

· 专论与综述 ·

# 水环境中 PAHs 源解析研究方法比较

郭芬, 张远

(中国环境科学研究院河流与海岸环境科学创新基地, 北京 100012)

**摘要:** 综述了近年来水环境中 PAHs 源解析的方法, 包括化学质量平衡法、因子分析法、稳定碳同位素法和比值法等, 重点评述了方法的理论基础、适用条件、应用状况和存在问题, 并结合我国情况分析水环境中 PAHs 源解析方法的发展趋势。认为因子分析法与多元统计方法结合使用是当前我国 PAHs 源解析的最适用方法, 可以实现对源贡献率的定量分析, 与 GIS 技术结合应用, 能实现 PAHs 源的空间统计分析, 反映污染源影响作用的空间分布规律。

**关键词:** PAHs 污染源; 源解析; 水环境

中图分类号: X502

文献标识码: A

文章编号: 1006-2009(2008)05-0011-06

## Comparison of Methods for Source Apportionment of PAHs in Aquatic Environment

GUO Fen, ZHANG Yuan

(River and Coastal Environmental Research Center, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

**Abstract** The methods used for source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in aquatic environment were introduced including chemical mass balance, factor analysis (FA), stable isotope ratio method and so on. The emphasis on theoretical principle, applicable condition, application and problems of the methods were summarized. The development of PAHs source apportionment method was analyzed with Chinese aquatic environment. The method of FA and multivariate statistical analysis combined with FA was widely used in practical operation, especially by the means of combination with GIS. FA was able to provide a practically effect on PAHs source resolution with statistical analysis of the space pattern of PAHs source.

**Key words** PAHs; Pollutant source; Source apportionment; Aquatic environment

多环芳烃 (Polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 是由两个以上的苯环以线性排列、弯接或簇聚的方式构成的化合物。作为水环境中致癌化学物质中最大的一类, 其来源和归宿日益为人们所关注<sup>[1]</sup>。

污染源解析主要起源于大气污染物研究, 近年来才逐渐发展到水环境研究领域。目前, 水环境中 PAHs 的解析方法主要包括定性和定量两类。定性方法直接利用 PAHs 的化学性质或某些化学参数来辨析污染源, 如比值法等<sup>[2-3]</sup>; 定量方法则利用数学分析手段源解析, 如化学质量平衡法 (CMB)、因子分析法 (FA), 以及与因子分析结合使用的多元统计法、稳定碳同位素法等, 其中

CMB、FA、多元统计法的研究历史较长, 方法相对成熟, 稳定碳同位素法则则是近年提出的一种较有效的解析方法。由于 PAHs 自身性质和各地区环境条件差异的影响, 使这些定量方法在实际应用中表现出不同程度的局限性。因此, 水环境中 PAHs 来源解析是当前污染源解析领域的难点之一。

今对上述研究综合评述, 分析各种方法的优缺点和适用性, 提出当前水环境中 PAHs 研究方法的问题与发展趋势, 从而为准确分析各污染源对水环

收稿日期: 2007-09-17 修订日期: 2008-07-15

基金项目: “九七三”基金资助项目 (2008cb418201)

作者简介: 郭芬 (1983-), 女, 新疆昌吉人, 硕士, 研究方向为流域水环境。

境中 PAHs 的贡献率, 以及识别主要污染源及其空间分布规律提供技术支持。

## 1 PAHs 在水环境中的特征

### 1.1 水环境中 PAHs 的来源

PAHs 广泛分布于水环境中, 尤其在大城市与工业地带附近的河口、内湾及沿岸海域的水体、生物体和沉积物中都有不同程度检出<sup>[4-5]</sup>。生物毒性实验表明大部分 PAHs 具有致癌、致畸和致突变性<sup>[6]</sup>, 在环境中存在时间越长, 遗留毒性越高。水环境中 PAHs 的来源有大气沉降、工业排污、石油、成岩作用及水生植物或微生物的生物合成等。大气中的 PAHs 最初是气态形式, 在部分冷却后形成颗粒物或吸附在颗粒物上, 随其飘动分散在环境各处, 最终沉降在土壤和地表水中; 工业排污包括炼油厂、石化厂等排放的废渣、废水; 来自石油的 PAHs 可能是由于石油泄漏、油轮排放或城镇地面冲刷等原因形成<sup>[7]</sup>。

### 1.2 水体及沉积物中 PAHs 的迁移机理

目前对于 PAHs 进入水环境后的行为及归宿机理尚不完全清楚。PAHs 进入水体后, 一般会在水相、悬浮颗粒相、水生生物相和沉积物相间分配, 而这种多介面的转化过程极为复杂, 且受多种环境条件的制约和影响。大多数 PAHs 在水中溶解度很小, 且随着苯环数量的增加, 水溶性降低, 脂溶性增强<sup>[8]</sup>, 使其生物可利用性受到限制。PAHs 又具有较高的亲脂性和辛醇-水分配系数, 易被水体中的颗粒物吸附, 随其下沉进入沉积物中, 使水体中 PAHs 浓度下降, 在沉积物中大量积累。进入沉积物的 PAHs 不再受阳光照射, 且深水含氧量较低, 很难发生光解, 较为稳定。因此, 水环境中的 PAHs 源解析多针对沉积物介质研究。

PAHs 在沉积物中的浓度与沉积物类型、污染源远近、水体迁移能力等因素有关。一般砂性沉积物中 PAHs 浓度较低, 因为泥性沉积物有机质含量高且吸附能力强。位于大城市与工业地带边缘的河口、内湾及沿岸海域的 PAHs 浓度是开阔海洋沉积物中的几倍到几十倍, 而河口沉积物中的 PAHs 浓度又明显高于河道沉积物<sup>[9-10]</sup>, 原因是河口沉积物不仅接纳了来自河流径流的污染物, 而且汇集了河口及近岸污水、船舶等多种来源的污染物。沉积物与 PAHs 的相互作用力大小是决定 PAHs 稳定程度、迁移速率及生物有效性的重要因素。

## 2 水环境中 PAHs 源解析方法与模型

### 2.1 化学质量平衡法 (CMB)

CMB 基于质量守恒原理, 其应用要求具备 4 个假设条件: ①各源类所排放污染物的化学组成有明显差别, 可以识别对环境受体中污染物有明显贡献的污染源类; ②各源类所排放污染物的化学组成相对稳定; ③各源类所排放的化学组成之间没有相互作用, 在传输过程中的变化可以忽略, 并且所有的污染源成分谱线性无关; ④污染源数量低于或等于化学组分的种类。根据上述假设, 受体中的污染物总量就是各污染源对受体贡献量的线性加和, 其基本方程为:

$$C_{(n \times l)} = A_{(n \times m)} \times S_{(m \times l)} + E_{(n \times l)}$$

式中,  $C_{(n \times l)}$  是  $n \times l$  受体成分谱浓度向量;  $A_{(n \times m)}$  是  $n \times m$  源成分谱浓度矩阵;  $S_{(m \times l)}$  是  $m \times l$  源贡献因子向量;  $E_{(n \times l)}$  是  $n \times l$  误差向量。污染源数量  $m$  不能大于成分谱中化学物质的数量  $n$ , 通过最小二乘法可以得到  $S$  的解。

该模型的解析可靠度通过以下几个统计参数标定<sup>[11]</sup>: ①方差平均值, 为受体地区样本各化学组分计算质量变化值与测量质量变化值的平均比值, 越接近于 1, 说明解析出的源越可靠; ②方差值, 为受体地区样本各化学组分计算质量值与测量质量值的差值平方和, 越接近于 0 说明解析出的源越可靠; ③质量平衡值, 为受体地区样本化学组分计算总质量与测量总质量的比值, 越接近于 1, 说明解析出的源越可靠; ④统计值, 为源贡献计算值与其标准偏差的比值,  $< 2.0$  说明源贡献计算值处于或低于检测限。

CMB 模型应用于大气颗粒物源解析已有 30 多年的历史<sup>[12-13]</sup>, 方法较成熟。许多类型的 PAHs 易降解, 易与大气中的  $\text{NO}_x$ 、 $\text{O}_3$ 、 $\text{HNO}_3$ 、 $\text{OH}^-$  等物质发生化学反应, 为了使具有反应活性的 PAHs 能适用于 CMB 模型, 先后有人提出了不同的改进方法。Friedlander<sup>[14]</sup> 提出了城市大气环境连续搅动箱式反应模型 (CSTR), 假设有机物如 PAHs 均以同一速率降解, 降解因子定义为受体浓度与经颗粒物质量标准化后的源浓度的比值; Pistikopoulos 等<sup>[15]</sup> 提出用校正因子定量计算 PAHs 在迁移过程中的化学变化, 该校正因子考虑了 PAHs 所有可能的变化, 包括迁移时间的测定, 具有扩散模型参数的特征; Cheng 等<sup>[16]</sup> 认为每种 PAHs 示踪物有其不同的反应常数, 因而有不同的反应时间, 并认为每种源

以不同的边界和体积排放于不同的反应器中, 在各自的反应器中有不同的停留时间和老化时间, 进而提出用降解反应因子来校正 CMB 模型。

CMB 模型在水环境中 PAHs 源解析的应用相对较少, 主要集中于沉积物中 PAHs 的源解析。Kelley 等<sup>[17]</sup>将 CMB 模型应用于密西西比河流域 Pepin 湖的沉积物解析, 结果表明, 几乎所有近期的沉积物都来源于 Minnesota 河, 且沉积物负荷随着人类活动影响的加剧而上升, 认为该模型可用于沉积物的来源解析, 与同位素示踪法结合使用可识别沉积物源随时间的变化。Gu 等<sup>[18]</sup>用 <sup>210</sup>Pb 和 <sup>137</sup>Cs 标记, 对 1998 年在 Black River 采集的 5 个沉积物样本中的 PAHs 运用 CMB 法源解析, 得到了该地区 PAHs 浓度随时间的变化趋势。黄国兰等<sup>[19]</sup>将 CMB 模型应用于水体污染源解析, 认为利用其预测简单水体内污染物的来源和各污染源的贡献度大体可行, 并推测在初始水质的静态水体中, 污染物的扩散仍为距离函数, 将降解产物的浓度 - 距离关系一并纳入污染源成分谱, 将成分谱变化模型扩展后结合 CMB 法, 可以较为准确地预测各污染源的贡献度。

当前, CMB 模型应用于水环境中 PAHs 源解析的局限性主要体现在: ①缺少单个排放源较完整可靠的成分谱; ②PAHs 易发生化学反应生成其他污染物, 对源排放组分的受体浓度会产生较大的误差; ③影响 PAHs 降解的因素较多, 难以在模型中校正; ④不能得到每一个污染源对受体中每一种 PAHs 的贡献率, 只能得到每一个污染源对受体中 PAHs 总体的综合贡献率。

## 2.2 因子分析法 (FA)

FA 通过研究多个指标相关矩阵的内部依赖关系, 寻找控制所有变量的少数公因子, 将每个指标变量表示成公因子的线性组合, 以再现原始变量与因子之间的相关关系。其应用要求具备 5 个假设条件: ①PAHs 的源成分谱从源到受体这段距离内没有发生显著变化; ②单个 PAHs 通量的变化与浓度成比例; ③在给定时段内 PAHs 的总通量是所有已知源 PAHs 通量的总和; ④源成分谱和贡献率线性无关; ⑤所有采样点均受到几个相同源的影响<sup>[20]</sup>。

样品中每个元素的浓度可以表示成两个因子乘积的形式, 即在  $N$  个样品  $M$  种元素中, 有:

$$C_{ij} = \sum_{k=1}^p a_{ik} F_{kj} \quad (i = 1, 2, \dots, M; j = 1, 2, \dots, N)$$

式中,  $C_{ij}$  是第  $j$  个样品第  $i$  种元素的测量浓度;  $a_{ik}$  是第  $k$  种源的成分谱;  $F_{kj}$  是第  $k$  种源对第  $j$  个样品的贡献;  $p$  是对受体有贡献的源的总数。其矩阵表达式为:  $C = A \times F$ , 式中,  $C$  是  $M \times N$  阶资料矩阵;  $A$  是  $M \times P$  阶源成分谱矩阵;  $F$  是  $P \times N$  阶相对贡献矩阵。FA 的目的就是根据所测数据  $C_{ij}$ , 总结出最少数目的公因子, 计算出模型中各个因子的载荷。

解析结果的诊断手段有决定系数 (coefficient of determination, COD)、方差累计贡献 (cumulative percent variance) 和 Exner 方程。解析结果中包含的因子数量越多, 单个 PAH 的 COD 值越接近于 1, 方差累计贡献越接近于 100%, Exner 方程值越小, 结果就越可靠。一般选取方差累计贡献大于 83% 的因子组合即可。

对矩阵方程运用不同的处理方法, 会产生不同的因子分析方法, 目前主要有 2 种, 即主因子分析法 (PEA) 和目标试验因子分析法 (TTFA)。PEA 又称为主成分分析法, 与 FA 的主要区别在于 PEA 提取的因子个数等于变量个数, 要以所有因子对所有变量的总方差作为说明, 而 FA 提取的公因子个数小于变量个数, 要以公因子对同一变量的变量总方差作为说明。张彩香等<sup>[21]</sup>运用 PEA 法对黄柏河下游平湖水域综合评价, 结果表明, 其污染因子主要有 5 大类, 其中营养物污染最为严重, 其次是油及有毒物质污染, 通过分析可以整体认识和评价黄柏河下游的污染性质, 从而有针对性地提出改善水污染现状的生态环境修复方案。TTFA 最先应用于化学分析, 在 20 世纪 80 年代初由 Hopke 等<sup>[22]</sup>引入环境科学领域, 既具有 FA 对某些源有较高探测能力的特点, 又与 CMB 法具有本质相似性, 当排放源的化学成分谱不易测量, 或对源了解较少时, 可以用 TTFA 法进行源贡献定量求解。

FA 法作为一种多元统计方法, 特点是通过减少变量数目, 使问题得以简化, 但不能得到各类排放源的绝对贡献值, 还需要再进行回归分析, 所以该方法需要与其他方法结合使用。沈琼等<sup>[23]</sup>在对北京市通州区河流中的 PAHs 源解析时, 运用 PEA 和多元线性回归分析半定量研究了悬浮物中几种主要燃料燃烧源 PAHs 的贡献率, 结果表明, 燃煤源、焦炉源、柴油源和汽油燃烧源 PAHs 贡献率均

较高。罗孝俊等<sup>[24]</sup>在对珠江三角洲地区水体表层沉积物中的 PAHs 源解析时,综合运用 PFA 和多元回归分析方法,发现珠江三角洲水体沉积物中的 PAHs 主要来源于石油排放、煤和木柴等低温燃烧排放、机动车尾气排放和生物成因,其相对贡献率分别为 36%、27%、25% 和 12%。林秀梅等<sup>[25]</sup>应用聚类分析、PFA、多元线性回归等多种统计方法分析渤海表层沉积物中 PAHs 的来源,结果表明,其来源呈现石油源和不完全燃烧源的混合特征,后者的贡献更为显著,其中辽东锦州湾近岸的大部分站点以低环 PAHs 占优势,体现石油污染源的影响,其他海区的多数站点以高环 PAHs 为主,说明化石燃料的不完全燃烧是其来源。

FA 法使用简单,不需要研究地区优先源的监测数据,在缺乏污染源 PAHs 成分谱的情况下仍可解析,并可广泛使用统计软件处理数据。其不足之处在于需要输入大量数据,对受体样品数量要求较高,一般超过 50 个,而且不能得到各类源的绝对贡献值,还需要再进行回归分析。

### 2.3 稳定碳同位素法

稳定碳同位素法指测定单个有机化合物的  $\delta^{13}\text{C}$ 。PAHs 属于半挥发性有机物,在迁移过程中易受温度、光照及其他氧化物的影响,使其某些化学组成发生含量降解等变化,导致传统的 CMB 模型不能满足来源解析的精度要求,而运用稳定碳同位素法解析 PAHs 的来源有时可行。

烃类单分子稳定碳同位素组成直接反映了其来源。Okuda 等<sup>[26]</sup>从汽油和柴油尾气中提取出的 PAHs 富集重碳同位素的  $\delta^{13}\text{C}$  值为  $-1.29\% \sim -2.66\%$ ,而木材燃烧烟中 PAHs 相对富集轻碳同位素的  $\delta^{13}\text{C}$  值为  $-2.68\% \sim -3.16\%$ 。据 M c r a e 等<sup>[27]</sup>研究,流化床燃煤后,得到的 PAHs 碳同位素组成变化范围较小 ( $\delta^{13}\text{C}$  值为  $-2.5\% \sim -3.1\%$ ),随着分子质量增加,PAHs 富集轻碳同位素。M a l l e y 等<sup>[28]</sup>利用 St John 港沉积物中单体 PAH 同位素特征分析了其污染物来源,发现木材燃烧和车辆尾气的同位素  $\delta^{13}\text{C}$  组成接近,但比曲轴油箱漏油更为富集  $\delta^{13}\text{C}$ ,同时汽车烟灰的芘比木材燃烧灰炆更为富集  $\delta^{13}\text{C}$ ;曲轴油箱漏油样品中甲基菲比菲富集  $\delta^{13}\text{C}$ ,芘比菲富集  $\delta^{13}\text{C}$ ,而燃烧源则相反;车辆尾气除了汽油燃烧源外,还包括部分曲轴油箱油的燃烧来源。上述研究表明,PAHs 单体化合物的稳定碳同位素组成分析是示踪污染源

的一种有效手段。

Fabbri 等<sup>[29]</sup>运用稳定碳同位素对 Adriatic 沿海环礁湖沉积物中的 PAHs 进行了源解析,沉积物中 PAHs 的  $\delta^{13}\text{C}$  值较低 ( $-6.2\% \sim -3.6\%$ ),表明生物成因甲烷是当地主要的污染源,碳同位素的分布也表明环礁湖中的 PAHs 来源于直接排放进入水体而非大气沉降,并认为 PAHs 的稳定碳同位素分布特征有利于识别生物成因甲烷造成的污染。Yan 等<sup>[30]</sup>将稳定碳同位素与比值法结合使用,对纽约/新泽西海港沉积物中的 PAHs 进行源解析,结果表明,在 20 世纪最后 30 年中,来源于燃烧的 PAHs 是该海港大部分地区的主要污染物。

沉积物中烃类污染物的来源如油源、煤源、生物输入源及燃烧源等,可以通过不同单体烃稳定碳同位素特征相互区别,单体烃稳定碳同位素还可以用来初步分析不同污染源的贡献率。自然界的污染源非常复杂,污染物的稳定碳同位素特征是所有污染源的总表征,因而在分析污染源贡献率时存在相当大的难度。随着研究的深入,利用单体烃的稳定碳同位素特征来确定污染物的类型和不同污染源的贡献率将是今后研究的热点之一。此外,相对低分子质量化合物而言,高分子质量物质的稳定碳同位素较为稳定,在运用稳定碳同位素技术识别污染物来源时,应尽可能使用高碳数化合物的稳定同位素比值作为解析指标,存在生物作用时更需慎重,建议经分馏测试试验后,根据解析结果的精度要求再对分馏影响作相应评估。

### 2.4 比值法

对于不同的污染源,其特征 PAHs 的比值不同,根据该特点可以采用比值法识别其来源。目前,尚未形成一套固定的指标参数体系,主要根据 PAHs 的轻重组分比例、特定组成之间的比例等判别来源,如利用菲/蒽、芘/蒽、芘/苯并[a]芘、苯并[a]蒽/蒽 等异构体比例指数作为分子标志物来判别 PAHs 的来源。Sicre 等<sup>[31]</sup>提出当芘/蒽的质量比  $> 1$  时,PAHs 主要来自化石燃料燃烧,而比值  $< 1$  则指示来自石油类产品的输入。Budzinski 等<sup>[32]</sup>研究表明,沉积物中菲/蒽的质量比  $> 10$  指示 PAHs 以石油来源为主,比值  $< 10$  则指示以燃烧来源为主。Yunker 等<sup>[33]</sup>认为,蒽/178 比值  $< 0.1$  指示石油来源,  $> 0.1$  则是燃烧来源;芘/202 比值  $< 0.4$  指示石油来源,  $0.4 \sim 0.5$  为石油燃烧来源,  $> 0.5$  为煤燃烧来源;苯并[a]蒽/228 比值  $<$

0.2 为石油来源, 0.2~0.35 为石油燃烧来源, >0.5 为煤燃烧来源; 茚并 [1, 2, 3-cd] 芘 /276 比值 <0.2 为石油来源, 0.2~0.5 为石油燃烧来源, >0.5 为煤和草木燃烧来源。许多研究表明, 比值

法是一种有效判断 PAHs 来源的方法, 但该方法只能对污染源的类型初步判断, 一般与其他方法结合应用, 而不单独使用。

水环境中 PAHs 源解析方法特点比较见表 1。

表 1 水环境中 PAHs 源解析方法特点比较

方法	基本原理	数据要求	适用范围	优点	局限性
CM B	质量守恒	排放源成分谱, 受体地区样本数据	源数据完整地区, 源贡献较为明确	分析源数目多的体系很成功, 能精确计算源的贡献率	缺少源较完整的 PAHs 成分谱, PAHs 易发生化学反应, 影响其降解的因素较多
FA	数据降维	受体样品数据, 要求样品数 > 50	源的简单分析	对 PAHs 成分谱缺乏的污染源仍可解析, 可使用统计软件处理数据, 与多元回归分析相结合可分析源贡献率	需要受体样品数过多
稳定碳同位素法	烃类单分子稳定碳同位素组成特点	单个有机化合物的 $\delta^{13}C$ 值	源的类型不够复杂, 稳定同位素组成特点突出	精度高, 计算简单	实验仪器和条件要求高
比值法	特征化合物的比值	特征污染物含量	具有典型的比值指标	方法简单	只能定性研究

### 3 结论与展望

上述源解析方法都是假设源的排放组成在环境中相对稳定, 组成结构不发生变化, 然而从源排放出的化学组成在迁移过程中会发生变化。为了解决水环境中 PAHs 源解析中的化学组成变化问题, 目前的研究开始将正向模拟与逆向解析技术相结合, 通过正向模拟分析源化学组成的变化规律, 然后将变化关系带入源解析模型, 使解析更加准确。另一种方法是逸度模型的应用, 利用该模型中各种动力学和平衡参数, 可以比较各种迁移、转化和降解过程的速率, 确定污染物在环境系统的主要变化过程, 并合理解释模型的输出, 但该方法目前应用较少, 随着研究的深入会在未来得到较多应用。

GIS 技术在污染源解析中的应用也是近年来的发展方向。上述源解析方法只能定性识别或定量解析 PAHs 的来源种类及贡献率大小, 无法比较 PAHs 污染源分布的空间特征。GIS 技术可以将数据与地图相关联, 建立拓扑关系, 进行空间分析, 辅助决策和管理。将源解析方法与 GIS 空间分析技术相结合, 可使源的解析结果空间化, 反映出污染源在空间的变化规律。周丰等<sup>[34]</sup>对香港东部近岸水污染源解析时, 运用 GIS 技术得到的水体污染源格局与多元统计方法结果一致。随着空间统计学技术的发展, 基于 GIS 的 PAHs 源解析技术将有较大的发展前景。

我国在水环境中 PAHs 源解析方面的研究还比较薄弱。由于缺乏各类污染源完整的成分谱, 加之地区条件差异较大, CM B 在我国的实际应用中受到较大限制。稳定碳同位素法由于仪器设备造价较高, 在应用上也受到不同程度的限制。虽然 FA 及相关方法需要大量数据, 但由于不受源数据和设备等条件限制, 相对简单易行, 是我国源解析的推荐方法。此外, 集中于水环境沉积物的 PAHs 源解析只能反映过去某一时段对受体有贡献的污染源, 而对环境决策有重要影响的是当前对受体有贡献的污染源, 因而更为简单和容易实施的实时源解析方法还有待于进一步研究。

#### [参考文献]

- [1] MENZE C A, FOTOCKI B B, SANTODONATO J. Ambient concentrations and exposure to carcinogenic PAHs in the environment [J]. Environ Sci & Technol, 1992, 26 (7): 1278 - 1284.
- [2] HARRISON R M, SMITH D J. Source apportionment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons collected from an urban location in Birmingham UK [J]. Environ Sci & Technol, 1996, 30 (5): 825 - 832.
- [3] NELSEN T. Traffic contribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in the center of a large city [J]. Atmos Environ, 1996, 30 (20): 3481 - 3490.
- [4] KAYAL S I, CONNELL D W. Occurrence and distribution of PAHs in surface sediments and water from the Brisbane River

- Estuary, Australia [ J ]. *Estuar Coast Shelf S* 1989 ( 29 ): 473 - 487.
- [ 5 ] BROWN C, MAHER W. The occurrence, distribution and sources of PAHs in the sediments of the Georges River Estuary, Australia [ J ]. *Org Geochem*, 1992, 18(5): 657- 681.
- [ 6 ] MAKINS D C, MCCAIN B B, LANDAHL J T, et al Neoplastic and other diseases in fish in relation to toxic chemicals: an overview [ J ]. *Aquat Toxicol* 1988, 11( 1- 2 ): 43- 67.
- [ 7 ] ZAKARIA M P, OKUDA T, TAKADA H. Polycyclic aromatic hydrocarbon (PAHs) and hopanes in Stranded Tar-balls on the coasts of Peninsular Malaysia: applications of biomarkers for identifying sources of oil pollution [ J ]. *Mar Pollut Bull* 2001, 42 ( 12 ): 1357- 1366.
- [ 8 ] CERNIGLIA C E. Biodegradation of polycyclic aromatic hydrocarbon: a review [ J ]. *Biodegradation*, 1992(3): 351- 368.
- [ 9 ] 刘敏, 侯立军, 邹惠仙, 等. 长江口潮流表层沉积物中多环芳烃分布特征 [ J ]. *中国环境科学*, 2001, 21(4): 343- 346.
- [ 10 ] 许士奋, 蒋新, 王连声, 等. 长江和辽河沉积物中的多环芳烃类污染物 [ J ]. *中国环境科学*, 2000, 20(2): 128- 131.
- [ 11 ] LIA, JANG J K, SCHEFF P A. Application of EPA CM B8 2 model for source apportionment of sediment PAHs in Lake Calumet Chicago [ J ]. *Environ Sci & Technol* 2003, 37( 13 ): 2958 - 2965.
- [ 12 ] GUPTA A K, KARAR K, SRIVASTAVA A. Chemical mass balance source apportionment of PM<sub>10</sub> and TSP in residential and industrial sites of an urban region of Kolkata, India [ J ]. *J Haz and Mater* 2007, 142( 1- 2 ): 279- 287.
- [ 13 ] WATSON J G, CHOW J C, FUJITA E M. Review of volatile organic compound source apportionment by chemical mass balance [ J ]. *Atmos Environ* 2001 ( 35 ): 1567- 1584.
- [ 14 ] 杨旭曙, 王正萍, 宋艳涛. 大气颗粒物中多环芳烃的源解析方法 [ J ]. *环境监测管理与技术*, 2002, 14(6): 10- 14.
- [ 15 ] PISTIKOROULOS P, MASCLLET P, MOUNIER G. A receptor model adapted to reactive species polycyclic aromatic hydrocarbons: Evaluation of source contributions in an open urban site I: particle compounds [ J ]. *Atmos Environ* 1990, 24( 5 ): 1189 - 1197.
- [ 16 ] LI C K, KAMENS R M. The use of polycyclic aromatic hydrocarbons as source signatures in receptor modeling [ J ]. *Atmos Environ*, 1993, 27(4): 523- 532.
- [ 17 ] KELLEY D W, NATER E A. Source apportionment of lake bed sediments to watersheds in an Upper Mississippi basin using a chemical mass balance method [ J ]. *Catena*, 2000, 41( 4 ): 277 - 292.
- [ 18 ] GU S H, ANDREW C K, ERK R, et al Source apportionment of PAHs in dated sediments from the Black River Ohio [ J ]. *Water Res* 2003( 37 ): 2149- 2161.
- [ 19 ] 黄国兰, 萧航, 陈春江, 等. 化学质量平衡法在水体污染物源解析中的应用 [ J ]. *环境科学*, 1999(6): 14- 17.
- [ 20 ] BZDUSEK P A, CHRISTENSEN E R, LIA. Source apportionment of sediment PAHs in Lake Calumet Chicago: Application of factor analysis with nonnegative constraints [ J ]. *Environ Sci & Technol* 2004, 38(1): 97- 103.
- [ 21 ] 张彩香, 王焰新, 张兆年. 因子分析法在黄柏河下游水质评价中的应用 [ J ]. *水资源保护*, 2005, 21(4): 11- 14.
- [ 22 ] HWANG C, SEVERN K G, HOPKE P K. A comparison of R- and Q-models in target transformation factor analysis for resolving environmental data [ J ]. *Atmos Environ*, 1984, 18(2): 345 - 352.
- [ 23 ] 沈琼, 王开颜, 张巍, 等. 北京市通州区河流 PAHs 的源解析 [ J ]. *农业环境科学学报*, 2007, 26( 3 ): 904- 909.
- [ 24 ] 罗孝俊, 陈社军, 麦碧娴, 等. 珠江三角洲地区水体表层沉积物中多环芳烃的来源、迁移及生态风险评价 [ J ]. *生态毒理学报*, 2006, 1(1): 17- 24.
- [ 25 ] 林秀梅, 陈江麟, 刘文新, 等. 多元统计在渤海表层沉积物中 PAHs 源解析上的应用 [ J ]. *海洋环境科学*, 2007, 26( 2 ): 107- 111.
- [ 26 ] OKUDA T, KUMATA H, NARAOKA H, et al Origin of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Chinese cities solved by compound-specific stable carbon isotopic analyses [ J ]. *Org Geochem*, 2002, 33( 12 ): 1737- 1745.
- [ 27 ] MCRAE C, LOVE C D, MURRAY I P, et al Potential of gas chromatography isotope ratio mass spectrometry to source polycyclic aromatic hydrocarbon emissions [ J ]. *Analytical Communications* 1996, 33( 10 ): 331- 333.
- [ 28 ] MALLEY V P, TEOFLO A A. Stable carbon isotopic apportionment of individual polycyclic aromatic hydrocarbons in St. John's Harbor Newfoundland [ J ]. *Environ Sci & Technol* 1996( 30 ): 634- 639.
- [ 29 ] DANIELE F, WANO V, SUN C G, et al Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in a coastal lagoon by molecular and isotopic characterization [ J ]. *Mar Chem*, 2003( 84 ): 123- 135.
- [ 30 ] YAN B Z, TEOFLO A A, RICHARD F B, et al Combined application of  $\delta^{13}C$  and molecular ratios in sediment cores for PAH source apportionment in the New York/New Jersey harbor complex [ J ]. *Org Geochem*, 2006(37): 674- 687.
- [ 31 ] SEREM A, MARTY J C, SALOT A, et al Aliphatic and aromatic hydrocarbons in the Mediterranean aerosol [ J ]. *Int J Environ Anal Chem*, 1987, 29(1): 73- 94.
- [ 32 ] BUDZINSKI H, JONES I BELOUQ J, et al. Evaluation of sediment contamination by polycyclic aromatic hydrocarbons in the Gironde estuary [ J ]. *Mar Chem*, 1997( 58 ): 85- 97.
- [ 33 ] 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 ]. *Org Geochem*, 2002( 3 ): 489- 515.
- [ 34 ] ZHOU F, HUANG G H, GUO H C, et al Spatio-temporal patterns and source apportionment of coastal water pollution in eastern Hong Kong [ J ]. *Water Res* 2007(41): 3429- 3439.

本栏目责任编辑 姚朝英