

## 短期风化对溢油组成的影响

李芸<sup>1</sup>, 李思源<sup>3</sup>, 杨万颖<sup>3</sup>, 谢月亮<sup>3</sup>, 孙永革<sup>2</sup>, 熊永强<sup>1</sup>

(1 中国科学院广州地球化学研究所 机地球化学国家重点实验室, 广东 广州 510640 2 浙江大学 环境与生物地球化学研究所, 浙江 杭州 310027; 3 深圳市计量质量检测研究院, 广东 深圳 518131)

**摘要:** 采用实验室内的溢油模拟实验, 从分子级水平揭示短期风化作用对溢油组成的影响。研究表明, 该原油的风化损失主要发生在最初的 24 h 且以饱和烃组分的损失为主; 正构烷烃的分布形态中 C 数大于 18 的部分基本不受短期风化作用的影响; 大多数的多环芳烃指标都明显受风化作用的影响; 相对含量较低以及共溢出的存在是影响甾萜类生标化合物准确定量的两个主要因素。研究结果可为溢油源鉴定指标的选择提供实验依据。

**关键词:** 溢油; 来源; 风化作用; 诊断指标

中图分类号: X55 文献标识码: A 文章编号: 1007-6336(2010)04-0516-05

## Effect of short-time weathering on spilled oil composition

LI Yun<sup>1</sup>, LI Si-yuan<sup>3</sup>, YANG Wan-ying<sup>3</sup>, XIE Yue-liang<sup>3</sup>, SUN Yong-ge<sup>2</sup>, XIONG Yong-qiang<sup>1</sup>

(1. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China; 2. Institute of Environmental and Biochemistry, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China; 3. Shenzhen Academy of Metrology and Quality Inspection, Shenzhen 518131, China)

**Abstract** The weathering simulating experiment presents the influence of weathering on the spilled oil composition on molecular level. The results showed that loss of crude oils caused by short-term weathering mainly occurs within the first 24 hours of oil spill and is mainly the saturated hydrocarbons. The short-term weathering has not obviously effect on the distributing form > C<sub>18</sub> n-alkanes on GC profiles. Most indices of polycyclic aromatic hydrocarbons are obviously influenced by short-term weathering. The relatively low content and co-elution in GC analyses are the two most important factors of failing to quantify the sterane and terpane biomarkers exactly. The results can provided the experimental evidences for the diagnostic indices of source identification of oil spilled.

**Key words** spilled oil; source; weathering; diagnostic indices

随着人们对原油需求和消耗的增加, 溢油污染问题也日趋严重, 给海洋及陆地的生态环境带来极大的危害。溢油源的鉴别在溢油事故的调查和处理中具有重要的意义。目前, 应用于溢油源鉴别的方法很多, 如红外分光光度法、荧光分光光度法、荧光法、紫外分光光度法、原子吸收分光光度法、X-射线荧光法、核磁共振<sup>1</sup>H 谱指纹法、柱层析薄层色谱法、高效液相色谱法、气相色谱法和色谱-质谱联用技术等<sup>[1-5]</sup>。另外, 多元统计、模糊和灰色理论等数据处理手段的引入, 为溢油来源的判识提供了更科学、可靠的结果<sup>[6-12]</sup>。然而大量研究表明, 溢油发生后所经历的各种风化作用将改变石油及其炼制品的组成特征,

使溢油源的对比复杂化<sup>[13-18]</sup>。

以往针对风化作用对溢油组成影响的讨论, 定性方面的表述较多, 而定量的较少; 另外, 油指纹图的比对和诊断指标的选择往往带有一定的主观因素。这些都给溢油源鉴别的实际操作带来较大的不确定性。并且在以往溢油来源的鉴别中, 较侧重于相对含量(如油指纹和特征来源指标)的应用, 而忽略了溢油和嫌疑来源之间各种组分的绝对含量的比对。因此, 作为诊断指标的生标化合物的定量测定以及风化作用影响的定量评价将有助于诊断指标的科学选取, 减少溢油源鉴定中的主观因素, 使判定结果更可靠。

收稿日期: 2008-09-25 修订日期: 2008-12-13

基金项目: 国家科技支撑计划项目(2006BAC11B03)

作者简介: 李芸(1984-), 女, 湖北潜江人, 在读博士, 研究方向为有机地球化学。

通讯作者: 熊永强

本研究采用一个实验室内的溢油模拟实验, 通过对原始油样以及溢油发生不同时间后残余油的组成进行定量测定, 从分子级水平揭示短期风化作用可能对溢油组成的影响, 为溢油源鉴别中诊断指标的选择提供实验依据。

## 1 材料与方法

### 1.1 风化模拟实验

原油样品取自南海海上钻井平台。首先, 将一定量的原油样品 (约 40 mg) 分别滴在盛于 100 mL 烧杯中的蒸馏水的表面, 油样迅速散开在水面上形成一层油膜; 然后置于窗台上分别放置 0, 1, 2, 5, 24, 48 和 72 h 到达设定的风化时间后, 用  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  将残余油萃取出。另外一个空白实验和一个未加入水中的原始油样被平行分析。所有萃取物和原油样品都采用过量  $n\text{-C}_6\text{H}_{14}$  沉淀沥青质, 脱除沥青质后的组分使用硅胶-氧化铝柱进行族组分分离,  $n\text{-C}_6\text{H}_{14}$  冲洗饱和烃,  $n\text{-C}_6\text{H}_{14}/\text{CH}_2\text{Cl}_2$  (3: 2 v/v) 冲洗芳烃, 甲醇冲洗非烃。各族组分恒重, 定量。分别对得到的饱和烃和芳烃组成进行色谱、色谱/质谱测定。

### 1.2 测定

色谱测定采用 Hewlett-Packard 6890 色谱仪, HP-5 毛细管柱 (50 m × 0.32 mm × 0.25 μm), 升温程序为: 70 °C 恒温 5 min 以 3 °C/min 升至 290 °C, 再恒定 40 min。正、异构烷烃组分的定量采用氘代正二十烷作为内标, 根据色谱峰面积积分得到。各个正、异构烷烃组分相对内标的相对响应因子被假定为 1.0。

色谱/质谱分析在 Finnigan Plateform II 质谱仪上完成, 前端连接 Hewlett-Packard 6890 色谱, HP-5 毛细管柱 (50 m × 0.32 mm × 0.25 μm), 升温程序为: 70 °C 恒温 5 min 以 3 °C/min 升至 290 °C 再恒定 40 min。多环芳烃和甾萜类化合物分别采用它们的特征离子检测, 通过萘、蒽、菲、苯并蒽以及  $\text{C}_{27}\text{aaa}$  胆甾烷 (20R) 等标样获取的相对响应因子来进行定量。

## 2 结果和讨论

### 2.1 总体组成特征

以往溢油组成变化的监测结果表明, 溢油发生后的最初几天, 风化主要以蒸发和溶解作用为主<sup>[19]</sup>, 对于中质和轻质原油风化损失可达体积的 40% ~ 70%; 对于重质或残油, 损失量仅有 5% ~ 10%。表 1 给出了此次风化模拟实验过程中原油以及各族组成 (饱和烃、芳烃、非烃和沥青质) 的残余率随风化时间的变化特征。原油和各族组分的残余率为一定溢油时间后水中残余的各组分量除以溢油发生最初的原油量。从图中可看出, 该原油的风化损失主要发生在最初的 24 h, 损失量约为最初原油量的 27%, 接下来的 2 d 时间, 仅损失了 6% 左右。从原油的族组成来看, 以饱和烃的损失为主, 由最初原油中约占 67% 的量减少到最后只有 43% 左右的剩余, 损失了 24%,

并且其中 80% 以上损失是发生在最初的 24 h, 其它三个组分的变化则不明显。溢油 0 h 的样品和最初原油中饱和烃、非烃的含量差异可能是由于存在一定的溶解作用所产生的。

表 1 风化模拟实验中原油及其族组分的残余率随风化时间的变化

Tab. 1 Bulk composition changes of spilled oils with weathering time

风化时间 /h	残余油 /(%)	饱和烃 /(%)	芳烃 /(%)	非烃 /(%)	沥青质 /(%)
oil	100	67	15	13	5
0	88	61	15	8	3
1	79	54	13	8	5
2	76	53	12	7	4
5	78	51	12	9	5
24	73	47	12	9	5
48	67	43	12	6	5
72	69	43	15	8	4

### 2.2 分子标志物组成特征

目前常用于表征溢油源组成特征的分子标志物主要包括正构烷烃、类异戊二烯烷烃、多环芳烃以及甾萜类化合物等。表 2 列出了此次溢油模拟实验过程中一些指标或比值的测定结果。在溢油源鉴定中, 未受风化作用影响和能被准确测定是有效指标选择的两个重要标准<sup>[20]</sup>。本研究中使用各个指标的相对标准偏差 (% RSD) 来衡量风化作用对这些诊断指标的影响。如果某个诊断指标的相对标准偏差 < 5%, 则认为该指标受风化作用的影响较小且能被准确测定, 可用于溢油源的鉴定; 介于 5% ~ 10%, 表明风化作用存在一定的影响, 使用中可作为辅助指标加以利用; 相对标准偏差 > 10%, 则认为该指标明显受风化作用的影响, 不适用于溢油源的鉴定。

#### 2.2.1 正构烷烃和类异戊二烯烷烃

正构烷烃和类异戊二烯烷烃是未风化原油中常用的指标化合物。表 2 中的数据表明除  $\text{Pr}/n\text{-C}_{17}$  变化相对较小外,  $\text{Ph}/n\text{-C}_{18}$ 、 $\text{Pr}/\text{Ph}$ 、 $n\text{-C}_{18}/n\text{-C}_{30}$  和  $\sum n\text{-C}_{11-n}\text{-C}_{21}/\sum n\text{-C}_{22-n}\text{-C}_{33}$  比值随着风化降解程度的增加, 这些比值均发生了明显的变化。 $\sum n\text{-C}_{11-n}\text{-C}_{21}/\sum n\text{-C}_{22-n}\text{-C}_{33}$  比值在 0~24 h 随风化降解程度的增加而逐渐减小, 24 h 后变化不明显。然而图 1 中的正构烷烃组分定量数据显示出经过 72 h 的风化降解, C 数大于 18 的烷烃损失相对较小; C 数在 12~18 的烷烃发生了不同程度的损失。因此, 正构烷烃的分布形态中 C 数大于 18 的部分可以用于遭受短期风化作用的海上溢油的溢油源鉴定。

#### 2.2.2 多环芳烃 (PAH)

溢油讨论中涉及的多环芳烃主要包括: 萘、蒽、菲、二苯并噻吩、屈 (chrysene) 以及它们的烷基取代化合物, 并且烷基取代多环芳烃系列被认为更适用于溢油鉴定<sup>[19, 21]</sup>。一方面因为他们在原油中的含量较高, 另一方面烷基取代多环芳烃较未取代多环芳烃更能抵御风化作用。表 2 中的数据 displays 大部分芳烃特征性指标的相对标

表 2 风化模拟实验中一些指标的测定结果

Tab 2 Variability of some common indices among spilled oils and its source

参数比值	oil	0/h	1/h	2/h	5/h	24/h	48/h	72/h	mean	s d	RSD/(%)
Pr/n-C17	0.47	0.45	0.44	0.46	0.47	0.46	0.45	0.44	0.46	0.01	2.25
Ph/n-C18	0.24	0.18	0.18	0.19	0.23	0.20	0.21	0.21	0.20	0.02	10.51
Pr/Ph	2.16	2.89	2.84	2.74	2.30	2.34	2.21	2.09	2.45	0.32	13.24
n-C18/n-C30	5.05	3.93	5.02	3.39	3.85	3.30	3.55	3.70	3.97	0.69	17.30
$\Sigma C11-C21/\Sigma C22-C33$	2.27	1.43	1.16	1.18	1.08	0.78	0.76	0.78	1.18	0.50	42.45
MNR	1.51	1.40	1.35	1.29	1.36	1.41	-	-	1.39	0.07	5.39
DMNR-1	2.18	2.11	1.91	2.02	1.39	1.39	1.80	2.25	1.88	0.34	17.85
DMNR-2	1.71	2.02	1.96	1.94	1.69	1.91	1.27	2.04	1.82	0.26	14.10
TMNR-1	1.02	1.13	1.12	1.11	1.14	1.07	1.43	0.71	1.09	0.20	18.08
TMNR-2	0.48	0.40	0.41	0.40	0.44	0.76	1.04	0.94	0.61	0.26	43.52
TMNR-3	2.37	2.61	2.47	2.44	2.50	2.01	2.01	1.60	2.25	0.34	15.29
TΔMNR	0.56	0.57	0.56	0.58	0.56	0.47	0.47	0.46	0.53	0.05	9.87
MPR	1.15	1.23	1.25	1.22	1.22	1.10	1.11	1.16	1.18	0.06	4.93
MPI-1	0.68	0.66	0.69	0.67	0.70	0.81	0.84	0.94	0.75	0.10	13.59
MPI-2	0.72	0.69	0.72	0.70	0.74	0.86	0.87	0.97	0.78	0.10	13.19
MDR	0.95	1.20	1.20	1.25	1.18	0.84	0.75	0.71	1.01	0.23	22.35
MTR	1.70	3.17	3.08	3.43	3.19	1.53	1.97	1.74	2.48	0.81	32.52
PAI	1.90	1.71	1.83	1.71	1.92	3.24	3.45	4.56	2.54	1.07	42.26
DMPI	0.81	0.70	0.69	0.64	0.74	1.11	1.40	1.47	0.94	0.34	35.62
C27β α 重排甾烷 / (20S+ 20R)	0.55	0.58	0.58	0.63	0.59	0.59	0.56	0.61	0.58	0.02	4.11
C29 甾烷 20S/( 20S+ 20R)	0.79	0.79	0.82	0.77	0.81	0.80	0.78	0.74	0.79	0.02	3.13
C29 甾烷 αββ/(αββ+ ααα)	0.42	0.46	0.45	0.43	0.45	0.44	0.49	0.48	0.45	0.02	4.91
% [C27/(C27-C29)ααα 20R 甾烷]	26.0	21.4	27.0	21.7	22.7	23.3	21.5	20.6	23.0	2.31	10.0
% [C28/(C27-C29)ααα 20R 甾烷]	41.5	51.5	52.6	52.4	51.2	51.1	46.4	42.1	48.6	4.60	9.47
% [C29/(C27-C29)ααα 20R 甾烷]	32.4	27.2	20.4	25.9	26.1	25.6	32.1	37.2	28.4	5.26	18.55
Ts/(Ts+ Tm)	0.72	0.74	0.72	0.73	0.72	0.73	0.71	0.69	0.72	0.02	2.28
C30 重排藿烷 /C29Ts 藿烷	0.47	0.48	0.47	0.42	0.47	0.46	0.48	0.47	0.47	0.02	4.05
C30β α 莫烷 /C30αβ 藿烷	0.09	0.09	0.08	0.08	0.09	0.09	0.10	0.09	0.09	0.01	6.22
C29α β /C30αβ 藿烷	0.50	0.53	0.55	0.55	0.51	0.53	0.43	0.43	0.50	0.05	9.74
18α (H) 奥利烷 /C30αβ 藿烷	0.09	0.13	0.13	0.12	0.11	0.13	0.13	0.11	0.12	0.01	11.07
C29Ts/(C29Ts+ C29αβ 藿烷)	0.45	0.43	0.43	0.44	0.43	0.44	0.45	0.45	0.44	0.01	1.96
C31 藿烷 22S/( 22S+ 22R)	0.58	0.58	0.61	0.60	0.61	0.56	0.58	0.60	0.59	0.02	2.76
C32 藿烷 22S/( 22S+ 22R)	0.61	0.57	0.60	0.58	0.61	0.60	0.60	0.56	0.59	0.02	2.90

注: MNR = 2-MN/1-MN, DMNR-1 = (2.6-DMN+2.7-DMN)/(1.5-DMN+1.4-DMN+2.3-DMN), DMNR-2 = (1.3-DMN+1.6-DMN)/(1.5-DMN+1.4-DMN+2.3-DMN), TMNR-1 = 2.3.6-TMN/(1.4.6-TMN+1.3.5-TMN), TMNR-2 = 1.2.5-TMN/1.3.6-TMN, TMNR-3 = (1.3.6-TMN+1.3.7-TMN)/(1.4.6-TMN+1.3.5-TMN), TΔMNR = 1.3.6.7-TΔMN/(1.3.6.7-TΔMN+1.2.5.6-TΔMN+1.2.3.5-TΔMN), MPR = 2-MP/1-MP, MPI-1 = 1.5(3-MP+2-MP)/(P+9-MP+1-MP), MPI-2 = 3(2-MP)/(P+9-MP+1-MP), MDR =  $\Sigma MP/\Sigma DMPI$ , MTR =  $\Sigma MP/\Sigma TMP$ , PAI = (1-+2-+3-+9-MP)/P, DMPI = 4(2.6-+2.7-+3.5-+3.6-DMP+1-+2-+9-EP)/(P+1.3-+1.6-+1.7-+2.5-+2.9-+2.10-+3.9-+3.10-IMP), MN-甲基萘; DMN-二甲萘; TMN-三甲萘; TΔMN-四甲萘; P-菲; MP-甲基菲; DMP-二甲萘菲

准偏差 10%, 表明它们也明显受风化作用的影响, 并不适合作为溢油源的诊断指标。只有 MNR 和 MPR 指数相对标准偏差较小, 可作为溢油源的有效鉴别指标; TΔMNR 可作为辅助指标。TMNR-2、DMPI、PAI、MPI-1 和 MPI-2 等指标在 0~5 h 变化不大, 5~72 h 随风化降解程度的增加, 逐渐增大; TMNR-3、MDR 和 MTR 等指标在 0~5 h 变化不大, 5~72 h 随风化降解程度的增加, 逐渐减小。

图 2 给出了这个南海原油中主要芳烃化合物的分布柱状图及其随风化降解的变化特征。定量

结果表明在整个风化模拟过程中联苯、萘及其烷基化系列最易受蒸发风化的影响, 菲和芴受蒸发风化影响

相对较小, 尤其是烷基菲和烷基芴, 抗风化作用的能力较强。在这个样品中芴及其烷基化系列化合物含量较低, 二苯并噻吩系列化合物则未检出。

### 2.2.3 甾萜类生标化合物

甾萜类化合物是原油中普遍存在的组分, 由于甾萜类生标化合物抗风化作用的能力较强, 基于此甾萜类生标的参数常被用于溢油来源的判识以及风化程度的衡量。徐恒振等 (2001, 2002) 长达 1 a 的风化模拟实验结果表明, 甾萜类化合物受风化作用的影响很小 [20, 22, 23]。尽管甾萜类化合物抗风化降解能力较强, 但由于甾萜类化合物的含量普遍较低, 且往往存在多种组分共溢出的现

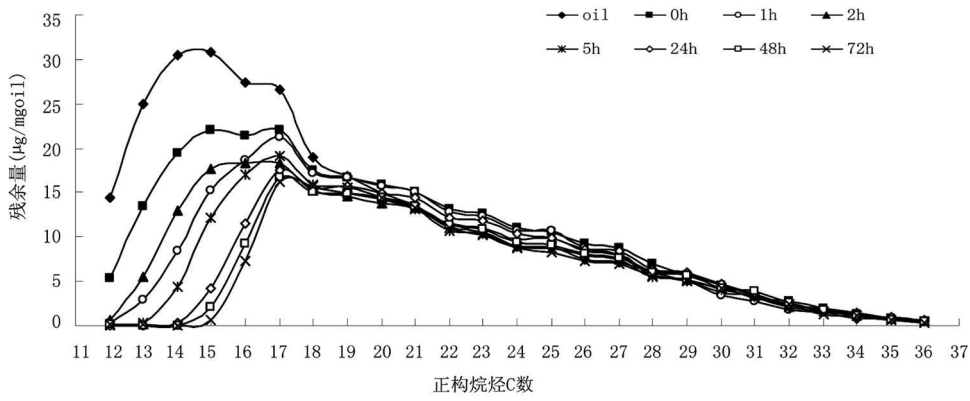


图 1 风化模拟实验中正构烷烃残余量的变化

Fig 1 Concentrations of individual *n*-alkanes in spilled oils and its source

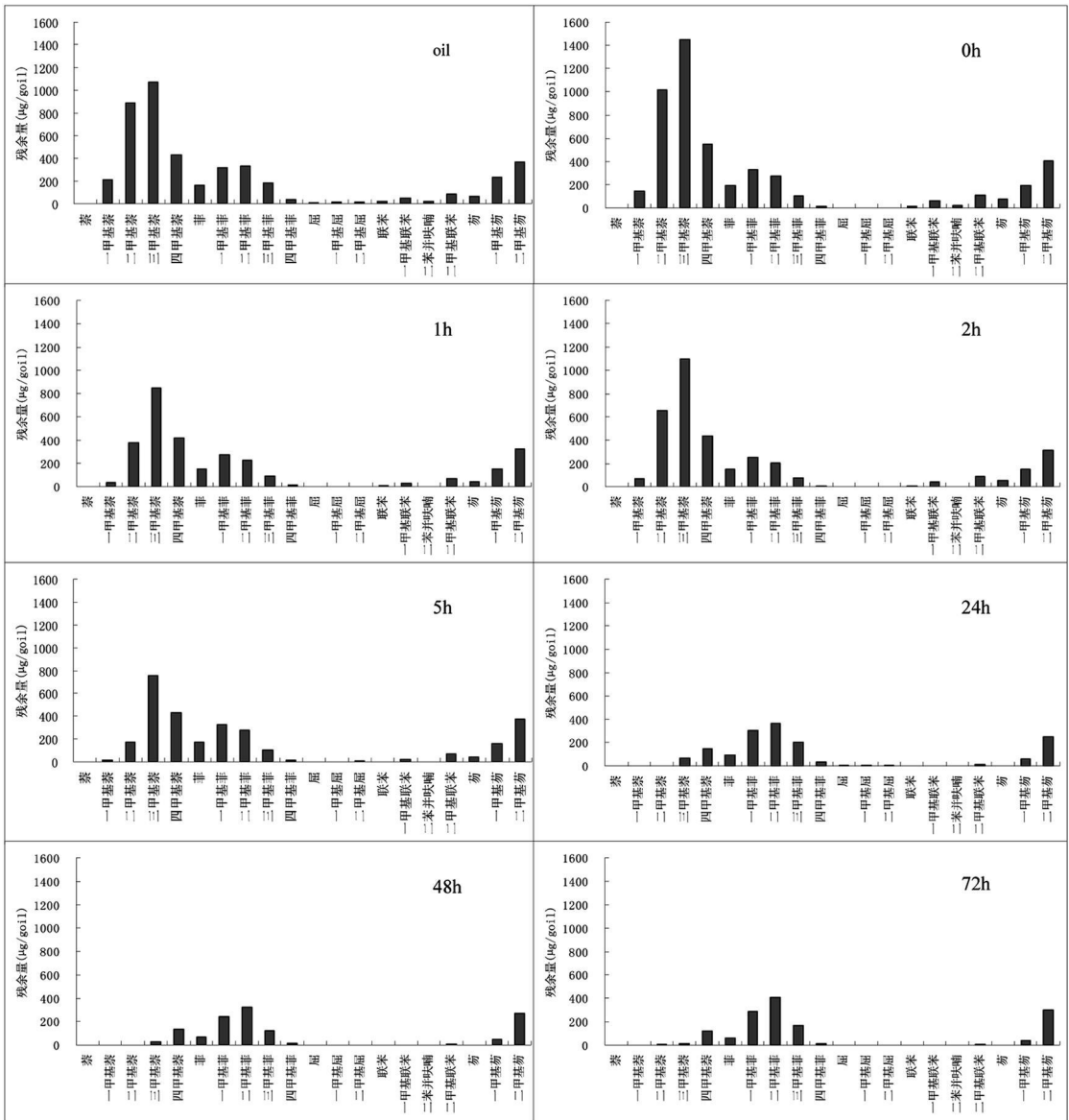


图 2 风化模拟实验中多环芳烃的分布

Fig 2 Distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons

象,因此给诊断指标的选择以及准确测定带来了一定的困难。

本研究中用来表征风化作用对原油组成影响的甾萜类特征性指标如表 2 所示,其中:  $C_{27}\beta\alpha$  重排甾烷  $20S/(20S+20R)$ 、 $C_{29}$  甾烷  $\alpha\beta\beta/(\alpha\beta\beta+\alpha\alpha\alpha)$ 、 $C_{29}\alpha\alpha\alpha$  甾烷  $20S/(20S+20R)$ 、 $T_s/(T_s+T_m)$ 、 $C_{30}$  重排藿烷  $/C_{29}T_s$  藿烷、 $C_{29}T_s/(C_{29}T_s+C_{29}\alpha\beta$  藿烷)、 $C_{31}$  藿烷  $22S/(22S+22R)$  和  $C_{32}$  藿烷  $22S/(22S+22R)$  相对标准偏差较小,可作为诊断指标用于溢油源的鉴定。该样品中由于  $C_{27}$  和  $C_{28}$  规则甾烷存在复杂的共溢出严重影响这两类化合物的定量,不适用于作为这类原油的诊断指标进行溢油源的比对。 $18\alpha(H)$ -奥利烷是一个具有特殊生源意义的生标化合物,但由于其相对含量较低,造成  $18\alpha(H)$ -奥利烷/ $C_{30}\alpha$  藿烷比值的相对标准偏差较大,实际应用中应加以考虑。

### 3 结 论

本研究表明,该原油的风化损失主要发生在最初的 24 h,损失量约为 27%,且以饱和烃组分的损失为主;正构烷烃的分布形态中 C 数大于 18 的部分基本不受短期风化作用的影响,可用于海上溢油事故的溢油源鉴定;大多数的多环芳烃指标都明显受风化作用的影响,不适用于溢油源的鉴定,甲基萘和甲基菲异构体遭受风化降解的速率相近,甲基萘和甲基菲指数可用于溢油源的鉴定;相对含量较低以及共溢出的存在是影响甾萜类生标化合物准确定量的两个主要因素,在实际应用中可作为甾萜类诊断指标优劣的评价标准。

#### 参考文献:

[1] 许乙烈,张有恩.反相高效液相色谱法鉴别海面溢油源的方法研究[J].海洋环境科学,1989,8(4):80-89

[2] 苏君夫,徐学仁.核磁共振  $^1H$  谱指纹法鉴别海上溢油源[J].海洋环境科学,1989,8(3):68-74

[3] 赵云英,马永安.荧光光谱法鉴别海面溢油源的研究进展[J].海洋环境科学,1997,16(2):29-34

[4] 何晓媛,石金辉,辛海虹.南海区平台石油的特征荧光光谱分析[J].海洋环境科学,2004,23(4):60-63

[5] 马永安,赵云英.气相色谱和荧光光谱多线性指数模式识别法鉴别溢油源[J].海洋环境科学,1990,9(2):76-82

[6] 徐恒振. Fuzzy 相关分析鉴别海面溢油[J].海洋环境科学,1995,14(1):55-58

[7] 徐恒振,周传光,马永安,等.溢油指示物(指标)的 HPLC 模糊最大矩阵元研究[J].海洋环境科学,2000,19(1):11-14

[8] 徐恒振,马永安,尚龙生,等.溢油指示物(指标)的 HPLC-FLD-GM(1,1)研究[J].海洋环境科学,2000,19(2):54-57

[9] 徐恒振,周传光,马永安,等.溢油指示物(指标)的 HPLC-UVD 研究[J].交通环保,1999,20(5):7-9

[10] 徐恒振,周传光,马永安,等.溢油海水环境化学行为的研究[J].交通环保,2000,21(6):7-11

[11] 徐恒振,周传光,马永安,等.溢油指示物(或指标)的 GC-FID 研究[J].交通环保,2001,22(1):4-8

[12] 王丽,何鹰,王颜萍,等.近红外光谱技术结合主成分聚类分析判别海面溢油种类[J].海洋环境科学,2004,23(2):58-60

[13] 杨庆霄.海面石油风化过程的研究进展[J].海洋环境科学,1984,3(1):86-93

[14] 杨庆霄,徐俊英,李文森.海上溢油溶解过程的研究[J].海洋环境科学,1992,11(3):24-28

[15] 赵云英,杨庆霄.溢油在海洋环境中的风化过程[J].海洋环境科学,1997,16(1):45-51

[16] 严志宇,殷佩海.海上溢油蒸发过程的研究进展[J].海洋环境科学,2000,19(2):74-79

[17] WANG Z D, FENG S M. Developments in the analysis of petroleum hydrocarbons in oils petroleum products and oil-spill-related environmental samples by gas chromatography[J]. Journal of chromatography A, 1997, 774: 51-58

[18] MALMQUIST LM V, OLSEN R R, HANSEN A B, et al Assessment of oil weathering by gas chromatography-mass spectrometry, time warping and principal component analysis[J]. Journal of Chromatography A, 2007, 1164: 262-270

[19] SHAI E, SHIMON E, IHAMAR P, et al Weathering of fuel oil spill on the east Mediterranean coast Ashdod Israel[J]. Organic Geochemistry, 2000, 31: 1733-1741

[20] STOUT S A, UHLER A D, MCCARTHY K J et al A strategy and methodology for defensibly correlating spilled oil to source candidates[J]. Environ Foren, 2001, 2: 87-98

[21] THEODOR C S, JACQUELINE M, DON V A, et al Hydrocarbon characterization and weathering of oil in intertidal sediments along the Saudi Arabian coast two years after the Gulf War oil spill[J]. Environment International, 1998, 24: 43-60

[22] 徐恒振,周传光,马永安,等.甾烷作为溢油指示物(或指标)的研究[J].交通环保,2001,22:15-20

[23] 徐恒振,周传光,马永安,等.甾烷作为溢油指示物(或指标)的研究[J].海洋环境科学,2002,21:14-20