

# 砒砒岛背景站PM<sub>2.5</sub>中多环芳烃的来源及健康风险

王晓平<sup>1,2,3</sup>, 徐玥<sup>4</sup>, 田崇国<sup>2</sup>, 陈颖军<sup>2</sup>, 宗政<sup>2,3</sup>, 李军<sup>1</sup>, 张干<sup>1</sup>

1. 中国科学院广州地球化学研究所, 有机地球化学国家重点实验室, 广州 510640
2. 中国科学院烟台海岸带研究所海岸带环境过程与生态修复院重点实验室, 烟台 264003
3. 中国科学院大学, 北京 100049
4. 中国科学院地球化学研究所, 环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550002

**摘要** 对2011年11月—2013年1月在砒砒岛国家大气背景站采集的75个大流量PM<sub>2.5</sub>样品的多环芳烃含量和组成进行分析。结果表明, 砒砒岛16种优控多环芳烃( $\Sigma_{16}$ PAHs)的总质量浓度为4.7~41 ng/m<sup>3</sup>(平均(17±10) ng/m<sup>3</sup>), 季节上表现为冷季高、暖季低的变化趋势。综合气流轨迹分析、分子标志物、特征化合物比值、潜在源贡献指数分析等方法发现, 夏季山东半岛的生物质燃烧是主要污染源; 冷季主要受京津冀及周边地区的燃煤排放和复合污染输出的共同影响。砒砒岛PAHs的总毒性当量(BaP<sub>eq</sub>) 在0.54~8.2 ng/m<sup>3</sup>之间, 平均水平为2.8 ng/m<sup>3</sup>, 39%以上的样品超过国标阈值, 说明环渤海地区PAHs健康风险存在区域性。

**关键词** PM<sub>2.5</sub>; 多环芳烃; 砒砒岛; 源解析; 健康风险

**中图分类号** X513

**文献标志码** A

**doi** 10.3981/j.issn.1000-7857.2015.06.008

## Potential sources and health risk of PM<sub>2.5</sub>-bounded PAHs at the background site at Tuoji Island

WANG Xiaoping<sup>1,2,3</sup>, XU Yue<sup>4</sup>, TIAN Chongguo<sup>2</sup>, CHEN Yingjun<sup>2</sup>, ZONG Zheng<sup>2,3</sup>, LI Jun<sup>1</sup>, ZHANG Gan<sup>1</sup>

1. State Key Laboratory of Organic Geochemistry; Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China
2. Key Laboratory of Coastal Zone Environmental Processes and Ecological Remediation, Yantai Institute of Coastal Zone Research, Chinese Academy of Sciences, Yantai 264003, China
3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China
4. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry; Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China

**Abstract** Concentration and composition of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) were determined for 75 HiVol PM<sub>2.5</sub> samples collected at the national station for background atmospheric monitoring at Tuoji Island from Nov. 2011 to Jan. 2013. The results showed that the total concentration of the 16 USEPA priority PAHs ( $\Sigma_{16}$ PAHs) ranged from 4.7 to 41 ng/m<sup>3</sup>, with an average value of (17±10) ng/m<sup>3</sup>, and high PAHs concentrations occurred in cold seasons while low concentrations in warm seasons. An integrated approach of air mass back trajectories, molecular tracers, isomer ratios of PAHs and potential source contribution function analysis was used to identify potential sources. It is shown that biomass burning in Shandong Peninsula during summer is the main PAH source while the outflow of coal combustion and mixed emissions from Jing-Jin-Ji and adjacent areas contributes a high PAH level in

收稿日期: 2015-01-08; 修回日期: 2015-02-28

基金项目: 中国科学院战略性先导科技专项(XDB05030303, XDB05020207, XDA11020402); 国家自然科学基金项目(41471413)

作者简介: 王晓平, 博士研究生, 研究方向为环境科学, 电子邮箱: xpwang@yic.ac.cn; 陈颖军(通信作者), 研究员, 研究方向为环境科学, 电子邮箱: yjchen@yic.ac.cn

引用格式: 王晓平, 徐玥, 田崇国, 等. 砒砒岛背景站PM<sub>2.5</sub>中多环芳烃的来源及健康风险[J]. 科技导报, 2015, 33(6): 54-58.

cold season. The total toxic equivalent of PAHs (BaPeq) at this site ranges from 0.54 to 8.2 ng/m<sup>3</sup>, with an average of 2.8 ng/m<sup>3</sup>. Furthermore, the BaPeq levels in 39% of the total samples exceed the national standard of China, indicating the regional characteristic of PAH health risk in the Bohai Rim.

**Keywords** PM<sub>2.5</sub>; PAHs; Tuoji Island; source identification; health risk

近年来随着中国区域大气灰霾日益频发,PM<sub>2.5</sub>已成为政府、公众和科学界广泛关注的热点对象。PM<sub>2.5</sub>不仅造成大气能见度下降和区域气候变化等负面效应,还可以深入支气管甚至穿透肺泡<sup>[1]</sup>,引发肺部功能障碍<sup>[2]</sup>、心血管系统损害<sup>[3]</sup>等诸多健康问题。为此,中国将实施更为严格的包括PM<sub>2.5</sub>指标在内的环境空气质量新标准<sup>[4]</sup>。与此同时,PM<sub>2.5</sub>附着的持久性有毒物质(如多环芳烃)也具有强烈的致畸、致癌、致突变等性质<sup>[5]</sup>,导致PM<sub>2.5</sub>的毒性增强,而且随着PM<sub>2.5</sub>的大气区域传输,其健康风险也扩大化。多环芳烃(PAHs)是一类常见的毒害有机污染物,在大气中常以气态和颗粒态形式存在,且分子量较大、致癌性更高的PAHs倾向于富集在PM<sub>2.5</sub><sup>[6]</sup>。中国是目前最大的PAHs排放国,主要排放源是化石燃料和生物质的不完全燃烧<sup>[7]</sup>,珠三角、长三角和京津冀等经济发达地区的大气PAHs污染均处于世界较高水平<sup>[8-10]</sup>。

环渤海地区包括北京、天津、河北(简称京津冀)、山东和辽宁,是中国继珠三角和长三角之后的“第三经济增长极”。近年来,随着经济社会的快速发展,该地区的大气污染问题日益突出<sup>[10,11]</sup>,且在东亚季风的影响下呈现季节性的区域传输特征<sup>[12]</sup>。2011年8月,位于渤海海峡中部的砣矶岛国家大气背景监测站(山东长岛站)正式运行,从2011年11月开始利用大流量采样器在该站点系统采集PM<sub>2.5</sub>样品。本文选取2011年11月—2013年1月的75个PM<sub>2.5</sub>样品,分析PAHs的含量水平与季节变化规律,并探讨其潜在来源和健康风险。

## 1 材料与方法

### 1.1 样品采集

砣矶岛国家大气背景监测站(38.19°N, 120.74°E)位于渤海与北黄海的交界处,南距山东半岛(蓬莱)约40 km,西隔渤海与天津相望,占地面积7.1 km<sup>2</sup>,常住人口约3000人,主要产业为渔业。采样点位于砣矶岛西北侧的双峰山顶,海拔153 m。自2011年11月开始,利用澳大利亚Ecotech公司HiVol3000型大流量PM<sub>2.5</sub>采样器,每3 d采集一个24 h的PM<sub>2.5</sub>样品。采样流速为1.13 m<sup>3</sup>/min,滤膜为Whatman公司25.4 cm×20.3 cm石英纤维滤膜。采样前将石英滤膜预先在500°C的马弗炉中灼烧8 h,采样后密封于-18°C保存待分析<sup>[12]</sup>。

### 1.2 样品分析

选择2011年11月—2013年1月间75个PM<sub>2.5</sub>样品(每月5个)进行PAHs检测。样品预处理过程包括:加入5种氘代多环芳烃混标(萘-d<sub>8</sub>、二氢萘-d<sub>10</sub>、菲-d<sub>10</sub>、蒽-d<sub>12</sub>、芘-d<sub>12</sub>)作为回收率指示物,用二氯甲烷对样品进行索氏抽提24 h,提取液经过旋转蒸发浓缩,再经复合层析柱(从上到下依次为无水

硫酸钠、中性硅胶、中性氧化铝)进行纯化,用正己烷和二氯甲烷混合液洗脱分馏,对芳烃馏分进行旋蒸和氮吹浓缩,加入六甲基苯溶液作为内标待测。

仪器检测条件如下:Agilent7890A气相色谱/5975C质谱检测器(GC/MSD),配备DB-5MS色谱柱(30 m×0.25 mm×0.25 μm),测定USEPA优控16种PAHs:萘(Nap)、苊(Acy)、二氢苊(Ace)、芴(Flu)、菲(Phe)、蒽(Ant)、荧蒽(Flur)、芘(Pyr)、苯并[a]蒽(BaA)、蒾(Chr)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[a]芘(BaP)、茚并[1,2,3-c,d]芘(IncP)、二苯并[a,h]蒽(DahA)、苯并[ghi]芘(BghiP),以及部分生物标志物(如胆甾醇和甲基菲)的含量。进样口温度280°C,不分流进样,升温程序为60°C保持5 min,以3°C/min升温到290°C后保留30 min。离子源温度230°C,全扫,Agilent色谱工作站处理数据,采用多点校正曲线和内标法进行定量。

实验过程执行严格的质量控制与质量保证(QC/QA)体系,包括每批次实验中插入空白样品和10%的平行样品(共8个平行样品,平行样品间的总体差异低于5%)。5种氘代多环芳烃的回收率分别为:萘-d<sub>8</sub>(87±22)%、二氢萘-d<sub>10</sub>(91±20)%、菲-d<sub>10</sub>(107±24)%、蒽-d<sub>12</sub>(91±13)%、芘-d<sub>12</sub>(90±15)%。文中数据均经过空白校正和回收率校正。

### 1.3 气流轨迹和潜在源贡献指数分析

采用NOAA(美国国家海洋和大气管理局)发布的Hybrid-single particle integrated trajectories (HYSPLIT 4.8)气流轨迹分析软件分析各样品的气流来源,分别在采样开始的0、6、12、18、24 h计算距离地面高度为100、500、1000 m位置的72 h后推气流轨迹。

潜在源贡献(PSCF)分析常用于各种金属、颗粒物、持久性有机污染物的污染源区解析<sup>[13-15]</sup>。该方法将气流轨迹分析和监测数据结合,可以在地图上直观定位通过大气传输的某一污染物的可能源区。本研究将浓度值高于阈值(平均值+标准偏差)的样品定为“浓度高值”,把HYSPLIT软件生成的气流轨迹点投影于1°×1°网格计算PSCF值。PSCF值分布在0~1之间,越靠近1表明该网格是污染源的的概率越大,且网格内总点数小于10个的予以忽略,以确保每个网格中有足够的的数据,从而避免因网格中点数目太少引起的误差。所有计算出的数值采用ArcGIS 10.2软件绘制成图。

## 2 结果与分析

### 2.1 PAHs浓度水平和季节变化

观测期间,PM<sub>2.5</sub>平均质量浓度为(61±38) μg/m<sup>3</sup>,介于3.7~144 μg/m<sup>3</sup>。16种优控PAHs(Σ<sub>16</sub>PAHs)总质量浓度为

4.7~41 ng/m<sup>3</sup>, 平均为 (17±10) ng/m<sup>3</sup>。PM<sub>2.5</sub>和Σ<sub>16</sub>PAHs 具有较显著的相关性( $R=0.52, P<0.01$ ), 说明两者具有一定的共传输特征。与国内外同类站点比较, 砒矾岛的Σ<sub>16</sub>PAHs 质量浓度水平显著高于北美(中值为0.24~3.4 ng/m<sup>3</sup>)<sup>[16]</sup>和欧洲(0.18~2.1 ng/m<sup>3</sup>)<sup>[17]</sup>, 也高于宁波大气背景站(平均(13±15) ng/m<sup>3</sup>)<sup>[18]</sup>。砒矾岛较高的Σ<sub>16</sub>PAHs 浓度水平与环渤海地区PAHs 排放量列居全国前位的情况一致<sup>[19]</sup>。

季节变化上, 砒矾岛Σ<sub>16</sub>PAHs 质量浓度呈现冷季高(冬春季)、暖季低(夏秋季)的特征, 如图1所示。月均质量浓度最大值出现在2012年1月, 最小值为2012年7月, 两者之比为3.7。在组成上, 总体以高环PAHs 为主, 5环和6环PAHs 占总质量的65%。高环PAHs 的贡献率与Σ<sub>16</sub>PAHs 质量浓度变化相一致, 2012年1月达到83%, 7月下降到最低值(34%)。此外, 化学结构相似的PAHs 单体之间具有显著的相关性( $P<0.01$ ), 表明相似的季节变化特征。例如, Ace、Acy、Flu 之间的两两相关系数  $R$  达到了0.89 以上, Phe 与 Ant 相关系数为0.88, Flur 与 Pyr 的相关系数为0.86, BbF、BkF、BaP 之间两两相关系数均超过0.88, BghiP 和 DahA 的相关系数也有0.65。按化合物的相似性汇总各化合物的季节变化(图2), 3环化合物中 Ace、Acy、Flu 的质量浓度之和在春季较高, Phe、Ant 的质量浓度之和在冬季出现高值; 4环和5环PAHs 在冷季节均表现较高的质量浓度, 6环PAHs 的质量浓度季节变化特征不明显。就单个PAH 而言, 主要成分为 BkF (19%)、BbF (16%)、Phe (10%) 和 BaP (9%)。

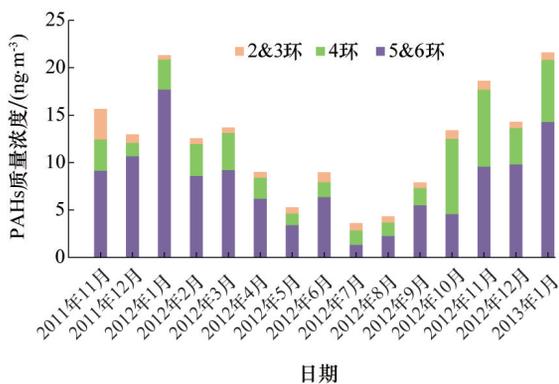


图1 PAHs 质量浓度的月均变化  
Fig. 1 Monthly variations of PAHs contents

## 2.2 潜在污染源分析

渤海沿岸有众多油田和石化企业, 还有4个年吞吐量亿吨级的大港及诸多快速发展的中小港口, 船运行业非常活跃<sup>[20]</sup>。从潜在源类型来看, 除生物质和化石燃料燃烧贡献外, 原油泄漏溢出也可能是一个PAHs 排放源。但是, 夏季PM<sub>2.5</sub> 样品  $m(\text{BaA})/m(\text{BaA}+\text{Chr})$  为0.49~0.90 之间,  $m(\text{Ind})/m(\text{Ind}+\text{BghiP})$  为0.28~0.43,  $m(\text{MPhe})/m(\text{Phe})$  为0.18~0.31, 均属于文献报道中燃烧成因的PAHs 特征<sup>[21]</sup>, 可见原油泄漏对周边空气的PAHs 的贡献可以忽略。

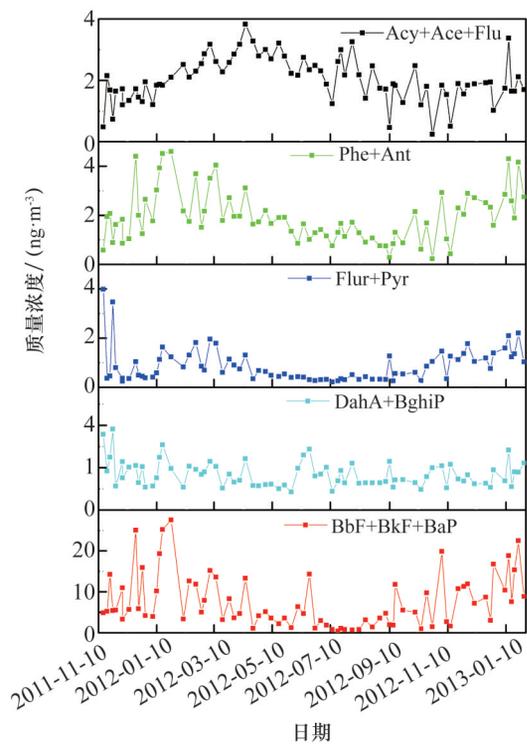


图2 分组PAHs 的质量浓度变化  
Fig. 2 Concentration variation of subgroup PAHs

高钒/镍比值常用来表征船舶尾气排放(尤其是使用残留燃油)的影响。砒矾岛PM<sub>2.5</sub> 中的高钒/镍比值的样品(如2012年5月17日, 6月24日和8月2日)<sup>[20]</sup>中PAHs 质量浓度比夏季其他样品略高, 但明显低于冬春季的平均水平, 说明使用残留燃油的船舶排放对砒矾岛大气中PAHs 有一定程度的影响, 但整体上贡献较小。

在季风的作用下, 夏季气团主要源自采样点南部区域(图3)。2012年6月6日采样期间的后推气流轨迹经过山东半岛卫星火点较为密集的区域, 同时砒矾岛PM<sub>2.5</sub> 中的有机碳(OC)和元素碳(EC)含量显著升高, 是山东半岛生物质露天焚烧影响的代表性样品<sup>[12]</sup>。

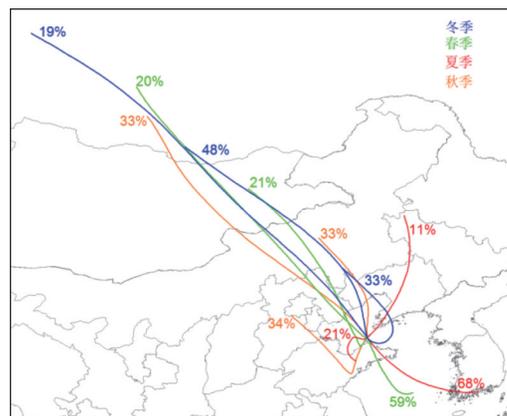


图3 72 h 聚类后退轨迹的季节变化  
Fig. 3 Seasonal variations of 72 h back trajectories cluster map

该样品中 $\Sigma_{16}$ PAHs质量浓度明显升高,达到了夏季质量浓度的次高值,是上述表征船舶排放样品中(如2012年5月17日,6月24日和8月2日) $\Sigma_{16}$ PAHs质量浓度的1.5~2倍,说明山东半岛及以南地区的夏季生物质露天焚烧对渤海区域PAHs质量浓度的影响较为明显。6月是山东、河南和江苏等省份收获和露天焚烧农作物秸秆比较集中的月份。如图1所示,6月月均质量浓度明显高于邻近两个月,也说明了生物质露天焚烧的贡献。

冷季气团主要来自采样点西北部的山西、河北和京津地区(图3),期间的PAHs污染最严重。山西和河北是国内PAHs排放的第二和第三大省份,单位面积排放量在40 kg/km<sup>2</sup>以上,当地燃煤和焦炭对PAHs排放贡献巨大<sup>[19]</sup>。气团经过山西和河北区域时, $m(\text{BaP})/m(\text{BghiP})$ 和 $m(\text{Ind})/m(\text{Ind}+\text{BghiP})$ 的比值均高于燃煤排放PAHs的特征阈值,说明燃煤

排放在这个季节有重要贡献。另外,2011年冬季—2012年春季期间PM<sub>2.5</sub>颗粒物中胆甾醇的含量明显上升,其随时间的变化趋势与5环PAHs的季节变化特征基本一致。胆甾醇广泛存在于动物组织中,常用作肉类烹饪等餐饮排放的示踪物。研究表明京津地区的餐饮排放是PM<sub>2.5</sub><sup>[22]</sup>和PAHs<sup>[23]</sup>的重要来源。2011年1月—2012年5月期间,观测到胆甾醇含量高值所对应的大部分气团轨迹都经过了京津唐城市群,说明城市群复合排放也对砒矾岛冬春季PAHs造成一定影响<sup>[10]</sup>。

利用潜在污染源分析可以发现各化合物之间潜在源区分布类似。图4以Phe、Pyr、BaP和BghiP为例,展示潜在源贡献指数分布。在季风的作用下,大部分PAHs的潜在源区主要分布在采样点西北地区(如山西和河北)和南部地区(如山东半岛)。

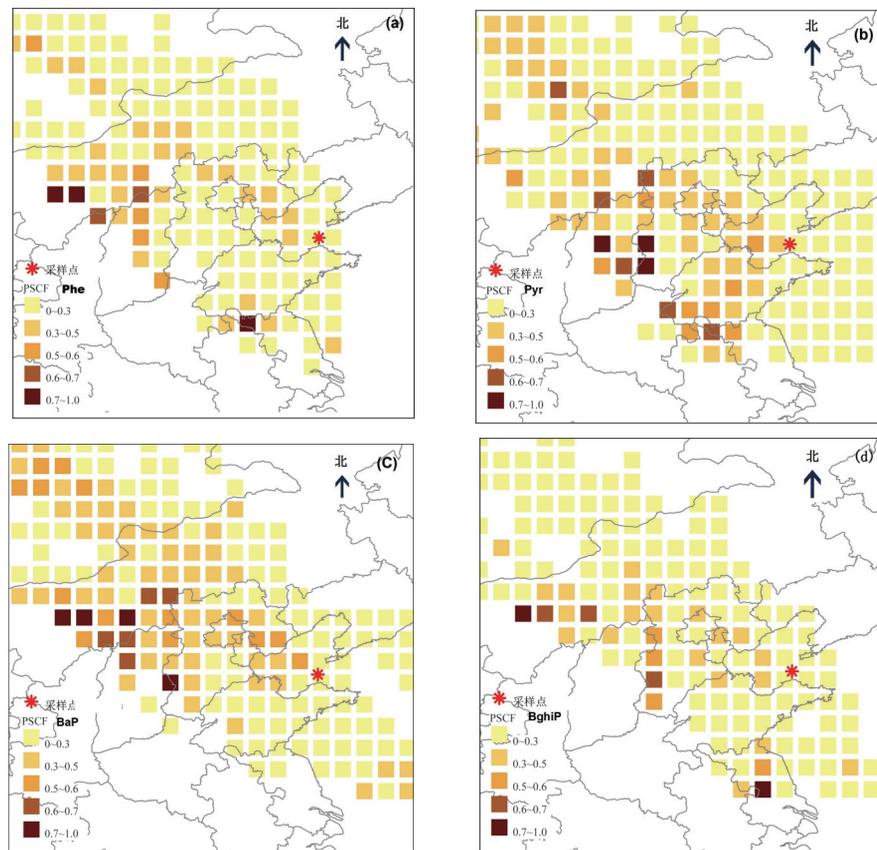


图4 PAHs的潜在源贡献指数分布

Fig. 4 Spatial distributions of PSCF values of PAHs

### 2.3 人体健康风险

如前所述,砒矾岛 $\Sigma_{16}$ PAHs中毒性最高的BaP具有较高的贡献比例。基于Nisbet和Lagoy<sup>[24]</sup>给出的单体PAHs的BaP毒性当量因子,计算总的BaP当量浓度(BaPeq),如图5所示。结果表明,研究期间总毒性当量在0.54~8.2 ng/m<sup>3</sup>之间,平均2.8 ng/m<sup>3</sup>。WHO 2000年估计BaP导致1/10000癌症风险的当量浓度约为1.2 ng/m<sup>3</sup>(图5中红色虚线),《GB 3095—2012 环境空气质量标准》中BaP的日标准值为2.5 ng/m<sup>3</sup>(图5

中红色实线)。本研究中77%以上的样品中BaPeq的质量浓度已经超过1.2 ng/m<sup>3</sup>的阈值,39%以上样品超过2.5 ng/m<sup>3</sup>。作为国家大气背景监测点,砒矾岛的大气中PAHs存在较高的潜在癌症风险,也表明环渤海地区PAHs健康风险呈现区域性。另外,虽然BaPeq和PM<sub>2.5</sub>质量浓度没有明显的共变特征,但较高PM<sub>2.5</sub>浓度常伴随高的潜在癌症风险,说明灰霾期间人体健康风险概率增加。

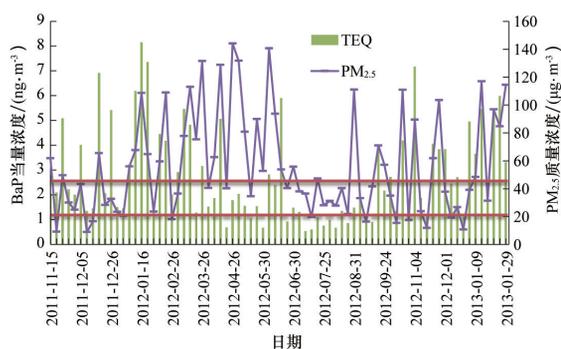


图5 BaP当量浓度和PM<sub>2.5</sub>质量浓度变化

Fig. 5 Variation of equivalent concentration of BaP and mass concentrations of PM<sub>2.5</sub>

### 3 结论

1) 砵矶岛国家大气背景站 PM<sub>2.5</sub> 中  $\Sigma_{16}$ PAHs 质量浓度相对较高, 以 BkF、BbF、Phe 和 BaP 为主。

2)  $\Sigma_{16}$ PAHs 质量浓度呈现冷季高、暖季低的趋势。冷季主要受京津冀等地区燃煤和城市复合污染输出的显著影响; 夏季则以山东半岛及周边地区的生物质焚烧的贡献较为明显。

3) 受区域 PAHs 输出影响, 砵矶岛 39% 以上的样品中 PAHs 总 BaP<sub>eq</sub> 已超过中国空气质量标准, 表明环渤海地区 PAHs 污染具有区域性。

### 参考文献 (References)

[1] Lin C C, Chen S J, Huang K L, et al. PAHs, PAH-induced carcinogenic potency, and particle-extract-induced cytotoxicity of traffic-related nano-ultrafine particles[J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(11): 4229-4235.

[2] Riva D R, Magalhaes C B, Lopes A A, et al. Low dose of fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) can induce acute oxidative stress, inflammation and pulmonary impairment in healthy mice[J]. *Inhalation Toxicology*, 2011, 23(5): 257-267.

[3] Lu F, Xu D, Cheng Y, et al. Systematic review and meta-analysis of the adverse health effects of ambient PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> pollution in the Chinese population[J]. *Environmental Research*, 2015, 136: 196-204.

[4] 环境保护部, 国家质量监督检验检疫总局. GB 3095—2012 环境空气质量标准[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2012.

Ministry of Environmental Protection, the State General Administration of Quality Supervision Inspection and Quarantine. GB 3095—2012 Ambient air quality standard[S]. Beijing: China Environmental Science Press, 2012.

[5] 王庚辰, 王普才. 中国 PM<sub>2.5</sub> 污染现状及其对人体健康的危害[J]. *科技导报*, 2014, 32(26): 72-78.

Wang Gengchen, Wang Pucui. PM<sub>2.5</sub> pollution in China and its harmfulness to human health[J]. *Science & Technology Review*, 2014, 32(26): 72-78.

[6] Cancio J A L, Castellano A V, Martin S S, et al. Size distributions of PAHs in ambient air particles of two areas of Las Palmas de Gran Canaria[J]. *Water Air and Soil Pollution*, 2004, 154 (1-4): 127-138.

[7] Shen H, Huang Y, Wang R, et al. Global atmospheric emissions of polycyclic aromatic hydrocarbons from 1960 to 2008 and future predictions[J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(12): 6415-6424.

[8] Zhang L, Zhang T, Dong L, et al. Assessment of halogenated POPs and

PAHs in three cities in the Yangtze River Delta using high-volume samplers[J]. *Science of the Total Environment*, 2013, 454-455: 619-626.

[9] Tan J, Guo S, Ma Y, et al. Characteristics of particulate PAHs during a typical haze episode in Guangzhou, China[J]. *Atmospheric Research*, 2011, 102(1/2): 91-98.

[10] Wang W, Simonich S, Giri B, et al. Atmospheric concentrations and air-soil gas exchange of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in remote, rural village and urban areas of Beijing-Tianjin region, north China[J]. *Science of the Total Environment*, 2011, 409(15): 2942-2950.

[11] Boynard A, Clerbaux C, Clarisse L, et al. First simultaneous space measurements of atmospheric pollutants in the boundary layer from IASI: A case study in the North China Plain[J]. *Geophysical Research Letters*, 2014, 41(2): 645-651.

[12] Wang X, Chen Y, Tian C, et al. Impact of agricultural waste burning in the Shandong Peninsula on carbonaceous aerosols in the Bohai Rim, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 481: 311-316.

[13] Hoh E, Hites R A. Sources of toxaphene and other organochlorine pesticides in North America as determined by air measurements and potential source contribution function analyses[J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, 38(15): 4187-4194.

[14] Jeong U, Kim J, Lee H, et al. Estimation of the contributions of long range transported aerosol in East Asia to carbonaceous aerosol and PM concentrations in Seoul, Korea using highly time resolved measurements: A PSCF model approach[J]. *Journal Environmental Monitoring*, 2011, 13(7): 1905-1918.

[15] Uygur N, Karaca F, Alagha O. Prediction of sources of metal pollution in rainwater in Istanbul, Turkey using factor analysis and long-range transport models[J]. *Atmospheric Research*, 2010, 95(1): 55-64.

[16] Li Z, Sjodin A, Porter E N, et al. Characterization of PM<sub>2.5</sub>-bound polycyclic aromatic hydrocarbons in Atlanta[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(5): 1043-1050.

[17] Barrado A I, Garcia S, Barrado E, et al. PM<sub>2.5</sub>-bound PAHs and hydroxy-PAHs in atmospheric aerosol samples: Correlations with season and with physical and chemical factors[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 49: 224-232.

[18] Liu D, Xu Y, Chaemfa C, et al. Concentrations, seasonal variations, and outflow of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) at Ningbo site, Eastern China[J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2014, 5(2): 203-209.

[19] Xu S, Liu W, Tao S. Emission of polycyclic aromatic hydrocarbons in China[J]. *Environmental Science & Technology*, 2005, 40(3): 702-708.

[20] Zhang F, Chen Y, Tian C, et al. Identification and quantification of shipping emissions in Bohai Rim, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 497-498: 570-577.

[21] 周颖, 周家斌, 王磊, 等. 武汉秋冬季大气 PM<sub>2.5</sub> 中多环芳烃的分布特征及来源[J]. *生态环境学报*, 2013, 22(3): 506-511.

Zhou Ying, Zhou Jiabin, Wang Lei, et al. Spatial distribution and source apportionment of PAHs in PM<sub>2.5</sub> during autumn and winter in Wuhan[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2013, 22(3): 506-511.

[22] Wang Q, Shao M, Zhang Y, et al. Source apportionment of fine organic aerosols in Beijing[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, 9(21): 8573-8585.

[23] Peng C, Chen W, Liao X, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in urban soils of Beijing: Status, sources, distribution and potential risk [J]. *Environmental Pollution*, 2011, 159(3): 802-808.

[24] Nisbet I C T, LaGoy P K. Toxic equivalency factors (TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) [J]. *Regulatory Toxicology and Pharmacology*, 1992, 16(3): 290-300.

(责任编辑 刘志远)