锦州湾表层沉积物正构烷烃特征参数研究

李泽利,马启敏*,程海鸥,徐绍箐
(中国海洋大学环境科学与工程学院油指纹与沉积物实验室,青岛 266100)

摘要: 研究了锦州湾沉积物中正构烷烃的含量、组成特征、特征比值及其来源. 采集 18 个站位的表层沉积物样品,经正己烷/二氯甲烷(体积比1:1)混合液索氏提取、净化浓缩后进行 GC-MS 分析. 结果表明,正构烷烃含量($\sum$ *n*-Alk)范围 1.9 ~ 4.2 μg·g^{-1},平均值 2.6 μg·g^{-1},各个站位组成特征相似,都表现为双峰型,显示了陆源与海源双重贡献特征. $\sum C_{25\sim31}$ 贡献值为 20% ~ 32%,短/长链比值 *L/H* 均值为 0.67,C_{31}/C_{19}均值 3.06,类脂物比值 TAR 均值为 2.02,3 个参数显示锦州湾沉积物外来源陆源贡献值要大于海洋源,特别是 2、3 和 7 站位受到陆源河流输入影响较大. 碳优势指数 CPI 范围 1.19 ~ 2.63,均值 1.73,接近于 1; 姥鲛烷和植烷比值 Pr/Ph 为 0.91 ~ 1.28; 样品中普遍存在不可分离化合物 UCM,*U/R* 比值为 2.2 ~ 4.3,此 3 个参数显示出 13 和 15 站位有石油输入特征. 多种特征参数比值综合分析表明该海域受到了陆源输入和石油烃污染的威胁,这可能与锦州湾地区河流排污、港口航运有关.

关键词: 锦州湾; 沉积物; 正构烷烃; 碳优势指数; 姥鲛烷; 植烷; 不可分离化合物
中图分类号: X834 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2011)11-3300-05

Normal Alkanes Characteristic Parameters of Jinzhou Bay Surface Sediments

LI Ze-li, MA Qi-min, CHENG Hai-ou, XU Shao-qing
(Laboratory on Oil Fingerprints and Sediments, College of Environmental Science and Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, China)

Abstract: The concentration, composition and characteristic parameters of 18 surface sediment samples collected from Jinzhou Bay were studied. The samples were soxhlet-extracted with a mixture of 1:1 (*V/V*) dichloromethane-hexane and analyzed by GC-MS after purification and concentration. Concentrations of *n*-alkanes vary from 1.9 to 4.2 μg·g^{-1} with an average value of 2.6 μg·g^{-1} dry weight. *n*-Alkanes distribution patterns of all positions were characterized by double peak-cluster, which means double sources from terrestrial and marine origin. The sum of nC_{25} to nC_{31} accounts for 20%-32% of the total *n*-alkanes, while the average value of *L/H*, C_{31}/C_{19}, TAR ratio are 0.67, 3.06, 2.02, respectively. All of these three indices suggest that the terrestrial contributions are higher than marine sources, especially for No. 2, 3 and 7 stations, which were influenced by riverinput nearby. Carbon Preference Index (CPI) ranges from 1.19 to 2.63 with an average value of 1.73, which is close to 1; the ratio of Pristane/Phytane (Pr/Ph) and unresolved/resolved compounds (*U/R*) range from 0.91 to 1.28, 2.2 to 4.3, respectively. All of these three parameters indicate that No. 13 and 15 stations are influenced by petroleum pollution. Comprehensive analysis of various parameters shows that Jinzhou Bay is threatened by both terrestrial inputs and petroleum hydrocarbons contaminations, which may relate to river discharging and port shipping in Jinzhou Bay.

Key words: Jinzhou Bay; sediments; *n*-Alkanes; carbon preference index (CPI); Pristane; Phytane; UCM

正构烷烃(*n*-Alks)是海洋表层沉积物中普遍存在的物质,它们主要来源于海洋浮游生物、陆生高等植物、化石燃料燃烧及其产物或者石油烃污染输入[1],其组成和分布特征常用来进行污染源识别,国内外对此已有大量报道[2~6]. 随着研究的深入,学者们不仅关注正构烷烃的浓度水平、组成特征,而且利用特征参数和比值进行源解析逐渐成为研究的热点,Colombo 等[7] 提出了主峰碳 MH、低/分高分子量比值 *L/H*、正构烷烃总量/C_{16}来判断脂肪烃来源,Mazurek 等[8] 采用不可分离 UCM 和完全分离 *R* 评价油污染程度. 我国学者 Hu 等[9] 通过对 CPI 和 UCM 等参数的研究,解析了渤海表层沉积物中脂肪烃的来源,结果显示东营黄河口、天津海河河口正构烷烃高值区分别是由于胜利油田、天津港航运及海河排污造成的. 比值法应用起来比较简单,但是在实际应用中,有的比值可能不适宜所研究的区域,简单利用一、两个特征比值进行来源分析存在一定的片面性,因此本研究同时应用多种特征参数,结合所研究区域的实际情况来判断和识别污染物的来源,以期使结果更具科学性和准确性.

收稿日期: 2011-01-05; 修订日期: 2011-03-11
基金项目: 国家海洋局(908)专项(908-02-02-03)
作者简介: 李泽利(1984 ~),男,硕士研究生,主要研究方向为环境化学,E-mail: lizeli8633261@126.com
* 通讯联系人, E-mail: maqimin@ouc.edu.cn

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

锦州湾位于葫芦岛市东部,是一个三面靠陆一面临海的浅水海湾,已有关于锦州湾沉积物中多环芳烃的报道[10],但对于该海域正构烷烃的研究十分有限. 本研究通过对该海域正构烷烃分布类型和多种特征参数的分析,探讨了湾内表层沉积物中正构烷烃的来源,以期为污染控制和治理、区域可持续发展提供基础数据和材料.

1　材料与方法

1.1　样品采集

2009 年 8 月在锦州湾近岸海域布设了 18 个调查站位,站点位置如图 1 所示. 用抓泥斗抓取表层沉积物(0 ~ 5 cm)样品,放入棕色玻璃瓶中用冰块冷藏运回实验室,在分析之前于 -20℃冷冻保存.

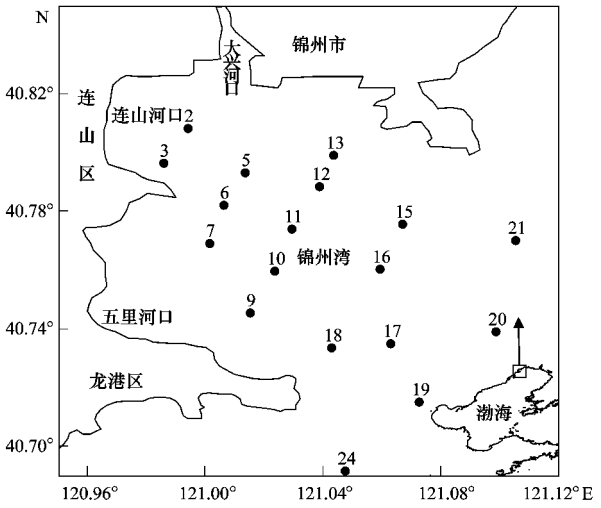

图 1　锦州湾地理位置及采样站位示意

Fig. 1　Location of sampling stations in Jinzhou Bay, Bohai Sea

1.2　样品处理与仪器分析

索氏提取: 沉积物样品自然风干后研磨过 100 目筛,称取约 20.0 g 沉积物样品,加入回收率指示物,用抽提好的滤纸包好后置于索氏提取器中,加入 150 mL 的正己烷-二氯甲烷(体积比, 1∶1)索氏提取 24 h(水浴锅温度 72℃,保证每小时回流 5 ~ 6 次),提取后加入 0.5 g 铜粉,静置过夜脱硫. 提取物经无水 Na_2SO_4 过滤后,旋转蒸发浓缩至 2 mL 左右.

柱净化: 用玻璃吸管将浓缩液全部转移到硅胶-氧化铝层析柱中[11],用 20 mL 正己烷淋洗出脂肪烃,将收集到的组分旋转蒸发至近干,用正己烷作溶剂转移出来,氮吹浓缩至 1 mL,转移至样品瓶中待测. 实验所用玻璃器皿和无水 Na_2SO_4 都在马弗炉中 450℃灼烧 6 h,所用有机试剂均为色谱纯.

色谱分析: 采用 Agilent 气相色谱-质谱联用仪 HP6890GC-HP5975MSD,HP-5 毛细管色谱柱(30 m × 0.32 mm × 0.25 μm); ①色谱条件: 初始温度 50℃保持 2 min,再以 6℃·min^{-1} 升到 300℃,保持 16 min; 载气为高纯 He,流速 1.6 mL·min^{-1}; 进样量为 1 μL,柱头压 94.9 kPa,进口温度为 250℃,不分流进样,恒流进样模式. ②质谱条件: 接口温度 250℃,离子源温度 230℃,四极杆温度 150℃,电离能 70 eV,溶剂延迟 3 min,扫描范围 50.00 ~ 500.00 u; 以 SIM 方式,选取 m/z 为 57、71、85,对样品进行分析. 根据组分保留时间定性,外标法定量.

质量控制实验: 空白实验结果可检测到少量低碳数烷烃组分,计算时给予扣除; 精密度实验所得保留时间的 RSD 在 0.01% ~ 0.05% 之间,均小于 0.5%; 样品回收率范围为 73.9% ~ 112.0%,符合 US EPA 标准(70% ~ 120%)的要求,各目标化合物的定量结果未经回收率校正. 按照空白样品中仪器基线峰的 3 倍来定义仪器检出限,可得出仪器对正构烷烃各个组分的检出限在 0.002 ~ 0.044 ng·g^{-1} 之间.

2　结果与讨论

2.1　正构烷烃含量和组成特征

正构烷烃含量: 调查各个站位正构烷烃的总量($\sum n$-Alk)范围为 1.9 ~ 4.2 μg·g^{-1},平均值为 2.6 μg·g^{-1},其中 2、3 站位含量较高,这可能是受连山河、大兴河陆源输入及沿岸生活污水输入的影响,同时其东侧锦州港的地理位置不利于该处水交换; 19 站位出现高值,与该点较高有机质碳含量(0.67%)有关. 其余站位无明显差异,与国内外海湾的研究结果相比,正构烷烃含量不高,与埃及亚利山大港(1.40 ~ 2.51 μg·g^{-1})接近[12]. 其中 $\sum C_{25\sim31}$ 含量的范围是 0.42 ~ 1.23 μg·g^{-1},约占总量的 20% ~ 32%.

组成特征: 锦州湾各个站位峰型十分相似,表明了所研究区域的表层沉积物的来源基本一致. 碳数范围为 C_8 ~ C_{38},表现为"双峰"型: ①前峰主峰碳(MH)为 $C_{16}/C_{17}/C_{18}$,奇偶优势不明显,这符合浮游生物和细菌的输入特征,海藻和水生光合作用细菌形成的正构烷烃以 C_{17} 同系物为主[13]; 然而并不排除来自于原油、汽车尾气或化石燃料的不完全燃烧产物正构烷烃的干扰,该来源主峰碳数中等,不具有明显的奇偶优势[14],且主峰碳 C_{16} 是大多数原油样品中正构烷烃的特征[15]. 本研究海域沿岸为东北老

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

工业区,经济发达,锦西石化等企业通过五里河向湾内排放的大量含油废水,锦州港航运活动及溢油都可能会对沉积物造成污染. ②后峰 MH 为 $C_{27}/C_{29}/C_{31}$,奇碳占优势,且 $\sum C_{25\sim31}$ 贡献值约为 20% ~ 32%,指示了陆生高等植物输入来源[4]. 图 2 为 6 号站位的 GC-MS 谱图,代表了锦州湾表层沉积物正构烷烃的峰型特点,双峰型显示了陆源和水生生物共存特征,这与我国一些海区的研究报道相似,如长江河口[14]和南沙海域[16].

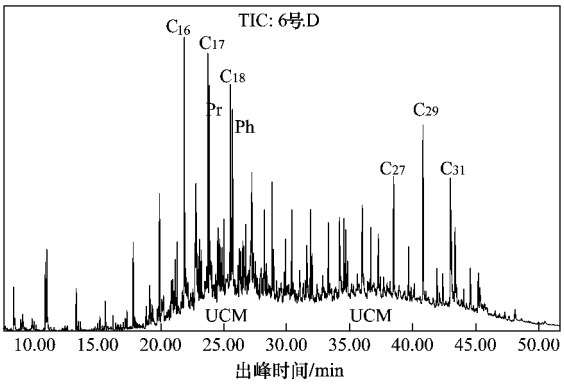

图 2 6 号站位 GC-MS 谱图

Fig. 2 GC-MS chromatograms of No. 6 site

2.2 正构烷烃特征参数及来源解析

许多学者利用典型的地球化学特征比值对正构烷烃的来源进行了解析,表 1 列出了锦州湾正构烷烃的特征参数计算结果.

CPI 是评价海洋沉积物正构烷烃来源的一个常用参数,不同来源的正构烷烃有着不同的 CPI 范围. 陆生植物表皮蜡质其特有的 CPI 比值为 4 ~ 10; 来源于原油和人为活动如汽车尾气排放、化石燃料燃烧的正构烷烃 CPI 值接近于 1[3]. 本研究中锦州湾表层沉积物 CPI 范围 1.19 ~ 2.63,均值 1.73. 这个比值远小于 4,很接近于 1,这可能是混合来源的结果,即石化污染系列和陆源高等植物输入正构烷烃按一定比例混合作用的结果. 13 和 15 站位 CPI 明显低于其他站位,分别为 1.25 和 1.19,这是由于这 2 个站位距离港口很近,是船舶入锦州港的航道所致. 与中国的其他海域研究结果相比,锦州湾正构烷烃 CPI 比值远小于渤海沉积物的 4.0 ~ 5.9[9],略低于黄海的沉积物平均值 1.9[17]. 2 个受人类活动影响并且沉积物原始特性极大改变的海湾,CPI 分别为胶州湾 0.9 ~ 2.0,均值 1.3[18]; 大亚湾 1.6 ~ 2.9,均值 2.4[4],相比表明锦州湾沉积物受到外来污染程度要高于大亚湾,低于胶州湾.

表 1 正构烷烃浓度和各个参数计算值[1)]

Table 1 Concentrations of *n*-Alkanes and calculated distribution indexes in surface sediment samples of Jinzhou Bay

站位	MH	$\sum$ *n*-Alk	$\sum C_{25\sim31}$	$\sum$ *n*-Alk /C_{16}	*L/H*	TAR	CPI	C_{31}/C_{19}	Pr/Ph	*U/R*
2	C_{16}/C_{31}	3.8	1.23	16.9	0.59	2.54	2.63	5.07	1.00	2.9
3	C_{18}/C_{31}	4.2	1.21	27.1	0.47	3.06	1.77	4.70	1.15	3.7
5	C_{16}/C_{31}	2.8	0.71	16.7	0.74	1.77	1.79	3.60	1.02	3.3
6	C_{16}/C_{29}	2.1	0.52	14.3	0.70	1.66	1.72	2.97	1.03	2.6
7	C_{31}	2.5	0.75	23.5	0.52	2.86	2.00	4.55	1.28	2.6
9	C_{16}/C_{29}	2.7	0.69	20.2	0.61	2.21	1.66	3.10	1.18	2.3
10	C_{16}/C_{31}	2.7	0.69	19.8	0.62	2.23	1.68	3.17	1.17	2.8
11	C_{17}/C_{29}	2.6	0.64	17.0	0.69	1.75	1.68	2.28	0.96	2.9
12	C_{17}/C_{31}	2.6	0.57	14.8	0.82	1.41	1.66	2.38	0.91	2.2
13	C_{18}/C_{32}	2.1	0.45	20.8	0.72	1.63	1.25	1.78	1.03	4.0
15	C_{16}/C_{32}	2.1	0.42	17.1	0.77	1.57	1.19	1.80	1.05	4.3
16	C_{17}/C_{29}	2.4	0.62	15.1	0.74	1.73	1.96	2.73	1.01	3.0
17	C_{17}/C_{29}	2.5	0.60	15.3	0.76	1.55	1.70	2.18	0.92	2.6
18	C_{16}/C_{31}	2.0	0.51	17.2	0.66	2.09	1.58	2.99	1.17	3.2
19	C_{18}/C_{29}	3.4	0.93	19.1	0.60	2.12	1.80	2.97	1.00	2.4
20	C_{16}/C_{29}	2.7	0.64	14.7	0.80	1.56	1.76	2.42	0.95	3.0
21	C_{29}/C_{31}	2.4	0.61	22.1	0.67	2.20	1.66	2.81	1.17	4.0
24	C_{16}/C_{29}	1.9	0.51	17.2	0.61	2.52	1.71	3.57	1.16	2.5
均值	—	2.6 ± 0.6	0.68 ± 0.2	18.3 ± 3.4	0.67 ± 0.1	2.02 ± 0.5	1.73 ± 0.3	3.06 ± 0.9	1.07 ± 0.1	3.0 ± 0.6

1) MH: 主峰碳; $\sum$ *n*-Alk: 正构烷烃总量, μg·g^{-1}; $\sum C_{25\sim31}$, 碳数 25 ~ 31 的含量和, μg·g^{-1}; $\sum$ *n*-Alk/C_{16}: 正构烷烃总量与正十六烷比值; 短链/长链正构烷烃比值 $L/H = (\sum C_{8\sim20}/\sum C_{21\sim38})$; 陆/水生类脂物比值 TAR = $(nC_{27}+nC_{29}+nC_{31})/(nC_{15}+nC_{17}+nC_{19})$; 碳优势指数 CPI = $CPI_{24\sim34} = 1/2 \times [\sum (C_{25\sim33})(\text{奇数})/\sum (C_{24\sim32})(\text{偶数}) + \sum (C_{25\sim33})(\text{奇数})/\sum (C_{26\sim34})(\text{偶数})]$; Pr/Ph: 姥姣烷与植烷比值; *U/R*: 不可分离化合物与完全分离的烷烃比值

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

除了 CPI 比值，C_{31}/C_{19}、*L/H* 和 TAR 也常用来判断区别正构烷烃的来源[4]. C_{31}/C_{19}反映了外来源和内生源烃的相对比例，其比值 > 0.4，就被认为是非海洋源烃. *L/H* < 1 代表高等植物、海洋动物是主要正构烷烃贡献者，其比值接近于 1 暗示着正构烷烃源于石油和浮游生物源，*L/H* > 2 则意味着新鲜原油的污染存在，如胶州湾沉积物该比值全部 > 1，部分站位 > 3，显示了严重的石油污染. TAR 为陆生与水生类脂物比值，反映水陆相对贡献比例. 锦州湾沉积物的 C_{31}/C_{19}比值平均值 3.06 远大于 0.4，*L/H* 值在 0.47 ~ 0.82 之间，平均值 0.67，TAR 均值为 2.02，三者结合显示锦州湾沉积物外来源陆源贡献值要大于海洋源，特别是 2、3 和 7 站位，从表 1 中可以看出三者的 $\sum C_{25\sim31}$、CPI、C_{31}/C_{19}、*L/H* 和 TAR 与其他站位有较大差异，显示出陆源输入占主优势，这与来自连山河、大兴河、五里河沿岸陆源输入有很大关系.

由于 C_{16}正构烷烃是石油烃类代表性化合物之一，可用 C_{16}系数推断是否有油类污染. $\sum n$-Alk / C_{16}比值[13] 可以作为指示石油污染的指标. 沉积物中该比值 < 30 表明受到了原油污染，> 50 则表明沉积物未被污染，且其烷烃主要来自生物源. 从锦州湾的计算结果可以看出该比值范围 14.3 ~ 27.1，平均值 18.3，均小于 30，意味着该海域可能受到了石油烃的污染. 然而，风化过程可能会导致轻质正构烷烃损失，可能会导致 $\sum n$-Alk /C_{16}比值偏大，对判断产生一定影响，从表 1 中可以看出各站位该比值没有规律性，标准偏差也较大，因此该比值不太适合应用于本研究海域.

姥鲛烷 Pr 和植烷 Ph 常用来判断沉积物的氧化还原环境. Pr/Ph 比值高指示有机质形成于氧化环境，比值低指示有机质形成于还原环境. Pr/Ph 接近于或小于 1 表明了石油污染的存在[19]. Pr/Ph 变化在 0.91 ~ 1.28 之间，均值为 1.07，指示锦州湾沉积环境为中性，且可能受到了石油污染的威胁.

UCM 被广泛认为是石油降解和风化的产物，低碳数区的 UCM 可以归因于自然有机物的微生物降解; UCM 分布在 C_{22} ~ C_{33}之间，表明了石油组分的污染[11]. 本研究中，沉积物样品正构烷烃气相色谱图都有中等的 UCM 包状组分. 有研究[8] 采用不可分离 UCM 与完全分离 *R* 之比值来评估油污染程度，*U/R* > 2 就表明有显著的石油产品的污染，*U/R* < 4 表示轻度污染，*U/R* > 4 则表示严重污染. 锦州湾沉积物 UCM 呈现 2 个“峰”，第 1 个峰出现在 C_{15} ~ C_{21}之间，可归因于自然来源，第 2 个峰出现在 C_{22} ~ C_{35}之间，但分界线不明显. *U/R* 值在 2.2 ~ 4.3 之间，平均值为 3.0，按照上述判断，属于轻度石油产品污染程度，特别是 13 和 15 站位，不仅上述的 CPI 和 Pr/Ph 值接近于 1，而且 *U/R* ≥ 4.0，指示出较严重的石油污染，这与该点距离锦州港较近有关.

3　结论

(1) 分析了锦州湾表层沉积物中的正构烷烃的含量、组成特征和特征参数的指示意义. 锦州湾表层沉积物正构烷烃碳数范围为 C_8 ~ C_{38}，浓度范围为 1.9 ~ 4.2 μg·g^{-1}之间，平均值为 2.6 μg·g^{-1}; 各站位的正构烷烃谱图都表现为双峰型，前峰为 C_{16}或 C_{17}或 C_{18}且无奇偶碳优势，后峰为 C_{29}、C_{31}，奇碳占优势，指示了陆源和海洋双重来源.

(2) 沉积物 CPI 范围是 1.19 ~ 2.63，均值 1.73，结合 MH、$\sum C_{25\sim31}$、C_{31}/C_{19}、*L/H* 和 TAR 等大量的参数分析表明，锦州湾沉积物陆源贡献值要大于海洋源贡献值. Pr/Ph 比值变化在 0.91 ~ 1.28 之间，均值为 1.07，指示锦州湾沉积环境为中性环境; 沉积物中普遍存在 UCM 且呈现 2 个“峰”，*U/R* 值在 2.2 ~ 4.3 之间，平均值 3.0，Pr/Ph 和 *U/R* 比值证实了锦州湾存在一定石油烃污染的威胁.

(3) 通过比值分析得出 2、3 和 7 站位正构烷烃来源以陆源输入为主，主要是来自沿岸连山河、大兴河和五里河的输入; 13 和 15 站位更有可能受到了石油的污染，特别是来自锦州港航运的影响. $\sum n$-Alk /C_{16}比值易受到风化的影响，不适合应用于本海域正构烷烃来源研究.

参考文献:

[1] 何奉朋，张枝焕，高丹丹. 北京典型土壤剖面中饱和烃的组成及垂向分布特征 [J]. 环境科学，2008，29(1): 170-178.

[2] 张娇，张龙军，宫敏娜. 黄河口及近海表层沉积物中烃类化合物的组成和分布 [J]. 海洋学报，2010，32(3): 23-30.

[3] Tolosa I，Bayona J M，Albaie J. Aliphatic and polycyclic aromatic hydrocarbons and sulfur/oxygen derivatives in northwestern Mediterranean sediments: spatial and temporal variability，fluxes，and budgets [J]. Environmental Science and Technology，1996，30(8): 2495-2503.

[4] Gao X，Chen S. Petroleum pollution in surface sediments of Daya Bay，South China，revealed by chemical fingerprinting of aliphatic and alicyclic hydrocarbons [J]. Estuarine，Coastal and Shelf Science，2008，80(1): 95-102.

[5] Readman J W，Fillmann G，Tolosa I，*et al*. Petroleum and PAH contamination of the Black Sea [J]. Marine Pollution Bulletin，

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved.　http://www.cnki.net

2002, **44**(1): 48-62.

[6] Hostettler F D, Pereira W E, Kvenvolden K A, *et al*. A record of hydrocarbon input to San Francisco Bay as traced by biomarker profiles in surface sediment and sediment cores [J]. Marine Chemistry, 1999, **64**(1-2): 115-127.

[7] Colombo J C, Pelletier E, Brochu C, *et al*. Determination of hydrocarbon sources using n-alkanes and polyaromatic hydrocarbon distribution indexes. Case study: Rio de La Plata Estuary, Argentina [J]. Environmental Science and Technology, 1989, **23**(7): 888-894.

[8] Mazurek M A, Simoneit B R T. Characterization of biologic and petroleum-derived organic matter in aerosols over remote rural and urban areas in identification and analysis of organic pollutants in air [A]. In: Keith L H. Ann Arbox Science [M] Boston: Butlerworth Publisher, 1984. 353-370.

[9] Hu L, Guo Z, Feng J, *et al*. Distributions and sources of bulk organic matter and aliphatic hydrocarbons in surface sediments of the Bohai Sea, China [J]. Marine Chemistry, 2009, **113**(3-4): 197-211.

[10] **林秀梅,刘文新,陈江麟,等. 渤海表层沉积物中多环芳烃的分布与生态风险评价** [J]. **环境科学学报**, 2005, **25**(1): 70-75.

[11] Tolosa I, Mora S, Sheikholeslami M R, *et al*. Aliphatic and aromatic hydrocarbons in coastal Caspian Sea sediments [J]. Marine Pollution Bulletin, 2004, **48**(1-2): 44-60.

[12] Aboul-Kassim T A T, Simoneit B R T. Lipid geochemistry of surficial sediments from the coastal environment of Egypt: Aliphatic hydrocarbons—characterization and sources [J]. Marine Chemistry, 1996, **54**(1-2): 135-158.

[13] Blumer M, Guillard R R L, Chase T. Hydrocarbons of marine plankton [J]. Marine Biology, 1971, **8**(3): 183-189.

[14] Lü X, Zhai S. Distributions and sources of organic biomarkers in surface sediments from the Changjiang(Yangtze River) Estuary, China [J]. Continental Shelf Research, 2006, **26**(1): 1-14.

[15] Wang Z D, Fingas M, Page D S. Oil spill identification [J]. Journal of Chromatography A, 1999, **843**(1-2): 369-411.

[16] Duan Y. Organic geochemistry of recent marine sediments from the Nansha Sea, China [J]. Organic Geochemistry, 2000, **31**(2-3): 159-167.

[17] Wu Y, Zhang J, Mi T, *et al*. Occurrence of n-alkanes and polycyclic aromatic hydrocarbons in the core sediments of the Yellow Sea [J]. Marine Chemistry, 2001, **76**(1): 1-15.

[18] Wang X, Sun S, Ma H, *et al*. Sources and distribution of aliphatic and polyaromatic hydrocarbons in sediments of Jiaozhou Bay, Qingdao, China [J]. Marine Pollution Bulletin, 2006, **52**(2): 129-138.

[19] Commendatore M G, Esteves J L. Natural and anthropogenic hydrocarbons in sediments from the Chubut River(Patagonia, Argentina) [J]. Marine Pollution Bulletin, 2004, **48**(9-10): 910-918.

© 1994-2012 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net