

## 长江中游湖泊表层沉积物多环芳烃的分布、来源特征及其生态风险评价\*

万宏滨<sup>1,2,3</sup>, 周娟<sup>1</sup>, 罗端<sup>1</sup>, 杨浩<sup>1</sup>, 黄昌春<sup>1,2,3</sup>, 黄涛<sup>1,2,3\*\*</sup>

(1: 南京师范大学地理科学学院, 南京 210023)

(2: 江苏省地理信息资源开发与利用协同创新中心, 南京 210023)

(3: 江苏省物质循环与污染控制重点实验室, 南京 210023)

**摘要:** 为明确长江中游地区湖泊沉积物中多环芳烃(PAHs)的分布特征、来源及其生态风险,于2018年7月采集了该地区12个湖泊的表层沉积物样品。采用气相色谱-质谱联用仪(GC-MS)测定了沉积物中16种PAHs的含量。结果表明:12个湖泊沉积物中均检测出16种优控PAHs,PAHs的总含量在572.7~1766.2 ng/g(dw)之间(均值为976.5±285.0 ng/g(dw))。武汉市东湖沉积物中PAHs含量最高,达到1634.8±111.4 ng/g(dw)。与国内外其他地区湖泊沉积物相比,长江中游地区湖泊沉积物中PAHs含量高于国内偏远地区的抚仙湖、青海湖及博斯腾湖,低于东部地区的巢湖、太湖及美国经济工业发达地区的湖泊。根据单体PAH的聚类分析结果,12个湖泊可以分成3种类型,类型1主要以低环为主,占比为64.04%±7.02%,类型2低环和中高环分布相对平均,分别为50.76%±5.17%和49.24%±5.17%,类型3低、中、高环分布相对平均,占比分别为35.35%±3.56%、26.17%±0.45%和38.48%±3.84%。综合该区域PAHs的分布特征及异构体比值法与主成分分析法的结果表明,类型1湖泊沉积物中PAHs主要来源为煤炭、木材等生物质的燃烧源;类型2和类型3湖泊沉积物中PAHs主要来源为煤炭、木材等生物质的低温燃烧以及机动车等燃烧汽油、柴油的尾气排放和工业炼焦等化石燃料的高温燃烧源。沉积物中PAHs与总有机碳(TOC)之间显著的相关性表明,沉积物中TOC含量是影响长江中游湖泊沉积物中PAHs归趋分布的主要因素。长江中游流域湖泊沉积物中PAHs的 $RQ_{NCs}$ 值均小于800,且 $RQ_{MPCs}$ 值大于1的风险商值法生态风险评价结果表明,长江中游流域湖泊表层沉积物中PAHs整体呈中等风险水平。

**关键词:** 多环芳烃;湖泊;表层沉积物;来源特征;长江;生态风险评价

## Distribution, source characteristics and ecological risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface sediments of lakes along the middle reaches of the Yangtze River\*

WAN Hongbin<sup>1,2,3</sup>, ZHOU Juan<sup>1</sup>, LUO Duan<sup>1</sup>, YANG Hao<sup>1</sup>, HUANG Changchun<sup>1,2,3</sup> & HUANG Tao<sup>1,2,3\*\*</sup>

(1: College of Geography Science, Nanjing Normal University, Nanjing 210023, P.R.China)

(2: Jiangsu Center for Collaborative Innovation in Geographical Information Resource Development and Application, Nanjing 210023, P.R.China)

(3: Jiangsu Provincial Key Laboratory of Materials Cycling and Pollution Control, Nanjing 210023, P.R.China)

**Abstract:** In order to study the distribution characteristics, sources and ecological risks of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the sediments of lakes along the middle reaches of the Yangtze River, surface sediments were collected from 12 lakes in the region in July 2018. The contents of 16 PAHs were determined by gas chromatography-mass spectrometry (GC-MS). The results indicated that 16 kinds of priority PAHs were all detected in these lake sediments. The contents of total PAHs were between 572.7–1766.2 ng/g(dw) (with the mean value of 976.5±285.0 ng/g(dw)). The highest content of PAHs in the sediments of Wuhan Lake East was 1634.8±111.4 ng/g(dw). Compared with lake sediments in other domestic and oversea areas, the PAHs con-

\* 2019-06-03 收稿; 2019-11-04 收修改稿。

国家自然科学基金项目(41673108,41773097)、江苏省高校自然科学基金项目(16KJD170001)和江苏高校“青蓝工程”优秀青年骨干教师项目联合资助。

\*\* 通信作者; E-mail: huangtao198698@126.com.

tent in the middle reaches of the Yangtze River was higher than that of Lake Fuxian, Lake Qinghai and Lake Bosten in remote areas of China, but lower than that of Lake Chaohu and Lake Taihu in the lower reaches of the Yangtze River and the economically and industrially developed areas in the United States. According to the results of single PAH clustering analysis, 12 lakes can be divided into three types. Type 1 was mainly occupied by low ring of  $64.04\% \pm 7.02\%$ . Type 2 was mainly equivalent occupied by low ring and middle ring, which accounting for  $50.76\% \pm 5.17\%$  and  $49.24\% \pm 5.17\%$ , respectively. Type 3 was homogeneous occupied by different rings, which accounting for  $35.35\% \pm 3.56\%$ ,  $26.17\% \pm 0.45\%$ , and  $38.48\% \pm 3.84\%$  from low ring to high ring. According to the distribution characteristics of PAHs in this area and the results of isomer ratio method and principal component analysis, the main source of PAHs in type 1 lake sediments is the mixed source of biomass combustion and petroleum, such as coal and wood. The main sources of PAHs in lake sediments of type 2 and type 3 are low-temperature combustion of biomass such as coal and wood, exhaust emissions from motor vehicles burning gasoline and diesel, and high-temperature combustion of fossil fuels such as industrial coking. The significant correlation between PAHs and total organic carbon (TOC) in the sediments indicates that, the content of TOC in the sediments is the key factor affecting the distribution of PAHs in the lake sediments in the middle reaches of the Yangtze River. The risk assessment results of the risk quotient method, that the  $RQ_{NCs}$  of PAHs in lake sediments in the middle reaches of the Yangtze River are all less than 800, and the  $RQ_{MPCs}$  are greater than 1, indicating that the PAHs in the lake sediments along the middle reaches of the Yangtze River presents a moderate risk level.

**Keywords:** PAHs; lakes; surface sediments; source characteristics; Yangtze River; ecological risk assessment

多环芳烃(Polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)是环境中分布最广泛的一类持久性有机污染物,具有致癌、致畸、致突变毒性,对生态系统和人类健康都有严重危害,美国环境保护署(U.S. Environmental Protection Agency, EPA)已将16种PAHs列为优先控制污染物<sup>[1]</sup>. 环境中的PAHs主要由人类活动产生,其来源包括化石燃料(煤炭、石油等)及木材等生物质的不完全燃烧、石油泄漏、工业废水排放、工厂炼焦及汽车尾气排放等<sup>[1-3]</sup>. PAHs因其低溶解性及疏水性<sup>[4]</sup>,在湖泊环境中主要吸附在悬浮物中,最终沉降到沉积物中. 由于PAHs在环境中的难降解性,沉积物中的PAHs经食物链生物放大与富集作用后将破坏生态系统并危害人类健康<sup>[5]</sup>.

随着我国近几十年来能源消耗的快速增加,PAHs污染已经被认为是中国最严重的环境问题之一<sup>[1]</sup>. 目前,研究学者对我国PAHs的分布、来源及迁移转化机制等进行了大量的研究,主要集中于大气、扬尘、水体、沉积物以及土壤中<sup>[3,6-9]</sup>. 在这些环境介质中,湖泊沉积物中PAHs已成为研究热点,沉积物是环境中PAHs重要的汇和潜在污染源. 因而对湖泊沉积物中PAHs进行研究分析,可以更全面的了解环境中PAHs的污染状况及潜在风险,并有助于了解PAHs与人类活动经济发展之间的关系,更好的采取适当的措施预防和保护湖泊生态环境.

长江中游段长约1000 km,流经湖北、湖南、江西和安徽四省,水流平缓,有众多支流汇入. 该流域带城市形态呈条带状分布,人口密集,航运发达,经济发展迅速. 长江中游流域分布着大量的浅水湖泊,其中包括洞庭湖与鄱阳湖两大淡水湖,这些湖泊多属于宽广型,湖底沉积物淤积较厚,是长江流域的重要组成部分<sup>[10]</sup>. 目前国内已对长江流域及周边湖泊沉积物中PAHs污染进行了大量研究<sup>[8,11-13]</sup>,鄱阳湖周溪湾的沉积物研究表明,近几十年来PAHs的排放量急剧上升,且PAHs来源也由煤燃烧向汽车尾气排放源转变<sup>[8]</sup>. 长江安庆段及毗邻湖泊沉积物研究发现,该地区PAHs主要来源于燃烧排放,不同湖泊存在不同的潜在来源<sup>[11]</sup>. Zhao等<sup>[12]</sup>利用沉积物基准法对长江中下游及淮河流域湖泊2008年的沉积物研究表明,该地区PAHs无生态风险. Li等<sup>[13]</sup>对长江中下游2014年湖泊沉积物研究发现,煤炭燃烧和汽车尾气排放是该区域PAHs的主要来源,国民生产总值GDP是影响该地区PAHs分布的关键因素,BaP和DahA在该地区有很高的毒性风险. 而随着2015年《长江中游城市群发展规划》的发布,长江中游经济带密集的重化工业进行了产业转移与转型升级,并重点发展经济效益高、污染小的第三产业,形成了城乡协调发展、绿色发展的新的发展模式<sup>[14-15]</sup>. PAHs作为环境中分布最广泛、与人类活动密切相关的持久性有机污染物,随着长江中游经济带近年来经济发展的变化应引起我们的持续关注. 对长江中游湖泊沉积物中PAHs的长期监测有助于了解其污染机理与人类活动有关的生态影响,掌握该区域湖泊沉积物中PAHs的分布特征,对于长江中游经济带绿色发展的环境保护与提升具有重要意义. 因此,本文通过检测分析2018年长江中游经济带12个湖泊沉积物中PAHs的

含量、组成及分布特征,探讨该地区 PAHs 分布的影响因素,运用比值法和主成分分析法对其来源进行解析并采用风险商值模型对其生态风险进行评价,以期在当前长江中游经济带 PAHs 污染状况及防治提供科学依据,为我国湖泊沉积物中 PAHs 的赋存情况提供背景数据.

## 1 材料与方法

### 1.1 样品采集与处理

2018年7月对长江中游12个湖泊进行了表层沉积物采样,根据湖泊面积大小及地理环境等因素分别采集了长湖4个样点、洞庭湖5个样点、岳阳南湖2个样点、洪湖6个样点、黄盖湖5个样点、武昌东湖3个样点、梁子湖7个样点、武山湖3个样点、龙感湖6个样点,珠湖和黄大湖各采集4个样点,由于当时鄱阳湖采砂的原因,只采集了2个样点,总计51个样点(图1).采用抓斗式采样器(型号KH0201,规格5L)采集表层沉积物,并保存在装有冰袋的保温箱中运回实验室.样品运回实验室后,进行冷冻干燥,然后研磨后过100目筛,进行各项指标的测定.

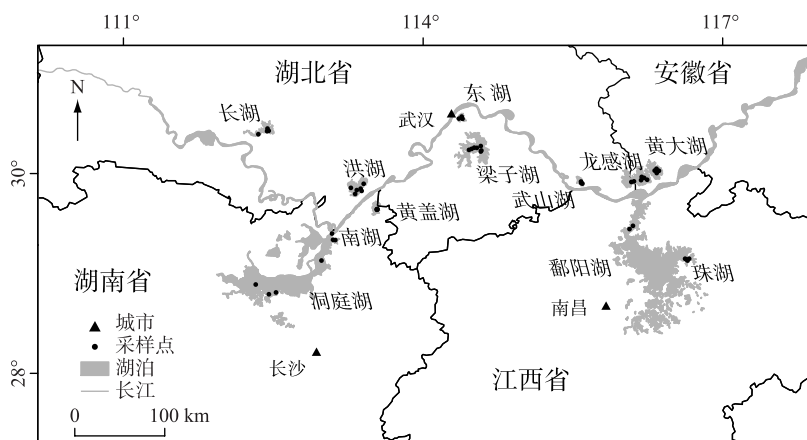


图1 长江中游流域12个湖泊采样点

Fig.1 Location of the sampling sites from 12 lakes along the middle reaches of Yangtze River

### 1.2 多环芳烃含量测定

(1) 样品提取与净化:使用电子天平称取2 g(精度0.001 g)样品倒入微波萃取管中,加入25 mL丙酮与正己烷1:1混合溶剂,并加入100 ng(50  $\mu$ L, 2 mg/L)5种回收率指示物(萘-d8、苊-d10、菲-d10、蒽-d12、芘-d12),进行微波萃取.微波萃取条件为:以10 $^{\circ}$ C/min升温至100 $^{\circ}$ C,在100 $^{\circ}$ C保持15 min.经离心3次得到的上清液旋蒸至1 mL.硅胶-氧化铝复合层析柱采用湿法装柱(内径13 mm,容量6 mL),自下而上分别为1.5 cm氧化铝、1.5 cm硅胶、1 cm无水硫酸钠(氧化铝与硅胶均在450 $^{\circ}$ C灼烧6 h,在140 $^{\circ}$ C下活化16 h后使用,无水硫酸钠在650 $^{\circ}$ C灼烧10 h后使用),先使用10 mL正己烷冲洗净化层析柱,当流至液面相切时,然后将旋蒸至1 mL的样品浓缩液倒入层析柱中,使用30 mL二氯甲烷与正己烷1:1混合溶剂进行少量多次冲洗,收集二氯甲烷与正己烷1:1混合组分的洗脱液再次旋蒸至1 mL以内,使用正己烷定容至1 mL上机检测.

(2) 样品检测:多环芳烃含量的检测使用日本岛津公司的气相色谱质谱联用仪(GC-MS QP2010Plus),不分流进样,进样量1  $\mu$ L,色谱柱为HP-5石英毛细管柱(长30 m,厚0.25  $\mu$ m,直径0.25 mm),载气为99.999%高纯氦气,流速为1.5 mL/min.升温程序如下:初始温度为50 $^{\circ}$ C,保持1 min,然后以15 $^{\circ}$ C/min升温至180 $^{\circ}$ C,然后以5 $^{\circ}$ C/min的速度将温度提高到280 $^{\circ}$ C,保持10 min.离子源温度200 $^{\circ}$ C,接口温度280 $^{\circ}$ C,离子源为电子轰击源(EI).检测目标化合物为EPA优控的16种PAHs:萘(Naphthalene, Nap),苊烯(Acenaphthylene, Acy),二氢苊(Acenaphthene, Ace),芴(Fluorene, Flu),菲(Phenanthrene, Phe),蒽(Anthracene, Ant),荧蒽(Fluoranthene, Fla),芘(Pyrene, Pyr),苯并[a]蒽(Benzo(a)anthracene, BaA),蒽(Chrysene, Chr),苯并[b]荧蒽(Benzo(b)fluoranthene, BbF),苯并[k]荧蒽(Benzo(k)fluoranthene, BkF),苯并[a]芘

(Benzo(a)pyrene, BaP), 茛苯[1,2,3-cd]芘(Indeno(1,2,3-cd)pyrene, InP), 二苯并[a,h]蒽(Dibenzo(a,h)anthracene, DahA), 苯并[ghi]茛(Benzo(g,hi)perylene BghiP). 采用选择性离子监测模式(SIM), EI 电子源 70 eV, 质谱扫描范围 45~600 amu. 通过样品中目标物与 16 种 PAHs 标准物质中目标物的保留时间、质谱图和碎片离子质荷比等信息比较, 进行目标物的定性. 在对目标物定性分析的基础上, 根据定量离子的峰面积, 采用外标法进行定量分析, 标准曲线采用 5 个浓度梯度(50、100、200、500 和 1000 ng/mL).

(3) 质量控制: 为了保证数据的可靠性, 对实验全流程进行了严格的质量控制. 平均每 14 个样品加入 1 个空白样与平行样, 并对实验样品加入了 16 种 PAHs 标准物质、5 种氘代指示物进行回收率检测. 空白样品中 PAHs 总含量比实际样品含量低一个数量级以上, 样品含量相对标准偏差小于 10%. 所有沉积物样品 PAHs 含量均经过空白校正. 16 种 PAHs 标准曲线相关系数均在 0.999 以上, 加标回收率在 77.13%~110.74% 之间, 方法检测限在 0.08~0.78 ng/g 之间, 各 PAH 组分回收率及检测限见附录 I.

### 1.3 其他数据测定与收集

总有机碳(TOC)含量是使用日本岛津公司的 TOC-L 与 SSM-5000A 分析仪测得的总碳与总无机碳之差获得. 湖泊面积、位置、蓄水量等数据从《中国湖泊分布地图集》<sup>[16]</sup>中获得. 透明度通过塞氏盘实地测量获得, pH、溶解氧等数据通过 YSI 6600 V2 型多参数水质监测仪实地测量获得(表 1). 研究中使用的能源消费量和车辆保有量等数据均来自当地统计年鉴中 2016—2017 年的统计数据. 各湖所使用的数据来源区域如下: 长湖—荆州市<sup>[17]</sup>、洪湖—潜江市<sup>[18]</sup>、洞庭湖—益阳市<sup>[19]</sup>、南湖—岳阳市<sup>[19]</sup>、黄盖湖—咸宁市<sup>[20]</sup>、东湖—武汉市<sup>[21]</sup>、梁子湖—鄂州市<sup>[22]</sup>、武山湖—武穴市<sup>[23]</sup>、龙感湖—黄冈市<sup>[23]</sup>、鄱阳湖—九江市<sup>[24]</sup>、珠湖—上饶市<sup>[24]</sup>、黄大湖—安庆市<sup>[25]</sup>.

表 1 本研究中 12 个湖泊的形态特征及湖沼特征

Tab.1 Selected morphometric and limnological characteristics of the 12 lakes in this study

湖泊	湖泊面积/ km <sup>2</sup>	蓄水量/ (×10 <sup>8</sup> m <sup>3</sup> )	平均水深/ m	透明度/ m	pH	溶解氧/ (mg/L)
长湖	131.1	6.6	5.1	0.75	8.4	9.55
洞庭湖	2625.0	167.0	6.4	0.50	7.7	7.61
南湖	12.0	—	5.0	0.45	8.7	7.38
洪湖	329.4	9.0	2.7	0.52	8.7	13.64
黄盖湖	86.0	—	4.8	0.45	8.2	7.96
东湖	33.7	1.2	2.5	0.70	8.6	10.36
梁子湖	247.9	4.2	4.9	1.50	8.6	9.86
武山湖	16.1	0.1	1.7	0.25	8.4	8.05
鄱阳湖	2933.0	149.0	5.1	0.80	8.1	9.74
龙感湖	312.9	13.3	4.2	0.50	8.3	7.58
黄大湖	279.0	13.3	4.8	1.10	8.2	8.09
珠湖	80.8	4.6	5.7	1.60	7.6	8.29

“—”表示此项数值缺失.

## 2 结果与分析

### 2.1 PAHs 的含量分布特征

长江中游湖泊 51 个样点表层沉积物中均检测出 16 种优控 PAHs, PAHs 总含量范围为 572.7~1766.2 ng/g(dw) (均值为 976.5±285.0 ng/g(dw)), 各个湖泊 PAHs 含量分布如图 2 所示. PAHs 含量最高的湖泊为武汉市城区的东湖(1634.8±111.4 ng/g(dw)), 其次是岳阳市的南湖(1352.5±286.1 ng/g(dw)). 东湖与南湖分别位于长江中游地区经济发达的武汉市、岳阳市两大城市内, 由于两个城市的高度工业化, 除来自生物质燃烧产生的 PAHs 外, 还有城市径流、城市和工业废水排放以及工业炼焦等过程中产生的 PAHs 进入湖泊环境中. 此外, 这两个湖泊为城市风景区, 有大量的游客驾驶机动车游玩, 机动车燃烧汽油等尾气排放也会产

生大量的 PAHs 进入湖泊中. PAHs 含量最低的湖泊为长湖 ( $688.1 \pm 47.3 \text{ ng/g(dw)}$ ), 长湖位于荆州市郊区, 相比其他湖泊更靠近长江上游流域, 该地区工业化及城市化进度低于长江中游区域其他城市并且该湖泊周围区域主要为农业活动区域<sup>[17]</sup>. 从湖泊分布上看, 武汉市东湖沉积物中 PAHs 含量显著高于长江中游地区除岳阳南湖以外的其他湖泊 ( $P < 0.05$ ), 而经济发展相对落后地区的长湖、洞庭湖、龙感湖和黄大湖沉积物中 PAHs 含量显著低于长江中游其他经济较为发达地区的湖泊 ( $P < 0.05$ ).

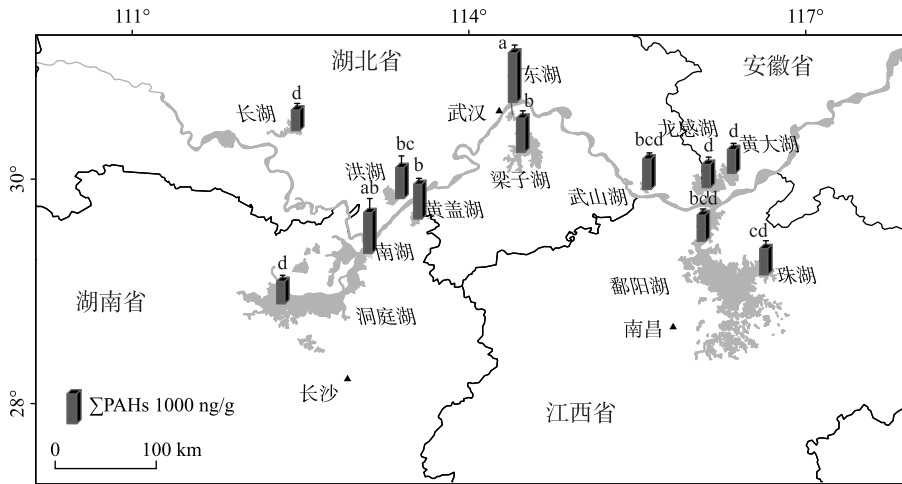


图 2 长江中游流域 12 个湖泊沉积物中 PAHs 含量

Fig.2 Contents of PAHs in sediments of 12 lakes in the middle reaches of the Yangtze River

将本次研究结果与之前长江中游湖泊沉积物中 PAHs 含量进行比较 (表 2), 岳阳市南湖沉积物中 PAHs 含量在 10 年内增加了近 5 倍, 岳阳市是长江中游区域的中心城市, 近年来工业化、城镇化发展迅速, 造成了污染物的过度排放. 而武汉市东湖沉积物中 PAHs 含量近年来虽然增长幅度较小, 但其 PAHs 含量一直处于较高的水平, 武汉市是长江中游城市群中唯一的特大城市, 工业化、城镇化水平高, 相应的排放出更多的污染物. 长江中游其他湖泊沉积物中 PAHs 含量相较之前均有一定程度的增加, 这表明伴随着长江流域城市群的快速发展, 相应的排放出更多的 PAHs 污染物进入了环境中. 表 3 汇总了国内外近些年来其他地区湖泊沉积物中 PAHs 含量情况, 2018 年长江中游地区湖泊沉积物中 PAHs 含量处于较高水平, 远高于国内偏远地区的抚仙湖<sup>[26]</sup>、青海湖<sup>[27]</sup>、博斯腾湖<sup>[28]</sup>等湖泊, 低于东部地区的巢湖<sup>[2]</sup>与太湖<sup>[29]</sup>, 远低于美国经济工业发达地区的湖泊<sup>[30-32]</sup>.

表 2 长江中游湖泊沉积物不同时间 PAHs 含量比较

Tab.2 Comparison of PAHs content in lake sediments in the middle reaches of Yangtze River at different times

湖泊	本研究			之前研究			文献
	采样时间	PAHs 种类	含量/(ng/g)	采样时间	PAHs 种类	含量/(ng/g)	
洞庭湖	2018-07	16	572.7~936.8(738.3)	2015-12	15	78.3~567.7(234.0)	[33]
南湖	2018-07	16	1066.4~1638.6(1352.5)	2008-06	16	—(204.5)	[12]
洪湖	2018-07	16	587.2~1302.4(1020.5)	2014-05	16	—(540.7)	[13]
黄盖湖	2018-07	16	1069.5~1177.7(1141.7)	2014-05	16	—(785.5)	[13]
东湖	2018-07	16	1493.7~1766.2(1634.8)	2014-05	16	—(1278.2)	[13]
鄱阳湖	2018-07	16	806.1~924.1(865.1)	2011-11	12	214.0~384.0(299.0)	[8]
龙感湖	2018-07	16	615.9~937.0(773.1)	2014-05	16	—(598.3)	[13]

\* 括号内为 ΣPAHs 含量平均值, “—”表示数值缺失.

表3 长江中游及国内外其他地区湖泊沉积物中 PAHs 含量比较  
Tab.3 Comparison of PAHs content in lake sediments from the middle reaches  
of the Yangtze River and other regions

研究区域	湖泊	采样时间	范围/(ng/g)*	均值/(ng/g)	文献
东部地区	巢湖	2010-08	116.0~2832.2	898.9	[2]
	千岛湖	2012-12	258.0~906.0	558.0	[34]
	太湖	2015-09	770.0~4200.0	1630.0	[29]
	长江中游湖泊	2018-07	572.7~1766.2	976.5	本研究
云贵地区	洱海	2014-10	32.4~558.5	256.7	[35]
	抚仙湖	2015-08	83.2~261.7	143.3	[26]
	滇池	2016-12	57.4~360.2	189.3	[36]
东北地区	查干湖	2017-01	305.9~1214.4	586.5	[37]
	南山湖	2015-07	199.0~425.0	339.3	[38]
青藏地区	青海湖	2006-08	11.0~279.0	—	[27]
	纳木错**	2006-08	98.0~595.0	—	[39]
蒙新地区	博斯腾湖	2016-12	57.4~360.2	189.3	[28]
	呼伦湖	2016-08	282.9~1056.9	596.5	[37]
美国	Michigan Inland Lakes	1999-07	50.0~16800.0	2638.8	[30]
	Clarke Lake	2000-09	1291.0~6271.0	3276.0	[31]
	Erie Lake	2006-08	70.0~5540.0	—	[32]

\*表中均为16种PAHs含量总和,\*\*指纳木错、错那、错鄂、佩枯错、可鲁克湖,“—”表示此项没有值。

## 2.2 PAHs 的组成分布特征

PAHs 根据其分子量大小即苯环数量可分为低环(2~3环)、中环(4环)以及高环(5~6环)PAHs<sup>[40]</sup>。PAHs 不同的组成特征反映出了其来源的差异<sup>[3,26,41]</sup>。为明确长江中游湖泊沉积物中 PAHs 组成特征的相似性与差异性,故采用聚类分析的方法对12个湖泊沉积物中 PAHs 组成特征相进行分类,以每个湖泊的16种单体 PAH 含量作为起始数据分析,长江中游流域12个湖泊根据 PAHs 的组成特征被分为3种类型,如图3所示。类型1包括8个湖泊,分别为长湖、洞庭湖、龙感湖、鄱阳湖、武山湖、洪湖、珠湖以及黄大湖,这些湖泊主要为经济发展相对落后的郊区及乡村地区的湖泊。类型2包括3个湖泊,分别为岳阳市的南湖、咸宁市的黄盖湖以及鄂州市的梁子湖。类型3只包括了1个湖泊,为长江中游流域城市化与工业化最发达的武汉市中的东湖。基于聚类分析的3种类型湖泊沉积物中 PAHs 的组成特征如图3所示,3种类型湖泊沉积物中 PAHs 的苯环数组成具有一定的差异性与规律性。类型1湖泊沉积物中 PAHs 主要成分为低环(2~3环)PAHs,占比为64.04%±7.02%;类型2中 PAHs 低环和中环分布相对平均,分别为50.76%±5.17%和49.24%±5.17%;类型3中 PAHs 各环数分布相对平均,低环占比为35.35%±3.56%,中环占比为26.17%±0.45%,高环占比为38.48%±3.84%。从类型1到类型3湖泊沉积物中 PAHs 的组分呈现了一定的规律性,即低环 PAHs 占比逐渐下降,而中环与高环 PAHs 占比逐渐上升,总体以低环 PAHs 为主。低环 PAHs 占比较高可能是由于长江中游区域分布着大量农田,农业生产活动频繁,木材秸秆等生物质的低温不完全燃烧主要产生低环数 PAHs<sup>[42-43]</sup>,以及与近年来长江中游经济带的产业转型升级等绿色发展有关,如钢铁、有色金属及汽车等行业的清洁生产、节能减排等降低了中、高环 PAHs 比例的排放<sup>[44]</sup>。

## 3 讨论

### 3.1 影响沉积物中 PAHs 含量水平的因素

PAHs 的来源排放直接影响进入湖泊环境中 PAHs 的含量及组成,而 PAHs 的来源排放与能源消耗及人类活动密切相关,湖泊沉积物中 PAHs 的含量可能与一些社会经济数据相关,因此将各个湖泊沉积物中 PAHs 含量与其所在区域的能源消费量及车辆保有量进行相关性分析(表4)。能源消费量是指各种一次能源(煤碳、石油等)和二次能源(汽油、柴油等)消费的数量,被视为经济发展的同步指标,与城市化及工业化

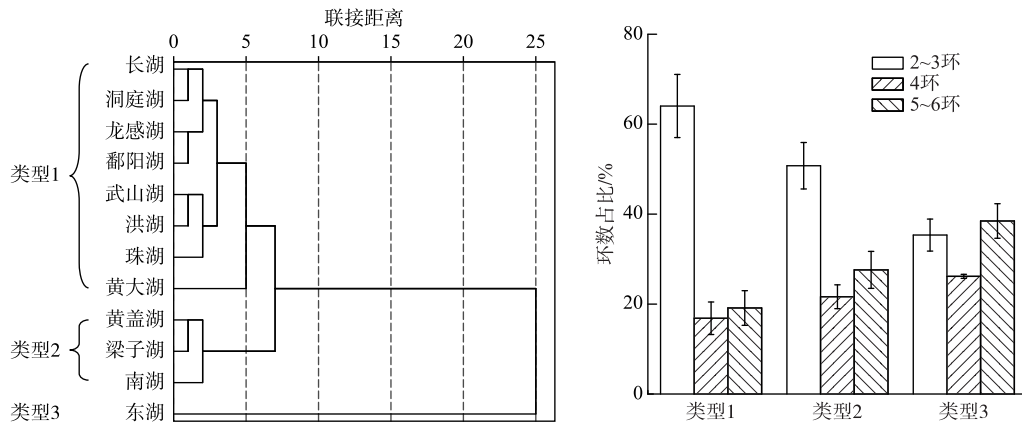


图3 长江中游流域湖泊聚类分析树状图及各类型湖泊沉积物中 PAHs 含量和组成

Fig.3 Cluster analysis tree diagram of lakes in the middle reaches of the Yangtze River and PAHs contents and composition diagram of each group type

进程密切相关. 结果表明, 沉积物中 PAHs 很大程度上受当地区域的经济程度影响. 车辆保有量及能源消费量与低环 PAHs 均无显著相关性, 与中环及高环 PAHs 在 0.01 水平上均呈现出正相关性. 本研究区域湖泊沉积物中主要为低环 PAHs, 能源消费量及汽车保有量与低环 PAHs 无显著相关性, 而与中环及高环 PAHs 有显著相关性的结果表明, 经济发展所消耗的能源和汽车保有量仅是影响该区域湖泊沉积物中中环及高环 PAHs 含量水平的重要因素, 但并不是影响该区域湖泊沉积物中 PAHs 含量水平的主要因素.

表 4 PAHs 含量与 TOC、水体指标、保有车辆及能源消费量相关性分析

Tab.4 Correlation analysis of PAHs content with TOC, water indexes, energy consumption, and vehicle stock

PAHs	TOC	pH	溶解氧	保有车辆	能源消费量
2~3 环	0.334 *	0.069	0.071	0.238	0.198
4 环	0.551 **	0.233	0.218	0.733 **	0.801 **
5~6 环	0.557 **	0.220	0.150	0.782 **	0.853 **
总 PAHs	0.580 **	0.208	0.171	0.714 **	0.766 **

\* 表示在 0.05 水平 (双侧) 上显著相关, \*\* 表示在 0.01 水平 (双侧) 上显著相关.

进入湖泊沉积物中的 PAHs 含量受很多因素的影响, 已有研究表明, 沉积物中 TOC 含量是影响 PAHs 在湖泊沉积物中归趋分布的重要因素<sup>[3,45]</sup>. 许多学者认为沉积物中 TOC 可以与 PAHs 中的芳香环发生键合作用, 从而影响 PAHs 在沉积物中的归趋<sup>[35,46]</sup>. 将沉积物样品中 PAHs 含量与沉积物中 TOC 含量及湖泊水体各项指标运用 Pearson 相关性分析发现, 沉积物中 TOC 含量与低环 PAHs 含量在 0.05 水平上呈现出正相关性, 与中高环 PAHs 及总 PAHs 含量在 0.01 水平上呈现出正相关性 (表 4). 而 pH 和溶解氧等水体指标与各环数 PAHs 含量之间均无显著相关性. 这表明, 沉积物中 TOC 含量是影响长江中游湖泊表层沉积物中 PAHs 含量水平的主要因素.

### 3.2 沉积物中 PAHs 的来源

PAHs 的来源包括自然源和人为源, 但主要来源是人为源, 这主要是由于能源燃料的燃烧, 如汽车发动机燃料燃烧、化石燃料发电、冶炼焦炭、生物质燃烧等化学燃烧过程和其他来源产生<sup>[40,42,47]</sup>. 不同环数的 PAHs 其来源也有所不同, 低环 PAHs 主要来源于石油产品的泄漏以及化石燃料和木材秸秆等生物质在低温条件下的不完全燃烧产生, 中高环 PAHs 则主要来源于化石燃料和木材等生物质在高温下的不完全燃烧产生<sup>[40,42,47]</sup>. 由图 3 所示, 本研究区域湖泊沉积物中低环数 PAHs 所占比例较高, 主要为石油源以及化石燃料和生物质的低温燃烧. 但仅仅通过 PAHs 的环数分布来判断其来源是较为浅显的方法, 故采用异构体比值法与主成分分析法相结合的办法来对该区域 PAHs 进行来源解析.

沉积物中单体 PAHs 含量的比值常被用来初步判断 PAHs 的来源, 由于各种 PAHs 在水溶性、吸附特性

等性质不同,其中环境中的稳定性也不同,因而选择具有相同物理化学性质的同分异构体比值来判断其来源<sup>[13,40-41,48-49]</sup>,如  $Fla/(Fla+Pyr)$ 、 $Ant/(Ant+Phe)$ 、 $BaA/(BaA+Chr)$  和  $InP/(InP+BghiP)$ 。  $Fla/(Fla+Pyr)$  小于 0.4 表示为石油源,大于 0.4 表示为煤炭、木材等生物质的不完全燃烧源。  $Ant/(Ant+Phe)$  小于 0.1 表示为石油源,大于 0.1 则表示为燃烧源。  $BaA/(BaA+Chr)$  小于 0.2 表示为石油源,0.2~0.35 之间为石油燃烧源,大于 0.35 为煤、木材等生物质燃烧源。  $InP/(InP+BghiP)$  小于 0.2 为石油源,0.2~0.5 之间为石油燃烧源,大于 0.5 则为煤炭、木材等生物质燃烧源。为分析长江中游流域湖泊沉积物中 PAHs 的来源,采用了这 4 种异构体比值对 PAHs 来源进行了分析,如图 4 所示。  $Fla/(Fla+Pyr)$  和  $Ant/(Ant+Phe)$  的比值表明,该区域湖泊沉积物中 PAHs 主要来源为煤炭和生物质的燃烧源。从聚类分析得到的三种类型湖泊上分析,类型 3 湖泊沉积物中 PAHs 的来源均为煤炭和生物质等燃烧源,而类型 1 和类型 2 湖泊沉积物中 PAHs 的主要来源为煤炭和生物质燃烧源,还有部分来源为石油源。  $BaA/(BaA+Chr)$  和  $InP/(InP+BghiP)$  的比值结果与  $Fla/(Fla+Pyr)$  和  $Ant/(Ant+Phe)$  的比值结果相一致。将异构体比值法的结果结合该区域 PAHs 的分布组成可以进一步得出,煤炭和木材秸秆等生物质的低温燃烧为长江中游流域湖泊沉积物中 PAHs 的主要来源。

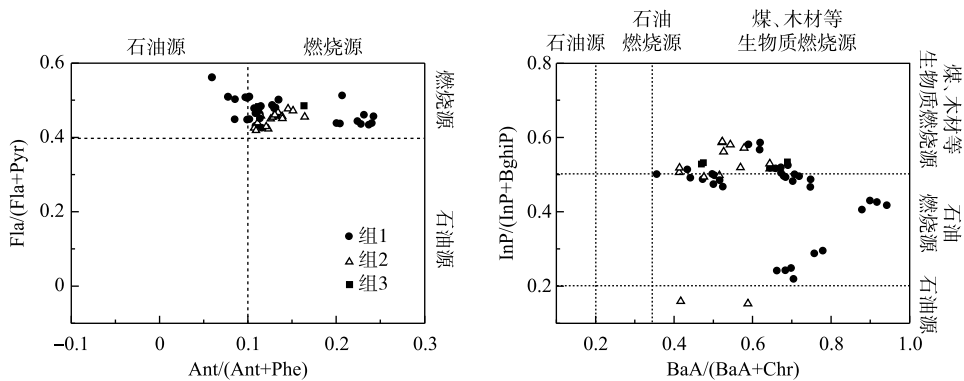


图 4 长江中游湖泊沉积物中 PAHs 同分异构体比值

Fig.4 Isomer ratios of PAHs in sediments of lakes in the middle reaches of the Yangtze River

为了进一步分析 PAHs 的来源,采用主成分分析法对 3 种类型湖泊沉积物中 16 种 PAHs 进行来源分析,结果如图 5 所示。3 种类型湖泊均提取了 2 个主成分,类型 1 两个成分的累计方差贡献率为 73.84%。主成分 1 方差贡献率为 61.51%,高载荷值为高环的 BaP、BaA、BghiP、BkF、Pyr、Chr、Fla 以及 InP。Pyr、Chr 被认为是煤炭燃烧的标志物<sup>[50]</sup>,因此,主成分 1 为煤、石油等化石燃料的燃烧源。主成分 2 方差贡献率为 12.33%,高载荷值为低环的 Ant、Flu 和 Phe,被认为是木材秸秆燃烧源<sup>[51]</sup>。因此,主成分 2 为木材秸秆等生物质低温燃烧源。类型 2 中两个成分的累计方差贡献率为 77.82%,主成分 1 的方差贡献率为 60.99%,载荷值高的为 Pyr、Acy、DahA、BkF、Fla 以及 BghiP、BkF 及 BghiP 被认为是汽油和柴油机的排放产物<sup>[50]</sup>,Pyr、DahA 被认为是煤炭燃烧的标志物<sup>[50]</sup>,而 Fla 被认为是焦炉排放物<sup>[50]</sup>,因此,主成分 1 为机动车和机动船等的尾气排放、煤炭燃烧及工业炼焦源。主成分 2 的方差贡献率为 16.83%,主要加权在 Nap、Ant 和 Flu,是木材秸秆等生物质燃烧的标志物<sup>[51]</sup>。因此,主成分 2 归类为木材秸秆等生物质的低温燃烧源。类型 3 中两个成分的累计方差贡献率为 100%,表明这两个主成分解释了该组中 PAHs 的全部来源。主成分 1 的方差贡献率为 74.74%,主要加权在 BbF、BkF、BaP、BaA 以及 Fla、BkF 和 BaA 为汽油及柴油机的排放产物<sup>[50]</sup>,Fla 被认为是焦炉排放物<sup>[50]</sup>。因此,主成分 1 归类为机动车和机动船等的尾气排放源及工业炼焦源。主成分 2 的方差贡献率为 25.26%,主要加权在 Phe、Nap 以及 Flu,这些是木材等生物质燃烧的标志物<sup>[51]</sup>。因此主成分 2 归类为木材等生物质低温燃烧源。主成分分析的结果显示,3 种类型湖泊中 PAHs 均含有煤炭及木材秸秆等生物质的低温燃烧源,这与该区域 PAHs 低环占比为主的分布特征及异构体比值的的结果相同,但主成分分析的结果显示类型 2 和类型 3 的湖泊沉积物中 PAHs 还包括机动车和机动船等燃烧汽油、柴油的尾气排放源及工业炼焦等化石燃料的高温燃烧源。



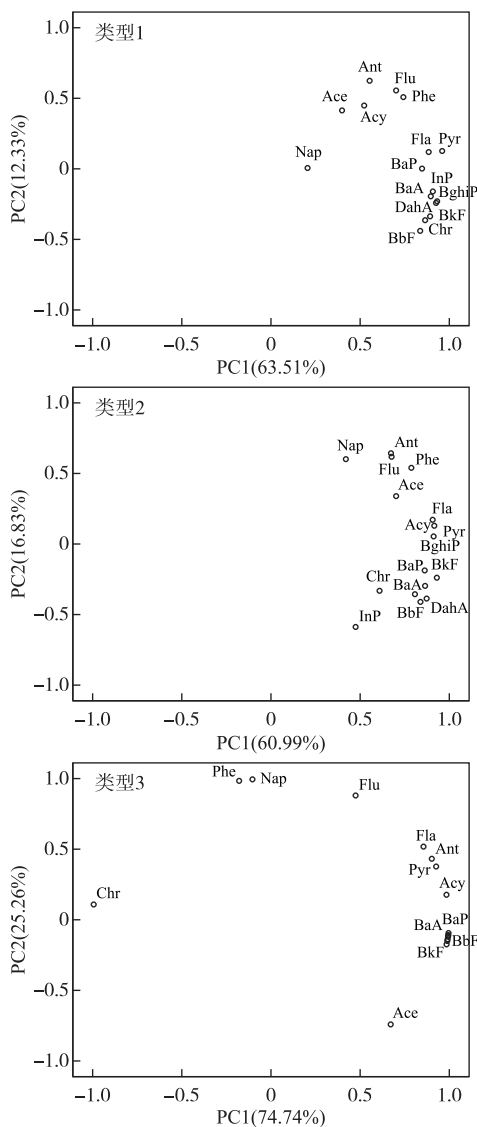


图5 长江中游3类湖泊沉积物中PAHs主成分载荷  
Fig.5 Principal component load diagram of PAHs in sediments of three types lakes in the middle reaches of the Yangtze River

综合该区域湖泊沉积物中 PAHs 的分布特征及异构体比值法和主成分分析法的结果表明,3 种类型湖泊沉积物中 PAHs 的主要来源均为煤炭、木材等生物质的低温燃烧源;类型 2 和类型 3 湖泊沉积物中 PAHs 还有机动车、机动船等燃烧汽油、柴油的尾气排放源及工业炼焦等化石燃料的高温燃烧源. 中国是世界上最大的煤炭生产国,绝大多数城镇依靠煤炭产业,以煤炭为主要燃料,然而因为其燃烧设施陈旧及维护不善,导致大量未经处理的 PAHs 等污染物进入大气当中. 随着工业化、城市化的快速发展,长江中下游流域的能源消耗严重依赖煤炭资源,中国国家统计局 2013 年数据显示,长江中下游流域煤炭消费占总能源消费量的 60% 以上,大量的煤炭消耗成为了该地区 PAHs 的主要来源<sup>[52]</sup>. 长江中游地区耕地面积占全国耕地面积的 9.25%,粮食总产量占全国粮食总产量的 12.64%,是中国重要的粮食产地及农业地区,但大部分地区农业机械化程度较低,养地重视不足,秸秆等生物质的不合理利用<sup>[43]</sup> 燃烧也成为了该地区 PAHs 的主要来源. 随着经济和社会的快速发展,中国的汽车保有量也在迅速增加,汽车的能源消耗已经成为影响我国石油消费的主要因素. 长江中下游流域地区作为我国经济最发达的地区之一,2014 年数据显示,在过去的 10 年里,其汽车平均增长率高达 15% 以上<sup>[53]</sup>. 因此,机动车燃烧汽油、柴油排放的大量尾气也是长江中游区域环境中 PAHs 的重要来源.

### 3.3 沉积物中 PAHs 的生态风险评价

应用 Kalf 等于 1997 年提出的风险商值法<sup>[54]</sup> (risk quotient,  $RQ$ ) 对长江中游流域湖泊沉积物中 PAHs 的生态风险进行评价. 这是一种简单且保守的生态风险表征方法,该方法通过计算每一种 PAH 的暴露含量与风险标准值的商,即风险商值,若风险商值大于 1,则认为该 PAH 具有潜在生态风险,且值越大,其潜在生态风险越大<sup>[54]</sup>. 其公式如下:

$$RQ = C_{PAHs} / C_{QV} \quad (1)$$

式中,  $C_{PAHs}$  为沉积物中 PAHs 的含量;  $C_{QV}$  为沉积物中相应的 PAHs 的风险标准值. Kalf 等<sup>[54]</sup> 在此基础上提出了可忽略风险含量 (negligible concentrations,  $NCs$ ) 和最高允许风险含量 (maximum permissible concentrations,  $MPCs$ ) 两个界限值,其公式如下:

$$RQ_{NCs} = C_{PAHs} / C_{QV(NCs)} \quad (2)$$

$$RQ_{MPCs} = C_{PAHs} / C_{QV(MPCs)} \quad (3)$$

式中,  $C_{QV(NCs)}$  为可忽略风险标准值;  $C_{QV(MPCs)}$  为最高允许风险标准值. Kalf 等主要提出了 10 种单体 PAHs 的生态风险标准值,2010 年曹治国等<sup>[55]</sup> 推断出了其他 6 种单体 PAHs (Acy, Ace, Flu, Pyr, BbF 和 DahA) 的生态风险标准值,如表 5 所示. 当  $RQ_{NCs}$  小于 1 时,表示沉积物中 PAHs 无生态风险;当  $RQ_{NCs}$  大于 1 且小于 800 而  $RQ_{MPCs}$  小于 1 时,表示 PAHs 有中等风险;当  $RQ_{NCs}$  远大于 800 或  $RQ_{MPCs}$  远大于 1 时,表示 PAHs 有很高风险,

必须立即采取措施进行生态修复. 长江中游湖泊沉积物中 PAHs 的风险商值及风险标准值如表 5 及图 6 所示, 单体 PAH 的  $RQ_{NCs}$  值除 Chr、BaP、InP、DahA 及 BghiP 外均大于 1, 而  $RQ_{MPCs}$  值除 Nap 外均小于 1, 表明长江中游流域单体 PAH 主要处于中等风险水平, 但是 Nap 的  $RQ_{MPCs}$  值大于 1, 处于较高风险水平, 需要加强对 Nap 输入来源的控制及污染修复. 从 PAHs 的总含量上看, 长江中游流域湖泊沉积物中 PAHs 的  $RQ_{NCs}$  值均小于 800, 且  $RQ_{MPCs}$  值大于 1, 长江中游流域湖泊沉积物中 PAHs 整体呈中等风险水平.

表 5 沉积物中单体 PAH 的  $RQ_{NCs}$  和  $RQ_{MPCs}$  均值  
Tab.5 Mean values of  $RQ_{NCs}$  and  $RQ_{MPCs}$  of individual PAH in the sediments

PAHs	NCs/(ng/g)	MPCs/(ng/g)	样点 PAHs 平均值/(ng/g)	$RQ_{NCs}$ 平均值	$RQ_{MPCs}$ 平均值
Nap	1.40	140	400.43	286.02	2.86
Acy	1.20	120	4.57	3.81	0.04
Ace	1.20	120	15.65	13.04	0.13
Flu	1.20	120	24.76	20.63	0.21
Phe	5.10	510	90.05	17.66	0.18
Ant	1.20	120	14.84	12.37	0.12
Pyr	1.20	120	74.63	62.19	0.62
Fla	26.00	2600	65.15	2.51	0.03
BaA	3.60	360	28.00	7.78	0.08
Chr	107.00	10700	23.14	0.22	0
BkF	24.00	2400	77.92	3.25	0.03
BaP	27.00	2700	24.57	0.91	0.01
BbF	3.60	360	26.67	7.41	0.07
InP	59.00	5900	47.60	0.81	0.01
DahA	27.00	2700	10.95	0.41	0
BghiP	75.00	7500	47.50	0.63	0.01
Σ PAHs	—	—	976.45	471.74	4.72

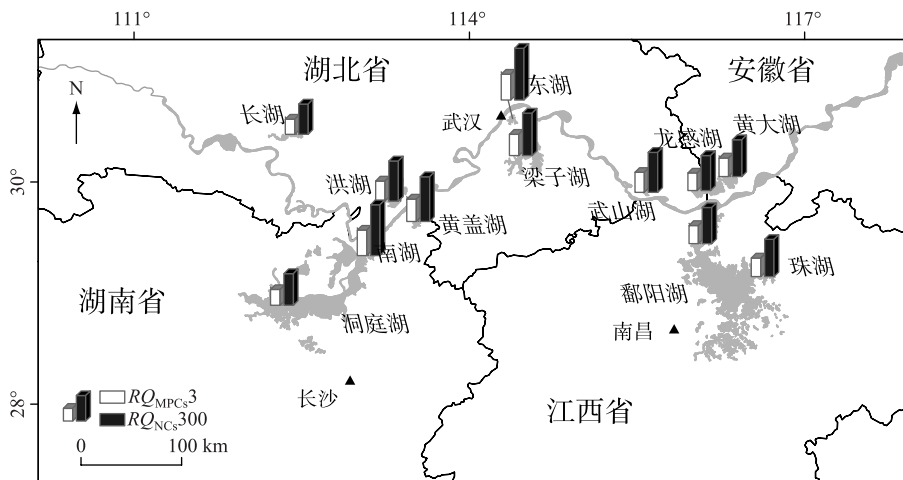


图 6 长江中游湖泊沉积物中总 PAHs 风险商值

Fig.6 Risk quotient of total PAHs in the sediments from lakes along the middle reaches of the Yangtze River

#### 4 结论

1) 长江中游流域湖泊沉积物中 PAHs 的总含量范围介于 572.7~1766.2 ng/g(dw) 之间, 均值为 976.5±

285.0 ng/g(dw),与国内外其他地区湖泊沉积物相比,长江中游地区湖泊沉积物中 PAHs 含量总体处于较高水平. 与该区域之前的研究相比,本次研究长江中游地区湖泊沉积物中 PAHs 含量有不同程度的增加.

2)当地的能源消费量及汽车保有量仅与中环及高环 PAHs 有良好的相关性的结果表明,能源消费量及车辆保有量仅是影响该区域湖泊沉积物中中环及高环 PAHs 含量水平的重要因素. 湖泊沉积物中 TOC 含量与低环 PAHs、中高环 PAHs 及总 PAHs 含量均有良好的正相关关系表明,沉积物中 TOC 含量是影响长江中游湖泊沉积物中 PAHs 含量水平的主要因素.

3)长江中游湖泊沉积物中 PAHs 的来源包括煤炭、木材等生物质的燃烧以及机动车和机动船等燃烧汽油、柴油的尾气排放源等. 该区域不同湖泊沉积物中 PAHs 来源具有一定的差异性,总体而言,煤炭、木材等生物质的低温燃烧是该区域湖泊沉积物中 PAHs 的主要来源. 风险商值法结果表明长江中游地区 PAHs 处于中等风险水平,仍需要长期监测与保护.

致谢:感谢中国科学院南京地理与湖泊研究所周永强、陈业和季鹏飞等同志在样品采集过程中提供的大力帮助.

## 5 附录

附录见电子版(DOI: 10.18307/2020.0606.)

## 6 参考文献

- [ 1 ] Zhi H, Zhao ZH, Zhang L. The fate of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and organochlorine pesticides (OCPs) in water from Poyang Lake, the largest freshwater lake in China. *Chemosphere*, 2015, **119**: 1134-1140. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2014.09.054.
- [ 2 ] Ning Y, Ke YC, Deng JC *et al.* Distribution and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surface sediment in Lake Chaohu. *J Lake Sci*, 2012, **24**(6): 891-898. DOI: 10.18307/2012.0612. [宁怡, 柯用春, 邓建才等. 巢湖表层沉积物中多环芳烃分布特征及来源. 湖泊科学, 2012, **24**(6): 891-898.]
- [ 3 ] Wang CL, Zou XQ, Zhao YF *et al.* Distribution, sources, and ecological risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the water and suspended sediments from the middle and lower reaches of the Yangtze River, China. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(17): 17158-17170. DOI: 10.1007/s11356-016-6846-3.
- [ 4 ] Liu BB, Chen L, Zhang Y. Adsorption characteristics and influencing factors of polycyclic aromatic hydrocarbons on mangrove sediments. *Environmental Chemistry*, 2011, **30**(12): 2032-2040. [刘贝贝, 陈丽, 张勇. 典型多环芳烃在红树林沉积物上的吸附特性及影响因素. 环境化学, 2011, **30**(12): 2032-2040.]
- [ 5 ] Sarria-Villa R, Ocampo-Duque W, Páez M *et al.* Presence of PAHs in water and sediments of the Colombian Cauca River during heavy rain episodes, and implications for risk assessment. *Science of the Total Environment*, 2016, **540**: 455-465. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2015.07.020.
- [ 6 ] Liu XD, Hou ZF, Meng JJ *et al.* Sources analysis and health risk assessment of PAHs in the PM<sub>2.5</sub> during winter in Liaocheng city. *Environmental Science*, 2019, **40**(9): 3875-3885. DOI: 10.13227/j.hjxx.201902032. [刘晓迪, 侯战方, 孟静静等. 聊城市冬季 PM<sub>2.5</sub> 中多环芳烃来源解析及健康风险评估. 环境科学, 2019, **40**(9): 3875-3885.]
- [ 7 ] Yu RL, Zheng Q, Liu XR *et al.* Sources analysis and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the PM<sub>2.5</sub> fraction of fugitive dust in Nanchang city. *Environmental Science*, 2019, **40**(4): 1656-1663. DOI: 10.13227/j.hjxx.201809106. [于瑞莲, 郑权, 刘贤荣等. 南昌市扬尘 PM<sub>2.5</sub> 中多环芳烃的来源解析及健康风险评价. 环境科学, 2019, **40**(4): 1656-1663.]
- [ 8 ] Li QY, Zhao ZH, Jiang Y *et al.* Vertical distribution characteristics of organochlorine pesticides and polycyclic aromatic hydrocarbons in a sedimentary core from Zhouxi Bay, Lake Poyang. *J Lake Sci*, 2016, **28**(4): 765-774. DOI: 10.18307/2016.0409. [郇倩玉, 赵中华, 蒋豫等. 鄱阳湖周溪湾沉积物中有机氯农药和多环芳烃的垂直分布特征. 湖泊科学, 2016, **28**(4): 765-774.]
- [ 9 ] Wang CH, Wu SH, Zhou SL *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in soils from urban to rural areas in Nanjing: Concentration, source, spatial distribution, and potential human health risk. *Science of the Total Environment*, 2015, **527-528**: 375-383. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2015.05.025.

- [10] Qin BQ. Preliminary study on the mechanism and control of eutrophication of shallow lakes in the middle and lower reaches of the Yangtze River. *J Lake Sci*, 2002, **14**(3): 193-202. DOI: 10.18307/2002.0301. [秦伯强. 长江中下游浅水湖泊富营养化发生机制与控制途径初探. 湖泊科学, 2002, **14**(3): 193-202.]
- [11] Li FS, Han C, Cao JJ *et al.* Distribution and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from the Anqing section of the Yangtze River and adjacent lakes. *Environmental Chemistry*, 2016, **35**(4): 739-748. [李法松, 韩铖, 操璟璟等. 长江安庆段及毗邻湖泊沉积物中多环芳烃分布及风险评价. 环境化学, 2016, **35**(4): 739-748.]
- [12] Zhao ZH, Zhang L, Wu JL. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and organochlorine pesticides (OCPs) in sediments from lakes along the middle-lower reaches of the Yangtze River and the Huaihe River of China. *Limnology and Oceanography*, 2016, **61**(1): 47-60. DOI: 10.1002/lno.10197.
- [13] Li SY, Tao YQ, Yao SC *et al.* Distribution, sources, and risks of polycyclic aromatic hydrocarbons in the surface sediments from 28 lakes in the middle and lower reaches of the Yangtze River region, China. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(5): 4812-4825. DOI: 10.1007/s11356-015-5705-y.
- [14] Gu YH, Lv JH. Analysis on the problems and countermeasures in the coordinated development of urban agglomeration in the middle reaches of the Yangtze river. *Economic Review Journal*, 2017, (12): 117-122. [谷玉辉, 吕宇航. 长江中游城市群协调发展存在的问题及对策探析. 经济纵横, 2017, (12): 117-122.]
- [15] Xie MS, Liu WM, Wang M. An empirical analysis of the relationship between environmental pollution and economic growth in urban agglomeration in the middle reaches of the Yangtze River. *Jiangxi Social Sciences*, 2019, **39**(1): 66-76. [谢谋盛, 刘伟明, 王明. 长江中游城市群环境污染与经济增长关系的实证分析. 江西社会科学, 2019, **39**(1): 66-76.]
- [16] Ma RH ed. Atlas of lake distribution in China. Beijing: Science Press, 2015: 126-130. [马荣华. 中国湖泊分布地图集. 北京: 科学出版社, 2015: 126-130.]
- [17] Jingzhou Bureau of Statistics ed. Jingzhou Statistical Yearbook. Beijing: China Statistics Press, 2017. [荆州市统计局. 荆州统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 2017.]
- [18] Qianjiang Bureau of Statistics ed. Qianjiang Statistical Yearbook. Qianjiang: Qianjiang Bureau of Statistics, 2016. [潜江市统计局. 潜江统计年鉴. 潜江: 潜江统计局, 2016.]
- [19] Hunan Bureau of Statistics ed. Hunan Statistical Yearbook. Beijing: China Statistics Press, 2018. [湖南省统计局. 湖南统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 2018.]
- [20] Xianning Bureau of Statistics ed. Xianning Statistical Yearbook. Beijing: China Statistics Press, 2018. [咸宁市统计局. 咸宁统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 2018.]
- [21] Wuhan Bureau of Statistics ed. Wuhan Statistical Yearbook. Beijing: China Statistics Press, 2017. [武汉市统计局. 武汉统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 2017.]
- [22] Ezhou Bureau of Statistics ed. Ezhou Statistical Yearbook. Ezhou: Ezhou Bureau of Statistics, 2018. [鄂州市统计局. 鄂州统计年鉴. 鄂州: 鄂州市统计局, 2018.]
- [23] Huanggang Bureau of Statistics ed. Huanggang Statistical Yearbook. Beijing: China Statistics Press, 2018. [黄冈市统计局. 黄冈统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 2018.]
- [24] Jiangxi Bureau of Statistics ed. Jiangxi Statistical Yearbook. Beijing: China Statistics Press, 2017. [江西省统计局. 江西统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 2017.]
- [25] Anqing Bureau of Statistics ed. Anqing Statistical Yearbook. Beijing: China Statistics Press, 2017. [安庆市统计局. 安庆统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 2017.]
- [26] Gu YG, Li HB, Lu HB. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surface sediments from the largest deep plateau lake in China: Occurrence, sources and biological risk. *Ecological Engineering*, 2017, **101**: 179-184. DOI: 10.1016/j.ecoeng.2017.02.007.
- [27] Wang XP, Yang HD, Gong P *et al.* One century sedimentary records of polycyclic aromatic hydrocarbons, mercury and trace elements in the Qinghai Lake, Tibetan Plateau. *Environmental Pollution*, 2010, **158**(10): 3065-3070. DOI: 10.1016/j.envpol.2010.06.034.
- [28] Song SJ, Huang T, Zhou S *et al.* Spatial and temporal distribution, sources, and ecological risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments of the Bosten Lake watershed. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(8): 2780-2790. DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2019.0089. [宋世杰, 黄韬, 周胜等. 博斯腾湖流域沉积物中多环芳烃的时空分布、

- 来源及生态风险评价. 环境科学学报, 2019, **39**(8): 2780-2790.]
- [29] Kang J, Hu J, Zhu ZZ *et al.* Distribution, source and risk assessment of PAHs in surface sediments from Lake Taihu and its surrounding rivers. *China Environmental Science*, 2017, **37**(3): 1162-1170. [康杰, 胡健, 朱兆洲等. 太湖及周边河流表层沉积物中 PAHs 的分布、来源与风险评价. 中国环境科学, 2017, **37**(3): 1162-1170.]
- [30] Kannan K, Johnson-Restrepo B, Yohn SS *et al.* Spatial and temporal distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from Michigan Inland Lakes. *Environmental Science & Technology*, 2005, **39**(13): 4700-4706. DOI: 10.1021/es050064f.
- [31] Ko FC, Baker J, Fang MD *et al.* Composition and distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in the surface sediments from the Susquehanna River. *Chemosphere*, 2007, **66**(2): 277-285. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2006.05.033.
- [32] Debruyjn JM, Mead TJ, Wilhelm SW *et al.* PAH biodegradative genotypes in Lake Erie sediments: Evidence for broad geographical distribution of Pyrene-Degrading Mycobacteria. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(10): 3467-3473. DOI: 10.1021/es803348g.
- [33] Yang HJ, Zhang HT, Liu YB *et al.* Distribution, assessment and sources analysis of persistent organic toxic chemicals in sediments of Dongting Lake. *China Environmental Science*, 2017, **37**(4): 1530-1539. [杨海君, 张海涛, 刘亚宾等. 洞庭湖沉积物中持久性有机有毒物质的分布、评价与源解析. 中国环境科学, 2017, **37**(4): 1530-1539.]
- [34] Zhang M, Tang FL, Wu ZX *et al.* Pollution characteristics and ecological risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surface sediments from Qiandao Lake. *China Environmental Science*, 2014, **34**(1): 253-258. [张明, 唐访良, 吴志旭等. 千岛湖表层沉积物中多环芳烃污染特征及生态风险评价. 中国环境科学, 2014, **34**(1): 253-258.]
- [35] Yuan HZ, Zhang EL, Lin Q *et al.* Sources appointment and ecological risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in sediments of Erhai Lake, a low-latitude and high-altitude lake in southwest China. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(5): 4430-4441. DOI: 10.1007/s11356-015-5626-9.
- [36] Hu XY, Gao BL, Chen T *et al.* Distribution of 16 polycyclic aromatic hydrocarbons in Dianchi Lake surface sediments after the integrated water environment control project. *Environmental Science*, 2019, **40**(8): 3501-3508. DOI: 10.13227/j.hjxx.201901113. [胡昕怡, 高冰丽, 陈坦等. 截污调水后滇池表层沉积物中 16 种 PAHs 的分布特征. 环境科学, 2019, **40**(8): 3501-3508.]
- [37] Zhang K. Pollution history and source analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments of Hulun Lake and Chagan Lake [Dissertation]. Harbin: Harbin Normal University, 2019. [张科. 呼伦湖和查干湖沉积物多环芳烃污染历史与来源分析[学位论文]. 哈尔滨: 哈尔滨师范大学, 2019.]
- [38] Bao KS, Zaccone C, Tao YQ *et al.* Source apportionment of priority PAHs in 11 lake sediment cores from Songnen Plain, Northeast China. *Water Research*, 2020, **168**: 115158. DOI: 10.1016/j.watres.2019.115158.
- [39] Yang RQ, Xie T, Li A *et al.* Sedimentary records of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in remote lakes across the Tibetan Plateau. *Environmental Pollution*, 2016, **214**: 1-7. DOI: 10.1016/j.envpol.2016.03.068.
- [40] Ma XH, Han XX, Jiang QL *et al.* Historical records and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons over the past 100 years in Dianchi Lake, a plateau lake in southwest China. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2018, **75**(2): 187-198. DOI: 10.1007/s00244-018-0525-y.
- [41] Chang J, Zhang EL, Liu EF *et al.* A 60-year historical record of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) pollution in lake sediment from Guangxi Province, Southern China. *Anthropocene*, 2018, **24**: 51-60. DOI: 10.1016/j.ancene.2018.11.003.
- [42] Khanal R, Furumai H, Nakajima F *et al.* Carcinogenic profile, toxicity and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons accumulated from urban road dust in Tokyo, Japan. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, **165**: 440-449. DOI: 10.1016/j.ecoenv.2018.08.095.
- [43] Huang GQ, Zhou Q, Chen F *et al.* The sustainable development strategy of rice production in the middle reaches of Yangtze River. *Research of Agricultural Modernization*, 2018, **39**(1): 28-36. DOI: 10.13872/j.1000-0275.2017.0128. [黄国勤, 周泉, 陈阜等. 长江中游地区水稻生产可持续发展战略研究. 农业现代化研究, 2018, **39**(1): 28-36.]
- [44] Liu Y, Hu YD. Research progress and development trend of urban agglomeration industry in the middle reaches of Yangtze river. *Urban Studies*, 2016, **23**(10): 21-26. [刘媛, 胡忆东. 长江中游城市群产业研究进展及其发展趋势. 城市发展研究, 2016, **23**(10): 21-26.]

- [45] Zhang JM, Liu GJ, Wang RJ *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in the water-SPM-sediment system from the middle reaches of Huai River, China: Distribution, partitioning, origin tracing and ecological risk assessment. *Environmental Pollution*, 2017, **230**: 61-71. DOI: 10.1016/j.envpol.2017.06.012.
- [46] Kannan K, Hilscherova K, Imagawa T *et al.* Polychlorinated naphthalenes, -biphenyls, -dibenzo-p-dioxins, and -dibenzofurans in double-crested cormorants and herring gulls from Michigan waters of the Great Lakes. *Environmental Science & Technology*, 2001, **35**(3): 441-447. DOI: 10.1021/es0013374.
- [47] Cheng SY, Ma XH, Wan HB *et al.* Vertical distribution and source analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from Songhuaba reservoir in Kunming city. *Research of Environmental Sciences*, 2019, **32**(4): 593-600. [成淑妍, 马晓华, 万宏滨等. 昆明松华坝水库沉积物中多环芳烃的垂直分布特征及来源. 环境科学研究, 2019, **32**(4): 593-600.]
- [48] Sun RX, Sun Y, Li QX *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments and marine organisms: Implications of anthropogenic effects on the coastal environment. *Science of the Total Environment*, 2018, **640-641**: 264-272. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2018.05.320.
- [49] 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. *Organic Geochemistry*, 2002, **33**(4): 489-515. DOI: 10.1016/S0146-6380(02)00002-5.
- [50] Larsen RK, Baker JE. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere: a comparison of three methods. *Environmental Science & Technology*, 2003, **37**(9): 1873-1881. DOI: 10.1021/es0206184.
- [51] Khalili NR, Scheff PA, Holsen TM. PAH source fingerprints for coke ovens, diesel and gasoline engines, highway tunnels, and wood combustion emissions. *Atmospheric Environment*, 1995, **29**(4): 533-542. DOI: 10.1016/1352-2310(94)00275-P.
- [52] National Bureau of Statistics of the People's Republic of China ed. China Statistical Yearbook. Beijing: China Statistics Publishing House, 2013. [中华人民共和国国家统计局. 中国统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 2013.]
- [53] National Bureau of Statistics of the People's Republic of China ed. Summary of Chinese statistics. Beijing: China Statistics Publishing House, 2014. [中华人民共和国国家统计局. 中国统计摘要. 北京: 中国统计出版社, 2014.]
- [54] Kalf DF, Crommentuijn T, Plassche EJVD. Environmental quality objectives for 10 polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). *Ecotoxicology Environmental Safety*, 1997, **36**(1): 89-97. DOI: 10.1006/eesa.1996.1495.
- [55] Cao ZG, Liu JL, Wang XM *et al.* Pollution characteristics, ecological risk assessment and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surface water from the Zhangweinan River. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2010, **30**(2): 254-260. [曹治国, 刘静玲, 王雪梅等. 漳卫南运河地表水中溶解态多环芳烃的污染特征、风险评价与来源辨析. 环境科学学报, 2010, **30**(2): 254-260.]

## 附录 I 各 PAH 组分的回收率及检测限

Appendix I Results of recovery and detection limit for each PAH compounds

PAH 组分	相对标准偏差/%	平均回收率/%	方法检出限/(ng/g)
Nap	8.82	77.13	0.08
Acy	4.12	91.83	0.16
Ace	4.24	86.45	0.34
Flu	2.50	94.78	0.29
Phe	1.50	97.35	0.23
Ant	2.62	104.74	0.29
Fla	1.62	98.30	0.29
Pyr	1.87	97.82	0.46
BaA	2.03	96.63	0.23
Chr	1.85	101.33	0.37
BbF	1.96	99.27	0.63
BkF	1.91	88.27	0.65
BaP	2.32	104.13	0.41
InP	2.54	110.74	0.66
DahA	3.00	103.78	0.78
BghiP	2.24	102.08	0.63