相对集中的位置,受人类活动影响较大。其中7种强致癌多环芳烃的 $\sum_7 \text{TEQ}_{\text{BaP}}$ 值范围在 $13.1 \sim 100.2 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 之间,平均值为 $47.3 \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ ,占15种多环芳烃的 $\sum_{15} \text{TEQ}_{\text{BaP}}$ 值的47.0%~82.9%,7种强致癌多环芳烃中占主导地位的为BaP,占多环芳烃总量的30.2%~72.5%。海珠湿地表层沉积物中的多环芳烃已具有一定的潜在致癌风险。

### 2.3.3 生物肌肉中多环芳烃的健康风险评价及日食用量建议

根据公式(4)对海珠湿地不同鱼体中多环芳烃进行致癌风险评价,得出该区域不同鱼类的食用风险范围为 $2.25 \times 10^{-6} \sim 4.23 \times 10^{-6}$ ,平均值为 $2.95 \times 10^{-6}$ ,几种鱼类食用的ILCR值均高于可接受值 $10^{-6}$ 而低于风险值 $10^{-4}$ ,其中BaP导致的健康风险最高。致癌风险最高的鱼类是麦鲛,其次是大头鱼和罗非鱼,白鲢、鲤鱼和广东鲂的风险相对较小。研究结果表明,海珠湿地鱼类食用已成为该区域居民多环芳烃暴露的主要途径之一,已对周边居民造成一定的潜在致癌风险。

根据公式(7)计算得出研究区域6种鱼类肌肉中多环芳烃产生致癌风险允许的最大日摄入量( $\text{CR}_{\text{lim}}$ )。结果表明,对于体重为60 kg的成年人来说,海珠湿地6种鱼类肌肉中多环芳烃的 $\text{CR}_{\text{lim}}$ 值范围为 $124.5 \sim 234.6 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1} \text{ ww}$ ,平均值为 $187.2 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1} \text{ ww}$ 。总体来说,海珠湿地所研究的6种鱼肌肉中多环芳烃产生致癌风险所允许的最大日食用量相对较高,2015年广东地区水产品人均食用量为 $60.3 \text{ g} \cdot \text{d}^{-1}$ ,远远低于这些值,所以仅考虑多环芳烃时,该区域的居民食用这几种鱼类的致癌性健康风险不大,但在日常生活中对其摄入量仍需加以注意。

综上所述:

(1)海珠湿地表层沉积物中多环芳烃总量在世界范围内属于中等水平,从组成上来看,表层沉积物中的多环芳烃主要以4环和5环为主,并且丰水期高于枯水期。

(2)多环芳烃来源分析的结果表明,研究区域表层沉积物中多环芳烃污染主要来源于石油排放和液体燃料、煤和生物质燃烧的共同作用。

(3)沉积物质量基准法对研究区域沉积物进行生态风险评估,结果表明,虽其生态风险较低,但潜在的生态风险仍不能被忽视;利用毒性当量因子(TEF)对表层沉积物中多环芳烃致癌风险评估,发现表层沉积物中的多环芳烃已具有一定的潜在致癌风险,需引起重视;终生致癌风险评价模型的结果显示,海珠湿地鱼体中多环芳烃的总致癌风险略高于US EPA推荐的最大可接受风险水平 $10^{-6}$ ,已存在潜在致癌风险;鱼体中多环芳烃产生致癌风险允许的最大日食用量均高于广东地区水产品人均食用量,该区域居民食用鱼类的致癌性健康风险相对较小。

通讯作者简介:赖子尼(1964—),女,博士,研究员,硕士生导师,研究方向为渔业环境监测与生态风险评估、河流生态受损评估与生态安全预警、增殖养殖环境监测与修复技术等。

### 参考文献(References):

- [1] Suess M J. The environmental load a cycle of polycyclic aromatic hydrocarbons [J]. Environmental Science and Technology, 1976, 6(3): 239-250
- [2] 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(2): 157-165

- [3] Walker S E, Dickhut R M, Chisholm-Brause C, et al. Molecular and isotopic identification of PAH sources in a highly industrialized urban estuary [J]. *Organic Geochemistry*, 2005, 36(4): 619-632
- [4] Laender F D, Hammer J, Hendriks A J, et al. Combining monitoring data and modeling identifies PAHs as emerging contaminants in the Arctic [J]. *Environmental Science and Technology*, 2011, 45(20): 9024-9029
- [5] Bandowe B A M, Bigalke M, Boamah L, et al. Polycyclic aromatic compounds (PAHs and oxygenated PAHs) and trace metals in fish species from Ghana (West Africa): Bioaccumulation and health risk assessment [J]. *Environment International*, 2014, 65: 135-146
- [6] Moon H B, Kim H S, Choi M, et al. Intake and potential health risk of polycyclic aromatic hydrocarbons associated with seafood consumption in Korea from 2005 to 2007 [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2010, 58(1): 214-221
- [7] 于紫玲, 林钦, 孙闰霞, 等. 海南岛沿海牡蛎体中 PAHs 的时空分布及其健康风险评估 [J]. *中国环境科学*, 2015, 35(5): 1570-1578  
Yu Z L, Lin Q, Sun R X, et al. Spatial-temporal distribution and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in oysters along the coast of Hainan Island [J]. *China Environmental Science*, 2015, 35(5): 1570-1578 (in Chinese)
- [8] Ferguson P L, Iden C R, Brownawell B J. Distribution and fate of neutral alkylphenol ethoxylate metabolites in a sewage-impacted urban estuary [J]. *Environmental Science and Technology*, 2001, 35(12): 2428-2435
- [9] John D M, House W A, White G F. Environmental fate of nonylphenol ethoxylates: Differential adsorption of homologs to components of river sediment [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2000, 19(2): 293-300
- [10] Ran Y, Huang W, Rao P S C, et al. The role of condensed organic matter in the nonlinear sorption of hydrophobic organic contaminants by a peat and sediments [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2002, 31(6): 1953-1962
- [11] 王静, 朱利中. 空气中多环芳烃的污染源研究 [J]. *浙江大学学报: 理学版*, 2001, 28(3): 303-308  
Wang J, Zhu L Z. A study of polycyclic aromatic hydrocarbons as pollution sources in air [J]. *Journal of Zhejiang University: Science Edition*, 2001, 28(3): 303-308 (in Chinese)
- [12] Budzinski H, Jones I, Bellocq J, et al. Evaluation of sediment contamination by polycyclic aromatic hydrocarbons in the Gironde estuary [J]. *Marine Chemistry*, 1997, 58(1-2): 85-97
- [13] 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
- [14] United States Environmental Protection Agency (US EPA). Procedures for the derivation of equilibrium partitioning sediment benchmarks (ESBs) for the protection of benthic organisms: PAHs mixtures [R]. Washington DC: Office of Research and Development, 2003
- [15] United States Environmental Protection Agency (US EPA). National Recommended Water Quality Criteria [R]. Washington DC: Office of Water, Office of Science and Technology, 2009
- [16] 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
- [17] Nisbet I C, LaGoy P K. Toxic equivalency factors (TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) [J]. *Regulatory Toxicology and Pharmacology*, 1992, 16(3): 290-300
- [18] Colombo J C, Cappelletti N, Laschi J, et al. Sources, vertical fluxes, and equivalent toxicity of aromatic hydrocarbons in coastal sediments of the Rio de la Plata Estuary, Argentina [J]. *Environmental Science and Technology*, 2006, 40(3): 734-740
- [19] Peng C, Chen W P, Liao X L, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in urban soils of Beijing: Status, sources, distribution and potential risk [J]. *Environmental Pollution*, 2011, 159(3): 802-808
- [20] 郑太辉, 冉勇, 陈来国. 东江流域农村土壤中多环芳烃的分布特征及其健康风险评估 [J]. *生态环境学报*, 2014, 23(4): 657-661  
Zheng T H, Ran Y, Chen L G. Polycyclic aromatic hydrocarbons in the rural soils of Dongjiang River Basin: Distribution and human health risks [J]. *Ecology and Environment Sciences*, 2014, 23(4): 657-661 (in Chinese)
- [21] United States Environmental Protection Agency (US EPA). Guidelines for health risk of chemical mixtures [S]. Washington DC: Office of Water, Office of Science and Technology, 1986
- [22] United States Environmental Protection Agency (US EPA). Guidelines for exposure assessment [R]. Washington DC: Office of Health and Environmental Assessment, 1992
- [23] 中华人民共和国国家统计局. 中国统计年鉴 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2016: 6-21
- [24] Yu Y X, Zhang D P, Zhang X Y. Correct equations for calculating the maximum allowable fish consumption rate

- for human health risk assessment considering the noncarcinogenic effects of multiple contaminants in fish [J]. *Environmental Science and Technology*, 2012, 46: 10481-10482
- [25] Yu Y X, Chen L, Yang D, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in animal-based foods from Shanghai: Bioaccessibility and dietary exposure [J]. *Food Additives and Contaminants: Part A*, 2012, 29(9): 1465-1474
- [26] Zhang J Q, Qu C K, Qi S H, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in atmospheric dustfall from the industrial corridor in Hubei Province, Central China [J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2015, 37(5): 891-903
- [27] Xing X L, Qi S H, Zhang J Q, et al. Spatial distribution and source diagnosis of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils from Chengdu Economic Region, Sichuan Province, western China [J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2011, 110(2): 146-154
- [28] Shi Z, Tao S, Pan B, et al. Contamination of rivers in Tianjin, China by polycyclic aromatic hydrocarbons [J]. *Environmental Pollution*, 2005, 134(1): 97-111
- [29] 高秋生, 焦立新, 杨柳, 等. 白洋淀典型持久性有机污染物污染特征与风险评估[J]. *环境科学*, 2018, 39(4): 1-16
- Gao Q S, Jiao L X, Yang L, et al. Occurrence and ecological risk assessment of typical persistent organic pollutants in Baiyangdian Lake [J]. *Environmental Science*, 2018, 39(4): 1-16 (in Chinese)
- [30] Luo X J, Chen S J, Mai B X, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in suspended particulate matter and sediments from the Pearl River Estuary and adjacent coastal areas, China [J]. *Environmental Pollution*, 2006, 139(1): 9-20
- [31] 刘俊文, 解启来, 王琰, 等. 扎龙湿地表层沉积物多环芳烃的污染特征研究[J]. *环境科学*, 2011, 32(8): 2450-2454
- Liu J W, Xie Q L, Wang Y, et al. Characterization of polycyclic aromatic hydrocarbons contaminations in surface sediments from Zhalong wetland, China [J]. *Environmental Science*, 2011, 32(8): 2450-2454 (in Chinese)
- [32] Liang Y, Tse M F, Young L, et al. Distribution patterns of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the sediments and fish at Mai Po Marshes Nature Reserve, Hong Kong [J]. *Water Research*, 2007, 41(6): 1303-1311
- [33] 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
- Mu Q L, Fang J, Shao J B, et al. Distribution, sources and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surface sediments of Yangtze estuary and Zhejiang coastal areas [J]. *Environmental Science*, 2015, 36(3): 839-846 (in Chinese)
- [34] 于英鹏, 刘敏. 太湖流域水源地多环芳烃分布、溯源与生态风险评估[J]. *水资源保护*, 2017, 33(3): 82-89
- Yu Y P, Liu M. Distribution, pollution sources, and ecological risk assessment of PAHs in water source area of Taihu Basin [J]. *Water Resources Protection*, 2017, 33(3): 82-89 (in Chinese)
- [35] Omar W A M, Mahmoud H M. Risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in River Nile up- and downstream of a densely populated area [J]. *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 2017, 52(2): 166-173
- [36] Yan B, Abrajano T A, Bopp R F, et al. Combined application of  $\delta^{13}\text{C}$  and molecular ratios in sediment cores for PAH source apportionment in the New York/New Jersey Harbor complex [J]. *Organic Geochemistry*, 2006, 37(6): 674-687
- [37] Ran Y, Sun K, Yang Y, et al. Strong sorption of phenanthrene by condensed organic matter in soils and sediments [J]. *Environmental Science and Technology*, 2007, 41(11): 3952-3958
- [38] Yang G P. Polycyclic aromatic hydrocarbons in the sediments of the South China Sea [J]. *Environmental Pollution*, 2000, 108(2): 163-171
- [39] Perugini M, Visciano P, Manera M, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in marine organisms from the Gulf of Naples, Tyrrhenian Sea [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2007, 55(5): 2049-2054
- [40] Xu F L, Wu W J, Wang J J, et al. Residual levels and health risk of polycyclic aromatic hydrocarbons in freshwater fishes from Lake Small Bai-Yang-Dian, Northern China [J]. *Ecological Modelling*, 2011, 222(2): 275-286
- [41] 秦宁, 何伟, 王雁, 等. 巢湖水体和水产品中多环芳烃的含量与健康风险[J]. *环境科学学报*, 2013, 33(1): 230-239
- Qin N, He W, Wang Y, et al. Residues and health risk of polycyclic aromatic hydrocarbons in the water and aquatic products from Lake Chaohu [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, 33(1): 230-239 (in Chinese)
- [42] Wang D Q, Yu Y X, Zhang X Y, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons and organochlorine pesticides in fish from Taihu Lake: Their levels, sources, and biomagnification [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2012, 82: 63-70
- [43] Kong K Y, Cheung K C, Wong C K C, et al. The residual

- dynamic of polycyclic aromatic hydrocarbons and organochlorine pesticides in fishponds of the Pearl River Delta, South China [J]. *Water Research*, 2005, 39(9): 1831-1843
- [44] Li Q, Zhang X, Yan C. Polycyclic aromatic hydrocarbon contamination of recent sediments and marine organisms from Xiamen Bay, China [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2010, 58(3): 711-721
- [45] Grimmer G, Jacob J, Naujack K W. Profile of the polycyclic aromatic compounds from crude oils [J]. *Fresenius Zeitschrift Für Analytische Chemie*, 1983, 314(1): 29-36
- [46] 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 ◆