

Distribution characteristics and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in sewage sludge in Northeast China

Cheng Liu¹ Li Wang^{1*} Xinyi Zhang¹ Chao Liu¹ Lijia Jiao²

1. School of Chemical & Environmental Engineering, Anyang Institute of Technology, Anyang, Henan, 455000, China

2. Henan Beifang Environmental Protection Technology Co., Ltd., Anyang, Henan, 455000, China

Abstract

Fifteen US EPA priority polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in sewage sludge from Changchun, Liaoyang, Harbin and Dalian in Northeast China, were determined by Ultrasonic-solid phase extraction and GC-MS method, and distribution, sources and potential risks of PAHs were analyzed. The results showed that the concentrations of Σ PAHs were detected in the sewage sludge in Northeast China ranged from 0.54 to 1.30 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, which was lower than those of the most of well developed areas. Acp was not detected in sewage sludge of Liaoyang and Dalian. PAHs in the sewage sludge were dominated by 3-5 rings PAHs and mainly stemmed from biomass burning and domestic coal combustion, with some characteristics of vehicle emission. The risk assessment showed that the toxicity equivalent concentration of PAHs ($\text{TEQ}_{\text{BaP15}}$) was in the range of 0.09-0.33 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, in which 99% of the total TEQ_{BaP} originated from 6 carcinogenic PAHs. The $\text{TEQ}_{\text{BaP10}}$ was 0.05-0.22 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, indicating higher carcinogenicity and ecological risk.

Keywords

sewage sludge; PAHs; distribution; risk assessment

东北地区市政污泥中多环芳烃的分布特征及风险评估

程柳¹ 王力^{1*} 张欣怡¹ 刘超¹ 焦丽佳²

1. 安阳工学院化学与环境工程学院, 中国·河南 安阳 455000

2. 河南北方环保科技有限公司, 中国·河南 安阳 455000

摘要

本研究以东北地区长春、辽阳、哈尔滨和大连4座城市市政污水处理厂的脱水污泥为研究对象, 采用超声-固相萃取联合-气相色谱-质谱(GC-MS)方法测定污泥中16种多环芳烃(PAHs)浓度, 研究东北地区市政污泥中PAHs的分布特征, 并对其来源和生态风险进行解析和评估。结果表明, 东北地区市政污泥中 Σ PAHs浓度范围在0.54~1.30 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 之间, 大小顺序表现为辽阳>长春>大连>哈尔滨。其中Acp在辽阳和大连市政污泥中未检出。东北地区市政污泥中PAHs以3~5环为主, 占 Σ PAHs的28.3%~44.7%。风险评价结果显示, 污泥中PAHs的 $\text{TEQ}_{\text{BaP15}}$ 为0.09~0.33 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 其中6种致癌PAHs的毒性当量浓度占 $\text{TEQ}_{\text{BaP15}}$ 的99%以上。 $\text{TEQ}_{\text{BaP10}}$ 的浓度范围为0.05~0.22 $\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$, 显著超出荷兰农业土壤标准规定的限值。

关键词

市政污泥; 多环芳烃; 分布特征; 风险评估

1 引言

多环芳烃(Polycyclic Aromatic Hydrocarbons, PAHs)

【基金项目】河南省自然科学基金青年基金项目(项目编号: 252300423283); 安阳市重点研发与推广(科技攻关)项目(项目编号: 2025C01NY015); 安阳工学院环境污染治理科研创新团队(项目编号: CXTD202406)。

【作者简介】程柳(1988-), 女, 中国河南安阳人, 博士, 讲师, 从事固体废弃物中污染物的环境化学行为研究。

【通讯作者】王力(1987-), 男, 中国河南安阳人, 博士, 讲师, 从事分子印迹聚合物识别污染物的应用研究。

指含有两个或两个以上苯环以不同的方式聚合而成的一组化合物, 是一类在环境中长期残留、分布广泛的有机污染物, 其中特定组分具有致畸性、难降解性、生物富集性和致癌性, 可对人体呼吸系统、循环系统、神经系统造成损伤。多环芳烃在环境中的输入途径较为复杂, 主要源于化石燃料(如煤炭和石油)及生物质材料的不完全燃烧, 并通过石油泄漏、工业废水、炼焦过程和交通运输排放等人类生产与生活活动不断释放^[1]。

PAHs因水溶性较差、疏水性显著, 在污水体系中易与悬浮固体和有机组分结合, 从而由水相向固相分配, 最终随悬浮物沉降并在污泥中形成较高的累积浓度^[2]。污水处理厂产生的剩余污泥, 很可能成为环境中微污染物(如药物、护肤品、类固醇、多溴二苯醚及PAHs^[3,4])的重要来源^[5]。一

般认为,现代市政污水处理厂通常能够有效地去除污水中的 PAHs,从而大大降低了排放到受纳水体中的 PAHs。然而,从污水中去除的 PAHs 主要转移到剩余污泥中,如果处置不当,市政污泥将成为环境中另一个 PAHs 的潜在来源^[6],对环境、土壤、农作物造成二次污染,危及人类健康。目前,国内外发达地区针对市政污泥中 PAHs 分布情况已开展了大量相关研究^[7-9]。宋艳艳等^[8]研究淄博市6家污水处理厂脱水污泥中多环芳烃的分布特征及来源表明,检测出的15种多环芳烃的总浓度范围为0.23 mg/kg~3.76 mg/kg,平均值为1.20 mg/kg,各污泥间 \sum_{16} PAHs 差异显著;7种致癌性 PAHs 的浓度范围为0.11 mg/kg~2.56 mg/kg 之间,污泥以6环 PAHs 为主。然而,在我国经济相对欠发达的东北地区,针对市政污泥中有机污染物的研究仍较为有限,其市政污泥的安全处置及资源化利用可行性尚缺乏系统性的研究与评估。本文以东北地区长春、辽阳、哈尔滨和大连4个典型城市市政污水处理厂的脱水污泥为研究对象,研究其中 PAHs 的分布特征、来源及其风险评估,从而为东北地区市政污泥安全化管理及综合利用提供科学支撑。

2 材料与方 法

2.1 样品采集与处理

本研究采集东北地区大连、哈尔滨、长春和辽阳四个典型城市的市政污水处理厂剩余污泥样品,在现场采集污泥样品密封于 PP 瓶中,冷冻后放入冰袋(置于保温箱),快速将其运回实验室,其后进行冷冻干燥、研磨过80目筛,置于干燥箱中保存、待测。

污泥样品中 PAHs 提取:利用超声提取结合固相萃取法对污泥样品中 PAHs 进行提取。首先称取污泥样品1.0 g,加入6.0 mL 的二氯甲烷溶液(色谱纯),在超声条件下冰水浴超声20 min,然后离心15.0 min,转移提取液至干净离心管中,以上操作重复三次,混合提取液。将提取液氮吹浓缩至近干后加入二氯甲烷定容至1.0 mL,进行固相萃取,先清洗活化固相萃取柱,转移浓缩提取液至固相萃取柱,加入6.0 mL 正己烷与二氯甲烷混合液(3:2)洗脱剂分两次进行洗脱,将洗脱液氮吹至近干,加入二氯甲烷定容至200 μ L,待测。

2.2 样品分析

采用气相色谱-质谱联用仪(GC-MS)测定污泥样品中15种 PAHs:萘(Nap)、蒽(Anth)、芘(Pyr)、苊(Flu)、菲(Phe)、蒽(Ant)、荧蒽(Fla)、芘(Pyr)、苯并[a]蒽(BaA)、苊(Chr)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[a]芘(BaP)、二苯并[a,h]蒽(DahA)和苯并[ghi]芘(BghiP),内标法定量。色谱操作条件为:色谱柱选用 HP-5MS(30 m \times 0.25 mm \times 0.25 μ m);进样口温度:280 $^{\circ}$ C;柱温:柱温100 $^{\circ}$ C以30 $^{\circ}$ C/min 的速度升温至190 $^{\circ}$ C,然后以2.5 $^{\circ}$ C/min 的速度升温至305 $^{\circ}$ C(保持4min);载气流速:1.5 mL/min 高纯氦气(99.99%);柱流量:0.8 mL/min;分流方式:恒流无分流。质谱条件为:

温度:280 $^{\circ}$ C;电离子源:EI源,70 eV;扫描方式:SIM;检测电压:1294 eV。

2.3 实验室质量控制

为了保证试验数据的准确度和精密度,实验过程中通过方法空白、样品平行和样品加标回收作为质量控制手段。每批次样品测定中均设置3个空白样品,以确保实验过程中没有污染。同时每批次测定均抽取20%的样品,每个样品设置3个平行样,实验所测所有样品的相对标准偏差均控制在15%以内,同时对其中约20%的样品进行了随机加标回收验证,样品加标回收率为70%~115%。

3 结果与讨论

3.1 市政污泥中 \sum PAHs 的浓度与分布规律

东北地区4座城市市政污泥样品中共检出15种 PAHs, Acp 在辽阳和大连市政污泥中均未检出。由图2.1可知, \sum PAHs 浓度范围在0.54~1.30 mg \cdot kg⁻¹ 之间,均值为0.07 \pm 0.06 mg \cdot kg⁻¹,大小顺序表现为辽阳>长春>大连>哈尔滨。长春市政污泥中 BghiP 浓度最高为0.22 mg \cdot kg⁻¹, NaP 浓度最低为0.002 mg \cdot kg⁻¹;辽阳市政污泥中 BghiP 浓度最高为0.25 mg \cdot kg⁻¹, AcPy 浓度最低为0.008 mg \cdot kg⁻¹;哈尔滨市政污泥中 Phe 浓度最高为0.12 mg \cdot kg⁻¹, AcPy 浓度最低为0.008 mg \cdot kg⁻¹;大连市政污泥中 Chr 浓度最高为0.21 mg \cdot kg⁻¹, AcPy 浓度最低为0.003 mg \cdot kg⁻¹。其中致癌性最强的苯并(a)芘 BaP 的浓度均低于0.2 mg \cdot kg⁻¹,低于我国污泥农用标准(CJ/T 309-2009)^[10]中规定的限制值3.0 mg \cdot kg⁻¹。

PAHs 被认为是致癌性很强的一种环境污染物,本研究将 BaA、Chr、BbF、BkF、BaP、DBA 界定为高致癌风险的 PAHs 组分。结果表明,东北地区市政污泥中上述6种致癌性 PAHs 的总浓度(\sum 6PAHs)介于0.23~0.75 mg \cdot kg⁻¹ 之间,平均值为0.67 mg \cdot kg⁻¹,不同污泥样品之间 \sum 6PAHs 水平存在显著差异。进一步分析发现, \sum 6PAHs 在 \sum 15PAHs 中所占比例为41.1%~70.9%,平均占比达61.7%,表明致癌性 PAHs 在东北地区市政污泥中具有较高的赋存比例。这可能与污水水质、污水处理工艺、污水排放量和污泥种类等因素有关^[2]。

贵阳污泥中 PAHs 以2~4环 PAHs 为主,占 \sum PAHs 的83.0%~90.2%^[7];杭州污泥中 PAHs 主要以2、3、4环为主,分别占 \sum PAHs 的9.76%~30.3%、7.32%~25.5%和52.2%~67.9%,宁波污泥中 PAHs 则以3、4环为主,分别占 \sum PAHs 的42.3%和44.5%^[11]。而淄博污泥中则以6环 PAHs 为主,占其 \sum PAHs 的53.6%^[8]。本研究中,长春市和辽阳市市政污泥中 PAHs 主要以5环为主(图2.2),分别占 \sum PAHs 的44.7%和43.8%;哈尔滨市市政污泥中 PAHs 主要以3、5环为主,分别占 \sum PAHs 的35.2%和32.5%;大连市市政污泥中 PAHs 主要以4、5环为主,分别占 \sum PAHs 的34.5%和28.3%。其原因可能在于高环 PAHs 降解速率较低且更倾向于与污泥颗粒结合,而低环组分则更易发生挥发作用并释放

至大气环境^[12]。与上述市政污泥测定结果的不同可能受到污水来源特征、污水处理工艺参数、污泥处理技术以及样品预处理方法差异的共同影响^[8]。

3.2 PAHs 来源分析

市政污泥中 PAHs 的来源较为复杂，其化学组成和环结构存在一定差异。一般认为，PAHs 组分分布特征的

相似性可反映其污染来源的相近性^[13]。由图 2.1 可知，不同市政污泥样品中 PAHs 呈现出较为一致的分布模式，表明其主要污染来源具有相似性，进而反映出东北地区在能源结构和工业发展水平方面的整体一致性。这与杨少博等^[12]对贵阳市市政污泥中多环芳烃的来源解析结果相似。

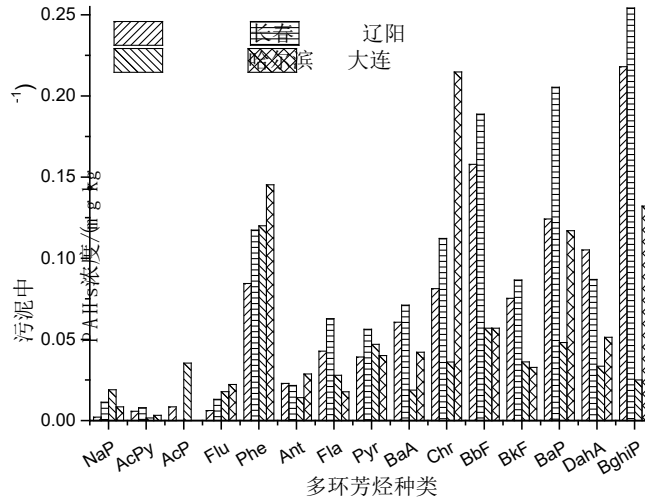


图 2.1 东北地区市政污泥中 PAHs 分布特征

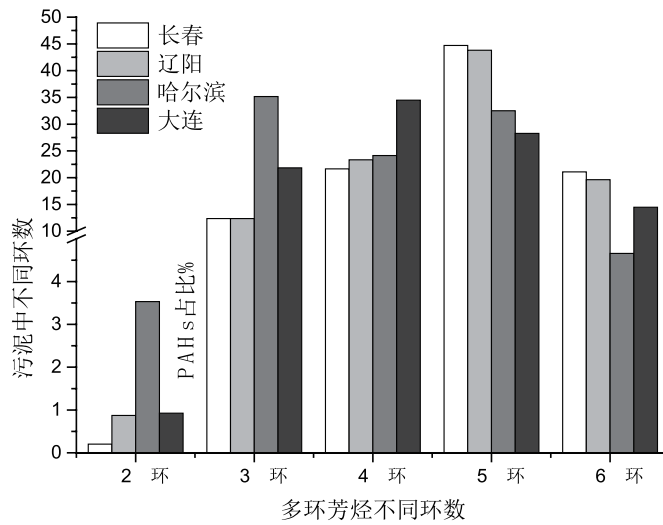


图 2.2 东北地区市政污泥中不同环数 PAHs 的组成比例

通常，判断多环芳烃的来源用其不同环数的相对丰度来表示，即高分子量 (4~6 环) (high molecular weight, HMW) 的 PAHs 主要来自化石燃料的高温燃烧，而低分子量 (2~3 环) (low molecular weight, LMW) 则大多来源于石油污染^[14]。一般来说，当 LMW/HMW > 1 时，PAHs 主要来自石油污染；LMW/HMW < 1 时，则被认为来自燃烧源^[15]。本研究中辽阳、长春、大连和哈尔滨四座市政污水处理厂污泥中 LMW/HMW 均 < 1 (表 2.1)，说明市政污泥中 PAHs 主要来自木材、家庭燃煤等燃烧过程。此外，有研究表明，芘/芘 + 苊 (FLA/FLA+Pyr) 能较为真实地反映其石油、

木材和煤燃烧源的原始特征，当 FLA/FLA + Pyr 大于 0.5 时，PAHs 主要源自木材、煤的燃烧；当 FLA/FLA + Pyr 小于 0.4 时，PAHs 为石油污染来源；介于 0.4~0.5 时，PAHs 则主要来自石油及其精炼产品燃烧 (表 2.1)^[16]。

从表 2.1 可以看出，长春和辽阳样品的 FLA/(FLA+Pyr) 值均大于 0.5，表明 PAHs 主要来源于木材和煤的燃烧，而哈尔滨和大连该比值均小于 0.4，指示石油燃烧为其主要来源。综合分析认为，东北地区市政污泥中 PAHs 主要来自木材、煤与石油燃烧的混合源，并可能叠加机动车尾气等人为排放，这与区域能源消费结构密切相关，尤其是供暖及工业

生产过程中燃煤和生物质燃烧产生的 PAHs 经大气沉降进入污水处理系统。相关性分析显示, 长春、辽阳及大连污泥中 PAHs 之间存在显著相关性, 其中长春与辽阳相关系数最高 (R= 0.955), 表明两地 PAHs 来源最为相近; 尽管哈尔滨和大连污泥中 PAHs 均以燃烧源为主, 但其组分结构仍存在一定差异 (图 2.2), 其相关系数仅为 0.525。

表 2.1 PAHs 来源的特征化合物指数

特征化合物指数	燃烧来源	石油污染源	长春	辽阳	哈尔滨	大连
LMW/HMW	< 1	> 1	0.14	0.15	0.63	0.29
FLA/FLA+PYR	0.4~0.5 (石油燃烧) > 0.5 (木材、煤燃烧)	< 0.4	0.52	0.53	0.37	0.31

3.3 污泥中 PAHs 的风险评价

目前, 土地利用已成为我国市政污泥处理处置的主要方式之一。郭建阳等^[17]研究表明, 低环 PAHs 主要表现为急性毒性, 而高环 PAHs 则具有较强的致癌风险。因此有必要对污泥中 PAHs 的生态风险效应进行系统评价。鉴于国内外尚缺乏针对污泥土地利用情景下 PAHs 生态风险的统一评价标准, 本研究参照荷兰农业土壤质量标准中 10 种 PAHs 的目标值, 采用 BaP 的毒性当量浓度法 (TEQ)^[7] 进行污泥中 PAHs 的生态风险评价 (PAH 毒性当量因子 TEF^[8] 见表 2-2)。计算方法如下: $TEQ_i = A_i \times TEF_i$, 式中 TEQ_i 为 PAHs 单体 i 的毒性当量浓度, $mg \cdot kg^{-1}$; A_i 为 PAHs 单体 i 的浓度, $mg \cdot kg^{-1}$; TEF_i 为 PAHs 单体 i 的毒性当量因子。

与荷兰土壤标准值比较发现, 辽阳、长春、大连和哈尔滨四座市政污水处理厂污泥中 PAHs 仅 NAP 和 Ant 低于荷兰土壤标准值, 剩余 8 种 PAHs 均高于荷兰土壤标准值, 其中 BghiP 超标最高, 分别超出荷兰土壤标准值的 12.71、10.90、6.61 和 1.25 倍, 其次是 BaP, 分别超出荷兰土壤标准值 8.21、4.97、4.68 和 1.92 倍。虽然东北地区市政污泥中 BghiP 超出荷兰土壤标准值数倍, 但是因其毒性因子低, 仅为 0.01, 而 BaP 的毒性因子最大为 1, 因此东北地区市政污泥中 BaP 对污泥土地利用潜在风险的贡献远大于 BghiP。

东北地区市政污泥中 15 种 PAHs 的 BaP 毒性当量浓度 TEQ_{BaP15} 在 0.09~0.33 $mg \cdot kg^{-1}$ 之间 (表 2.2), 整体水平表现为辽阳 > 长春 > 大连 > 哈尔滨。荷兰标准中 10 种 PAHs 的 TEQ_{BaP10} 浓度范围为 0.05~0.22 $mg \cdot kg^{-1}$, 均显著高于荷兰农业土壤标准限值 (0.033 $mg \cdot kg^{-1}$) 的 1.6~6.8 倍, 表明上述城市市政污泥在土地利用过程中存在较高的生态风险。其中, 6 种致癌 PAHs (BaA、CHR、BbF、BkF、BaP 和 DahA) 的 TEQ_{BaP} 致癌浓度为 0.09~0.32 $mg \cdot kg^{-1}$, 对 TEQ_{BaP15} 的贡献超过 99%, 表明其为致癌风险的主导因子。风险评价结果表明, 东北地区市政污泥中 PAHs 存在较大的潜在生态风险及致癌风险, 污泥处理与处置过程中需予以严

格控制。

表 2.2 TEF、荷兰 PAHs 土壤标准值及东北地区污泥 PAHs 毒性当量浓度

PAHs	毒性因子 TEF	荷兰 PAHs 土壤标准值 w/mg · kg ⁻¹	TEQ			
			长春	辽阳	哈尔滨	大连
NaP	0.001	0.015	0.002	0.01	0.02	0.01
AcPy	0.001		0.01	0.01	0.002	0.003
AcP	0.001		0.01	ND	0.04	ND
Flu	0.001		0.01	0.01	0.02	0.02
Phe	0.001	0.05	0.08	0.12	0.12	0.15
Ant	0.01	0.05	0.02	0.02	0.01	0.03
Flt	0.001	0.015	0.04	0.06	0.03	0.02
Pyr	0.001		0.04	0.06	0.05	0.04
BaA	0.1	0.02	0.06	0.07	0.02	0.04
Chr	0.01	0.02	0.08	0.11	0.04	0.21
BbF	0.1		0.16	0.19	0.06	0.06
BkF	0.1	0.025	0.08	0.09	0.04	0.03
BaP	1	0.025	0.12	0.21	0.05	0.12
DahA	1		0.11	0.09	0.03	0.05
BghiP	0.01	0.02	0.22	0.25	0.03	0.13
TEQ _{BaP} 致癌			0.26	0.33	0.09	0.18
TEQ _{BaP10}			0.14	0.23	0.05	0.13
TEQ _{BaP15}			0.26	0.33	0.09	0.19

4 结论

东北地区 4 座城市市政污水处理厂污泥中 15 种 Σ PAHs 的浓度为 0.54~1.30 $mg \cdot kg^{-1}$, 与国内较发达城市相比处于较低水平。主要以 3~5 环 PAHs 为主, 占 Σ PAHs 的 28.3%~44.7%。长春、辽阳和大连市政污泥中各 PAHs 之间存在极显著相关水平, 哈尔滨和大连市政污水处理厂污泥中各 PAHs 之间存在显著相关水平, 表明东北地区市政污泥中 PAHs 组分特征有所差异而来源相似。东北地区市政污泥中 PAHs 的主要来源于木材、煤以及石油燃料燃烧, 并伴有汽车尾气排放等混合来源。

东北地区市政污泥中 PAHs 的 TEQ_{BaP15} 为 0.09~0.33 $mg \cdot kg^{-1}$, 其中 6 种致癌性 PAHs 的 TEQ_{BaP6} 为 0.09~0.32 $mg \cdot kg^{-1}$, 是致癌风险的主要贡献来源, 且 TEQ_{BaP10} 均显著高于荷兰农业土壤标准限值。尽管污泥中 PAHs 的总含量相对较低, 但仍具有潜在的生态与健康风险, 进行土地利用时需加以严格管控。

参考文献

- [1] 黄亚龙. 巢湖 PAHs 在水-沉积物的垂直浓度分布及交换过程研究[D]. 安徽, 合肥工业大学, 2019.
- [2] 张雪英. 江苏城市污泥中 PAHs 的分布特征及其堆肥对 PAHs (蒽 蒽) 环境行为的影响研究[D]. 南京: 南京农业大学, 2007.
- [3] Zeng L, Li H, Wang T, et al. Behavior, fate, and mass loading of

- short chain chlorinated paraffins in an advanced municipal sewage treatment plant.[J]. *Environmental Science & Technology*. 2013, 47(2): 732-740.
- [4] Eggen R I, Hollender J, Joss A, et al. Reducing the discharge of micropollutants in the aquatic environment: the benefits of upgrading wastewater treatment plants[J]. *Environmental Science & Technology*. 2014, 48(14): 7683.
- [5] Unep. Global Mercury Assessment 2013: Sources, Emissions, Releases and Environmental Transport[EB/OL]. Geneva, Switzerland: UNEP Chemical Branch, 2013.
- [6] Barret M, Carrere H, Delgadillo L, et al. PAH fate during the anaerobic digestion of contaminated sludge: Do bio-availability and/or cometabolism limit their biodegradation? [J]. *Water Research*. 2010, 44: 3797-3806.
- [7] 杨少博, 李江, 张春辉等. 贵阳市城市污泥中多环芳烃的分布特征、来源解析及风险评价[J]. *生态学杂志*, 2015, 34(6): 1675-1681.
- [8] 宋艳艳, 崔静, 刁振凤等. 淄博城市污泥中多环芳烃分布特征及风险评价[J]. *环境监测管理与技术*, 2018, 34(4): 43-48.
- [9] Provenzano MR, Malerba AD, Buscaroli A, et al. Anaerobic digestion of municipal solid waste and sewage sludge under mesophilic and thermophilic conditions. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*[J]. 2013, 111: 1861-1870.
- [10] 中国国家标准化管理委员会. 城镇污水处理厂污泥处置 农用泥质 (GJ/T309-2009) [Z]. 中国标准出版社: 2009.
- [11] Yan JH, Guo JL, Mi Y, et al. Investigation into the distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in wastewater sewage sludge and its resulting pyrolysis bio-oils[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 473-474: 459-464.
- [12] 孙少静, 李博, 李洪伟, 等. 污水处理厂污水和污泥中 PAHs 的残留及风险研究进展[J]. *中国环境监测*, 2017, 33 (1): 106-114.
- [13] Dahle S, Savinovv M, Matishov GG, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in bottom sediments of the Kara Sea Shelf, Gulf of Ob and Yenisei Bay[J]. *Science of the Total Environment*, 2003, 306: 57-71.
- [14] Fernandks MB, Sicre MA, Boireau A, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) distributions in the Seine River and its estuary[J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1999, 38: 7-15.
- [15] 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: 85-97.
- [16] Yunker MB, Macdonald RW, 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.
- [17] 郭建阳, 廖海清, 韩梅等. 密云水库沉积物中多环芳烃的垂直分布、来源及生态风险评估[J]. *环境科学*, 2010, 31 (3): 626-631.
- [18] Tsai PJ, Shih TS, Chen HL, et al. Assessing and predicting the exposure of PAHs and their carcinogenic potencies from vehicle engine exhausts to high way toll station workers[J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38: 333-34.