

北京市奥林匹克公园 PM_{2.5} 中多环芳烃在采暖季和非采暖季的特征、来源及健康风险评估

宋光卫^{1,2} 胡健^{3*} 崔猛^{2,4} 刘海红^{5,6} 陈鑫⁷ 董鑫媛^{2,4} 赵长秋^{2,4}

(¹中国科学院地球化学研究所, 贵阳 550081; ²中国科学院大学, 北京 100049; ³中国科学院生态与环境研究中心, 北京 100085; ⁴中国科学院地理科学与资源研究所, 北京 100101; ⁵天津师范大学地理与环境科学学院, 天津 300387; ⁶天津师范大学天津市水资源与水环境重点实验室, 天津 300387; ⁷中国环境监测总站水环境监测室, 北京 100023)

摘要 采集了北京市奥林匹克公园 2017 年 12 月至 2018 年 6 月的 67 个 PM_{2.5} 样品, 对 PM_{2.5} 中多环芳烃 (PAHs) 在采暖季和非采暖季的污染情况、浓度分布特征、来源和健康风险等进行研究。利用 GC-MS 对 16 种 PAHs 进行了检测分析。采暖季和非采暖季的 PAHs 均值分别为 213.6 和 52.5 ng · m⁻³。利用比值法和主成分分析对 PAHs 进行源解析的结果显示, 北京市城区采暖季 16 种 PAHs 主要来源于煤和石油等化石高温燃烧排放, 非采暖季主要来源是机动车尾气排放; ILCR 暴露风险评估模型评估表明, 人群呼吸暴露在北京大气中具有潜在致癌风险。

关键词 多环芳烃; 北京市奥林匹克公园; PM_{2.5}; 来源; 风险评估

Distribution, source and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in PM_{2.5} in Beijing Olympic Park in heating and non-heating seasons. SONG Guang-wei^{1,2}, HU Jian^{3*}, CUI Meng^{2,4}, LIU Hai-hong^{5,6}, CHEN Xin⁷, DONG Xin-yuan^{2,4}, ZHAO Chang-qiu^{2,4} (¹Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550081, China; ²University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; ³Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China; ⁴Institute of Geographic Sciences and Natural Resources Research, Beijing 100101, China; ⁵Tianjin Key Laboratory of Water Resources and Environment, Tianjin Normal University, Tianjin 300387, China; ⁶Urban and Environmental Science College, Tianjin Normal University, Tianjin 300387, China; ⁷Water Environment Monitoring Laboratory of Chinese Environment Monitoring Station, Beijing 100023, China).

Abstract: We collected 67 particulate matter (PM_{2.5}) samples in the Beijing Olympic Park from December 2017 to June 2018 to examine the concentration, distribution characteristics and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in PM_{2.5}, and assess the health risks during the heating season and non-heating season. The PAHs were detected by the GC-MS. The average values of the total concentrations of 16 PAHs associated in PM_{2.5} in the heating season and non-heating season were 213.6 and 52.5 ng · m⁻³, respectively. The molecular diagnostic ratios and principal component analysis were applied to apportion the sources of PAHs. The results showed that the sources of PAHs were mainly derived from the combustion of petroleum and coal during heating period, and from vehicular emissions during non-heating period. The health risk evaluation of PAHs was conducted by the model of incremental lifetime cancer risk (ILCR). There were potential carcinogenesis risks when exposed to PAHs associated in PM_{2.5}.

Key words: PAHs; Beijing Olympic Park; PM_{2.5}; source; risk assessment.

国家自然科学基金重大研究计划项目(91644104)和国家重点研发计划项目(2018YFC1800306)资助。

收稿日期: 2019-04-03; 接受日期: 2019-08-12; 网络出版时间: 2019-08-12. All rights reserved. <http://www.cnki.net>

* 通讯作者 E-mail: jianhu@cees.ac.cn

多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons , PAHs) 是一类化学性质稳定 , 具有致癌性、致畸性、致突变的持久性有机污染物 (Nisbet *et al.* , 1992; Motelay *et al.* , 2003) 。有研究表明 , 人类的皮肤癌、肺癌和膀胱癌等与多环芳烃有密切联系。人体暴露于 PAHs 的环境或空气中时会引起 DNA 发生基因突变 (Menzie *et al.* , 1992; Motelay-Massei *et al.* , 2003) 。随着中国城市化的发展 , 出现了各种各样的环境问题 , 空气污染问题尤为突出。2004 年 , 中国的 PAHs 排放占全球 PAHs 排放的 20% , 达到 $114 \text{ Gg} \cdot \text{a}^{-1}$ (Zhang *et al.* , 2009) 。2010 年室外空气污染已经成为了影响中国人口健康和死亡率的第四位风险因素 (Li *et al.* , 2013) 。PM_{2.5} 作为大气污染物中主要的颗粒物之一 , 粒径小于 $2.5 \mu\text{m}$, 极易吸附 PAHs 等有害组分 , 而吸附在 PM_{2.5} 中的 PAHs 可随着 PM_{2.5} 进入人体呼吸系统并沉积在支气管和肺泡内 , 造成心脑血管和呼吸系统疾病 (孙兆彬等 , 2016; 张昭勇等 , 2017) 。

北京作为中国的超大城市之一 , 2017 年北京市人口 2171 万 , 机动车保有量为 590 万辆 , 周边地区有众多的工厂和发电厂 , 日常生活、机动车尾气以及燃煤等的排放造成了北京市大气污染严重 , 雾霾天气频繁出现 , 对人体健康造成极大的影响。北京奥林匹克公园地处北京城中轴线北端 , 北至清河南岸 , 南至北土城路 , 东至安立路和北辰东路 , 西至林翠路和北辰西路 , 总占地面积 11.59 km^2 , 是融合了办公、商业、酒店、文化、体育、会议、居住多种功能的新型城市区域 , 北京一些区域大气颗粒物中已经进行了研究 (张健等 , 2016; 王焕新等 , 2016; 张婉 , 2017) , 但是目前还没有针对该区域 PM_{2.5} 中 PAHs 污染状况的研究。为了解北京奥林匹克公园区域大气 PM_{2.5} 中 PAHs 浓度水平、污染变化和来源以及暴露风险等 , 本研究于 2017 年 12 月至 2018 年 6 月采集了该区域 PM_{2.5} 样品 , 对其中 16 种优控 PAHs 在采暖季和非采暖季的浓度水平和污染特征进行了分析 , 应用比值法和主成分分析法对 PM_{2.5} 中 PAHs 的来源进行解析 , 用呼吸暴露风险评估模型 (ILCR) 对不同人群暴露于 PM_{2.5} 中的 PAHs 所引起的致癌风险进行评价。

1 研究地区与研究方法

1.1 研究区域与样品采集

本研究的奥林匹克公园采样点 (图 1) , 位于北

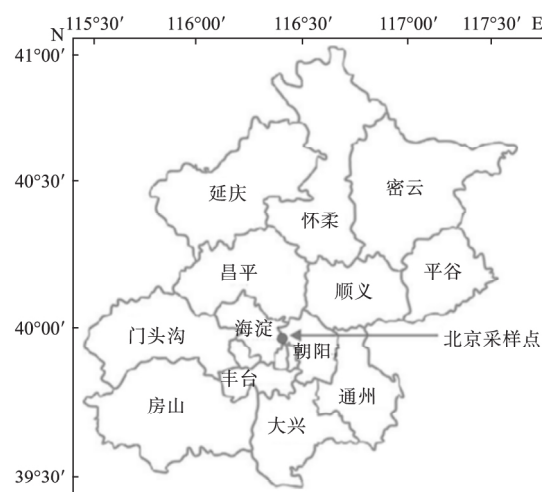


图 1 北京市奥林匹克公园 PM_{2.5} 采样位置
Fig.1 Sampling site in Beijing Olympic Park

京四环的西北角 , 距鸟巢约 1 km 处 (距地面约 24 m) 。采样时间为 2017 年 12 月至 2018 年 6 月 , 每个采样时长为 72 h 。本次研究所用的采样器为 KB-1000 型 PM_{2.5} 大流量采样器 , 流量为 $1.05 \text{ m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ 。采样膜为 Whatman 玻纤膜滤膜 , 采样前经过马弗炉 $450 \text{ }^\circ\text{C}$ 煅烧 4 h , 除去杂质 , 放入干燥器中 , 使用前称量。本研究主要检测了美国国家环境保护署 (USEPA) 列出的 16 种优控 PAHs: 萘 (Nap) 、苊稀 (Acy) 、苊 (Act) 、芴 (Flu) 、菲 (Phe) 、蒽 (Ant) 、荧蒽 (Fla) 、芘 (Pyr) 、苯并 [a] 蒽 (BaA) 、蒽 (Chr) 、苯并 [b] 荧蒽 (BbF) 、苯并 [k] 荧蒽 (BkF) 、苯并 [a] 芘 (BaP) 、茚并 [1 , 2 , 3 , cd] 花 (IND) 、二苯并 [a , h] 蒽 (DBA) 、苯并 [g , h , i] 花 (BghiP) 。

1.2 分析方法

实验中 16 种 PAHs 混标、5 种氘代 PAHs 混标 (naphthalene- d_8 (Nap- d_8) , acenaphthene- d_{10} (Ace- d_{10}) , phenanthrene- d_{10} (Phe- d_{10}) , chrysene- d_{12} (Chr- d_{12}) 和 perylene- d_{12} (Pyr- d_{12}) 购于 Accustandard 公司 , 色谱纯的正己烷、二氯甲烷购于 Merck 公司、Waters C₁₈ 固相萃取小柱 ($200 \text{ mg} \cdot 6 \text{ mL}^{-1}$) 购于安捷伦公司。玻纤滤膜购于 Whatman 公司 , 所用玻璃仪器均放入马弗炉中 $450 \text{ }^\circ\text{C}$ 烘烤 4 h 。

采样后的玻纤滤膜 , 放入干燥箱中平衡 24 h 后称量 , 用不锈钢萃取头切下 1/8 剪碎 , 将剪碎的 PM_{2.5} 玻纤滤膜样品放入萃取池 , 用 ASE350 加速溶剂萃取仪的进行萃取 , 萃取池填料为硅胶和弗洛里硅土。以二氯甲烷 : 正己烷 (2 : 1) 为萃取液 , 萃取温度为 $100 \text{ }^\circ\text{C}$, 静态萃取时间 5 min , 循环次数 3 次 , 萃取液在 $30 \text{ }^\circ\text{C}$ 下旋蒸至 1 mL 再加入 10 mL 正己烷

转换溶剂,浓缩至0.5 mL左右,过C₁₈固相萃取小柱净化,再用二氯甲烷:正己烷(1:1)洗脱,氮吹浓缩后移入2 mL进样瓶中,定容至1 mL,再进行仪器分析。

采用气相色谱-质谱仪(Agilent GC QTOF)进行分析检测,离子源为EI源,色谱柱为HP-5MS(15 m×250 μm×0.25 μm)。以高纯氦气为载体,流速为1 mL·min⁻¹。升温程序为:起始温度70℃,保持2 min,然后以18℃·min⁻¹的速率上升至140℃,再以12℃·min⁻¹的速率上升至240℃,保持1 min,最后以5℃·min⁻¹的速率上升到280℃保持10 min,不分流进样。

1.3 质量保证与控制

实验过程进行严格的质量控制,通过方法空白、空白加标、基质加标和样品平行等方法来保证试验方法的可靠性和实验数据的准确性。每6个样品加上一个实验室空白分析,其中Nap-d₈的回收率为65.5%±4.5%,Ace-d₁₀的回收率为75.1%±4.6%,Chr-d₁₂的回收率为80.3%±9.3%,Phe-d₁₀的回收率为78.1%±10.2%,Pyr-d₁₂的回收率为70.5%±10.1%,16种PAHs样品空白加标回收率为65.5%~110.1%,基质加标回收率为65.2%~105.5%,方法检测限为0.012~45 μg·kg⁻¹。所有结果没有经过空白和回收率的校正。

1.4 健康风险评估方法

暴露评价是对人群暴露于环境介质中有害因子的强度、频率、时间进行测量、估算或预测的过程,是进行风险评价定量的依据(段小丽等,2009)。本研究通过计算苯并(a)芘的毒性当量浓度和PAHs的呼吸暴露风险评估模型来进行PAHs的生态风险评估。

1.4.1 苯并(a)芘(BaP)的毒性当量浓度 PAHs中的BaP的毒性强、含量高且常见,在估算其他PAHs的生理毒性时,通常用TEF(toxic equivalence factor,等效毒性因子)将其他PAHs的浓度换算为相应的ρ(BaP),记为BaP_{eq},总的BaP_{eq}记为BaPE,计算公式:

$$BaPE = \sum BaP_{eq} = \sum_{i=1}^n C_i \times TEF_i \quad (1)$$

(1)式中:BaPE为各种PAH换算的BaP_{eq}之和,C_i为第i种PAHs的浓度;TEF_i为第i种PAHs的等效毒性因子。萘(Nap)、苊稀(Acy)、苊(Act)、芴(Flu)、菲(Phe)、蒽(Ant)、荧蒽(Fla)、芘(Pyr)、苯

并[a]蒽(BaA)、蒽(Chr)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[a]芘(BaP)、茚并[1,2,3-cd]芘(IND)、二苯并[a,h]蒽(DBA)、苯并[g,h,i]芘(BghiP)对应的毒性当量因子分别为0.001、0.001、0.001、0.001、0.01、0.001、0.001、0.1、0.01、0.1、0.1、1、0.01、0.1和1(Nisbet *et al.*, 1992)。

1.4.2 PAHs的呼吸暴露风险评估 PAHs呼吸暴露评价则用ILCR模型进行评估(USEPA, 1989),ILCR计算风险如下:

$$ILCR = \frac{TEQ \times IR \times SF \times (BW/70)^{1/3} \times EF \times ED \times AF}{BW \times AT} \times cf \quad (2)$$

$$TEQ = \sum C_i \times TEF \quad (3)$$

式(2)、(3)中:TEQ表示基于BaP的毒性等效剂量(ng·m⁻³),C_i为组分i的质量浓度(ng·m⁻³)(表1);TEF_i为组分i的等效当量因子;IR为呼吸速率(m³·d⁻¹);SF为癌症斜率系数(mg·kg⁻¹·d⁻¹);BW为体重(kg);EF为每年暴露天数(d·a⁻¹);ED为暴露年数(a);AF为敏感因子;AT为终生致癌天数(d);cf为转换系数(10⁻⁶)。

2 结果与讨论

2.1 北京奥林匹克公园采暖季和非采暖季PM_{2.5}中PAHs浓度分布特征

表1显示北京奥林匹克公园PM_{2.5}中的16种PAHs检出率为100%,采暖季∑₁₆PAHs含量范围为63.3~565.8 ng·m⁻³,均值为213.6 ng·m⁻³,非采暖季的∑₁₆PAHs含量范围为6.0~125.2 ng·m⁻³,均值为52.5 ng·m⁻³。采暖季∑₁₆PAHs含量约为非采暖季的4.15倍。从图2可以看出,PM_{2.5}中∑₁₆PAHs于2017年12月、2018年1月、2018年2月维持较高的水平,并在12月达到最高值565.8 ng·m⁻³。3月变化较大,这是由于3月中旬为供暖结束时间,因此变化明显,4、5和6月皆维持在比较低的水平。与近年来北京大气PM_{2.5}中PAHs浓度相比,采暖季大气PM_{2.5}中PAHs整体有一定下降趋势,非采暖季PAHs变化不明显。与部分国外城市对比(表2),奥林匹克公园PM_{2.5}中的PAHs处于较高水平。

2.2 北京市采暖季和非采暖季PM_{2.5}中PAHs分布特征

按照PAHs苯环数量不同,将其划分为低环(2~3环)、中环(4环)和高环(5~6环)。如图3所示,采暖季低环PAHs所占比例为4.4%~24.9%,平均值为8.75%。中环所占比例为4.9%~42.8%,平

表 1 北京市奥林匹克公园采暖季和非采暖季 PM_{2.5} 中 16 种 PAHs 分布特征

Table 1 Distribution of 16 PAHs associated with PM_{2.5} in the heating season and non-heating season around Beijing Olympic Park

PAHs	采暖季					非采暖季				
	n	最小值	最大值	平均数	标准偏差	n	最小值	最大值	平均数	标准偏差
Nap	36	0.54	3.71	1.66	0.91	31	0.05	5.59	1.36	1.06
Ace	36	0.07	5.22	1.30	1.07	31	0.01	1.30	0.20	0.56
Acy	36	0.07	0.52	0.23	0.32	31	0.01	0.45	0.10	0.30
Fla	36	0.61	6.53	2.72	1.24	31	0.21	3.16	0.81	0.83
Phe	36	0.83	11.66	3.85	1.73	31	0.96	9.62	2.51	1.41
Ant	36	0.56	9.06	3.47	1.45	31	0.07	10.42	0.99	1.37
Flu	36	0.22	16.42	3.15	1.81	31	0.23	7.70	2.41	1.23
Pyr	36	1.18	91.77	7.00	3.94	31	0.88	22.56	7.01	2.37
BaA	36	1.97	21.54	9.40	2.44	31	0.16	9.07	2.69	1.62
Chr	36	0.52	23.98	10.85	2.86	31	0.14	11.16	4.15	1.69
BbF	36	2.37	40.71	15.01	3.15	31	0.36	15.70	7.59	1.97
BkF	36	2.41	34.92	11.30	2.47	31	0.18	7.44	2.32	1.36
BaP	36	3.37	65.40	21.06	3.44	31	0.10	14.45	3.84	2.01
IND	36	7.12	185.21	60.00	5.64	31	0.18	31.47	8.39	2.75
DBA	36	1.63	60.20	20.80	3.81	31	0.11	9.44	1.99	1.54
Bghip	36	5.69	120.18	41.77	4.60	31	0.14	23.23	6.18	2.34
Σ ₁₆ PAHs	36	63.2	565.8	213.6	9.05	31	6.0	125.2	52.5	5.59

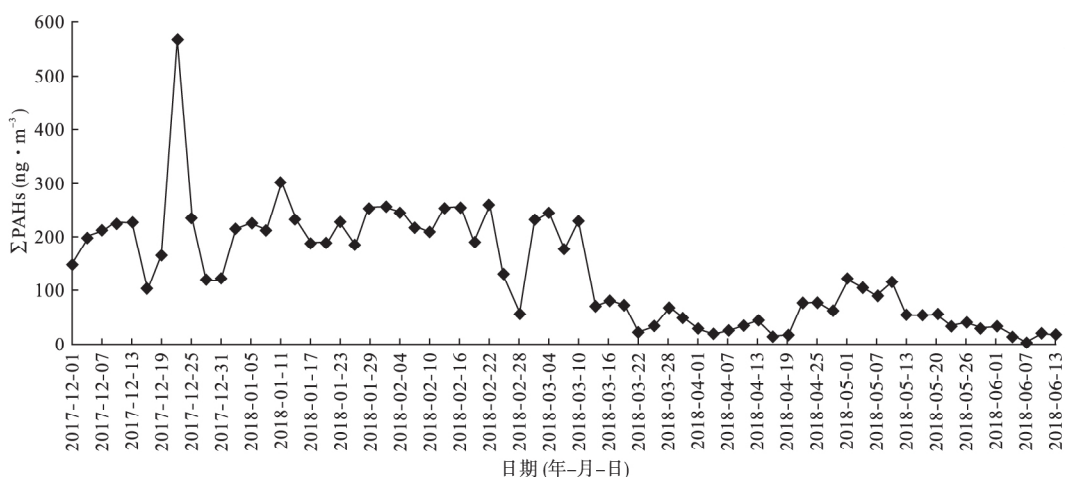


图 2 奥林匹克公园 PM_{2.5} 总 PAHs 随时间变化图

Fig.2 Total PAHs concentrations associated with PM_{2.5} around Beijing Olympic Park

表 2 北京奥林匹克公园 PM_{2.5} 中 PAHs 含量与其他地区比较

Table 2 Comparison of PAHs concentrations in PM_{2.5} in Beijing Olympic Park with other regions

国家和地区	检测年份	样品类型	浓度(ng · m ⁻³)	参考文献
美国休斯顿	1997	PM _{2.5}	0.45~0.79	Fraser <i>et al.</i> 2002
加拿大魁北克	1993—1996	PM _{2.5}	0.5~22.84	Fraser <i>et al.</i> 2002
印度泰米尔纳德邦	2008—2009	大气颗粒物	5~47.5	Sampath <i>et al.</i> 2015
中国北京	2003—2004	PM _{2.5}	春: 42.46; 夏: 26.10 秋: 36.76; 冬: 271.05	段凤魁等 2004
中国北京	2002 夏季	PM _{2.5}	26.0	Feng <i>et al.</i> 2006
中国北京	2006 夏季	PM _{2.5}	30.3	Wang <i>et al.</i> 2011
中国北京	2007 夏季	PM _{2.5}	28.2	Li <i>et al.</i> 2013
中国北京	2013 冬季	PM _{2.5}	258.2	Guo <i>et al.</i> 2016
中国北京	2017—2018	PM _{2.5}	采暖季 213.6 非采暖季 52.5	本研究

均值为 23.9%; 高环占比为 32.2%~87.8% 平均值为 67.3%。非采暖季低环 PAHs 所占比例为 6.17%~72.97%, 平均数为 23.09%。中环所占比例为 16.5%~44.5%, 平均值为 37.2%; 高环占比为 10.5%~70.6%, 平均值为 39.7% (图 4)。采暖季和非采暖季高环数所占比例都较高。低环多环芳烃主要为生物质燃料和石油的不完全燃烧, 而高环多环芳烃可能是化石燃料和木材高温燃烧的结果, 这与北京奥林匹克公园大气颗粒物中 PAHs 的来源紧密相关 (Edwards *et al.*, 1982)。采暖季的高环 PAHs 明显高于非采暖季, 可以推断是采暖季由煤或其他化石燃料高温燃烧所致。图 5 显示, 在采暖季 (12 月、1 月、2 月) 5 环所占比例最高, PAHs 含量相对较高, 且变化幅度较大。非采暖季 (4 月、5 月和 6 月) 4 环所占比例较高, 且 2 环和 3 环出现了较为明显的增长, PAHs 含量降低明显。北京每年 3 月 15 日停暖气, 可以看到在 3 月 PM_{2.5} 中 PAHs 浓度出现了较大的浓度波动。

2.3 PAHs 来源解析

2.3.1 特征组分比值法 BaP/BghiP、Ant/(Ant+

Phe)、Fla/(Fla+Pry)、BaA/(BaA+Chr)、InP/(InP+BghiP) 等特征比值常用于对 PAHs 的来源进行解析 (Kavouras *et al.*, 2001; Ravindra *et al.*, 2006)。本研究选取 BaP/BghiP、Fla/(Fla+Pry) 对大气 PM_{2.5} 中 PAHs 的来源进行解析。BaP/BghiP<0.6 指示石油和煤等高温燃烧来源, 0.2~0.6 指示交通源, BaP/BghiP>0.6 指示燃煤来源。Fla/(Fla+Pry)<0.35 代表石油源, 0.35~0.5 范围代表交通源, 0.5~0.8 范围代表煤和生物质燃烧源 (Khalili *et al.*, 1995; Yunker *et al.*, 2002)。图 6 显示, 采暖季多环芳烃主要来源于石油源、交通源以及煤和生物质燃烧的复合污染, 非采暖季则为石油源和交通源, 来源较为集中。

2.3.2 主成分分析 (PCA)

采用主成分分析法分别对北京奥林匹克公园大气 PM_{2.5} 中 PAHs 来源进行解析, 结果如表 3 所示。

通过主成分分析的因子载荷来识别 PAHs 的来源类型, 得到污染源的贡献率。高分子的多环芳烃代表机动车排放源 (Rogge *et al.*, 1993; Chang *et al.*, 2006)。低、中环多环芳烃 (包括 Acy、Phe、Ant、Flu 和 Pyr) 可能指示生物质燃烧源 (Khalili *et al.*, 1995;

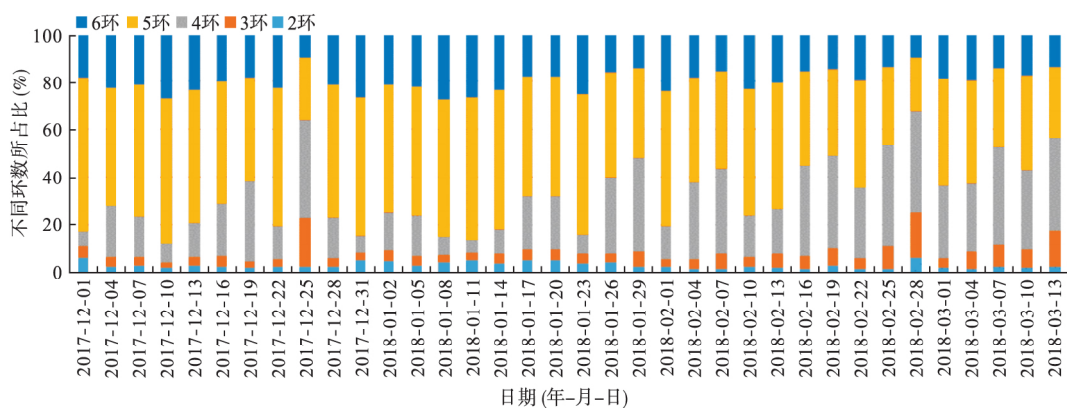


图 3 北京奥林匹克公园采暖季中不同环数多环芳烃占比

Fig.3 Constitution of PAHs with different rings in Beijing Olympic Park in heating season

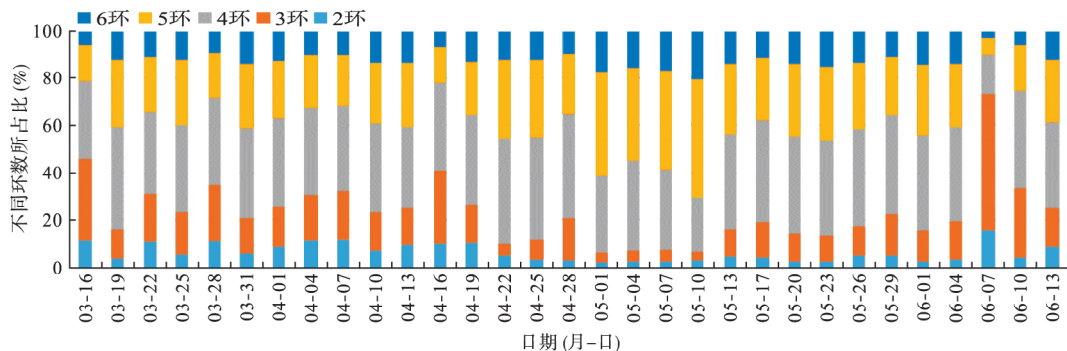


图 4 北京奥林匹克公园非采暖季不同环数多环芳烃占比

Fig.4 Constitution of different rings of PAHs in PM_{2.5} in non-heating season around Beijing Olympic Park

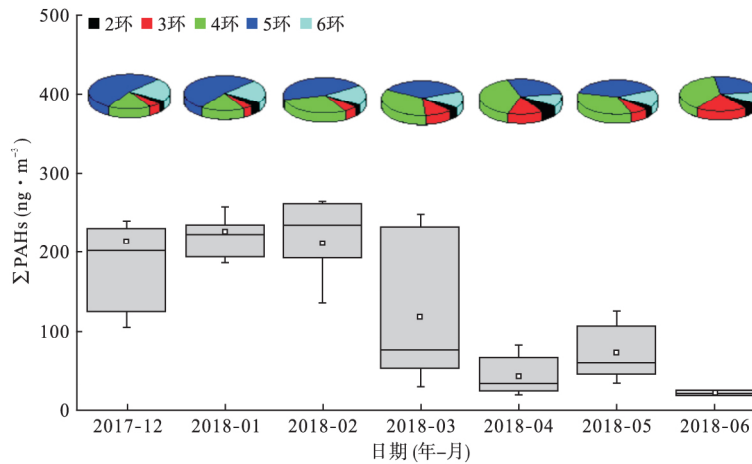


图 5 北京奥林匹克公园 PM_{2.5} 中不同环数 PAHs 月份变化图

Fig.5 Variation of different rings of PAHs in PM_{2.5} in different months around Beijing Olympic Park

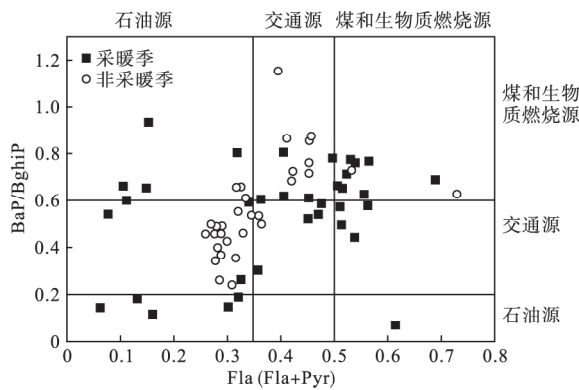


图 6 北京奥林匹克公园 PM_{2.5} 中 PAHs 特征比值法来源解析

Fig.6 Source of PAHs in PM_{2.5} by diagnostic ratios around Beijing Olympic Park

Chiu *et al.* 2011) 低环 Nap、Acy、Ace 是石油类物质排放的主要产物 (Wang *et al.* 2009)。采暖季、非采暖季的提取累积方差贡献率分别为 77.8% 和 87.9%。如表 3 所示: 采暖季因子 1 中 Ace、Acy、Flu、Phe、Ant、IND、DBA、Bghip 载荷较高, 因子 2 主要是 Phe、BaA、BkF、BaP 载荷较高, 因子 3 主要是 Nap、Fla 载荷较高。3 个因子依次认定为: 石油源和生物质混合燃烧源; 煤碳燃烧源、石油、天然气混合燃烧源以及石油、天然气排放。非采暖季因子 1 中 BaA、Chr、BkF、BaP、IND、DBA、Bghip 载荷较高, 因子 2 中 Nap、Acy、Flu、Phe、Fla 载荷较高, 因子 3 中 Pyr 载荷较高。如表 3 显示, 采暖季来源比较分散, 可以推测采暖季 PAHs 来源于复合污染, 主要是石油源和生物质燃烧源以及煤碳燃烧。同时, 机动车排放也贡献相当大的一部分来源。非采暖季 PAHs 主要来源于石油源和交通源。

2.4 苯并(a)芘的毒性当量浓度和 PAHs 的呼吸暴露风险

一般认为, BaP_{eq} 值小于 $1 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 对人体健康危害不大。本研究计算得出采暖季和非采暖季苯并(a)芘的毒性当量浓度分别为 $69.2 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 、非采暖季为 $11.6 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 结果显示对人体具有明显的健康危害。

ILCR 值大于 10^{-6} 表明具有潜在的危险, 若其值大于 10^{-4} 则表明潜在风险较高危害比较严重 (Chen *et al.* 2006)。按照年龄将人群分为儿童 (1~11),

表 3 北京奥林匹克公园 PM_{2.5} 中 PAHs 主成分分析来源解析结果

Table 3 Source of PAHs by PCA method in the PM_{2.5} around Beijing Olympic Park

因子	采暖季			非采暖季		
	因子 1	因子 2	因子 3	因子 1	因子 2	因子 3
Nap	0.262	0.159	0.754	0.236	0.895	-0.121
Ace	0.909	0.132	-0.038	0.789	-0.313	-0.084
Acy	0.716	0.153	0.315	0.305	0.909	-0.195
Flu	0.912	0.138	0.049	0.479	0.824	-0.142
Phe	-0.553	0.671	-0.047	0.237	0.909	0.081
Ant	0.893	0.086	-0.04	0.319	0.644	-0.136
Fla	-0.605	0.316	-0.264	0.193	0.810	0.487
Pyr	-0.211	0.285	-0.676	0.139	-0.289	0.886
BaA	-0.449	0.77	0.21	0.967	-0.182	0.018
Chr	-0.663	0.633	0.187	0.877	0.088	0.25
BbF	-0.589	0.635	0.32	0.759	0.296	0.322
BkF	0.258	0.823	-0.175	0.945	-0.252	-0.076
BaP	0.224	0.830	-0.083	0.952	-0.28	-0.051
IND	0.812	0.481	-0.135	0.922	-0.285	-0.115
DBA	0.866	0.131	-0.071	0.912	-0.309	-0.142
Bghip	0.784	0.493	-0.110	0.926	-0.269	-0.104
贡献率 (%)	43.01	24.86	9.87	48.95	30.64	8.40

表4 各个年龄段各项生理指标和敏感因子及 ILCR 值
Table 4 Physiological indexes and sensitive factors in different age groups and ILCR value

参数 性别	儿童		青年		成人	
	男	女	男	女	男	女
TEQ ^a 采暖季	69.24	69.24	69.24	69.24	69.24	69.24
TEQ ^a 非采暖季	11.63	11.63	11.63	11.63	11.63	11.63
IR	8.4	8.4	13.1	3.1	13.3	13.3
SF	3.9	3.9	3.9	3.9	3.9	3.9
BW	17.2	16.5	47.1	44.8	60.2	53.1
EF	6	6	14	14	30	30
ED	365	365	365	365	365	365
AF	3	3	3	3	1	1
AT	25500	25500	25500	25500	25500	25500
ILCR ^b 采暖季	21.28	21.88	39.57	9.68	24.36	26.49
ILCR ^b 非采暖季	3.57	3.68	6.65	1.63	4.09	4.45

^a表示 TEQ 单位为 $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$; ^b表示 ILCR 单位为 10^{-6} 。

青少年(12~17)和成年人(18~70)具体各生理指标和敏感因子见表4,计算了相应的 ILCR 值。

结果显示,采暖季和非采暖季 ILCR 值均超过 10^{-6} ,采暖季 ILCR 值为 $9.68 \times 10^{-6} \sim 39.57 \times 10^{-6}$,非采暖季为 $1.63 \times 10^{-6} \sim 6.68 \times 10^{-6}$ 。总的来说,不同年龄群体的 ILCR 均超过了 1×10^{-6} ,采暖季的 ILCR 值是非采暖季的 6~8 倍,表明暴露在北京空气中对人体健康具有潜在的致癌风险。

3 结论

北京市采暖季大气中的多环芳烃含量为 $63.2 \sim 565.8 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,均值为 $213.6 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,非采暖季的范围为 $6.0 \sim 125.2 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,均值为 $52.5 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 。其中高环数多环芳烃占比较高。

比值法和主成分分析来源解析结果显示北京市城区采暖季和非采暖季 $\text{PM}_{2.5}$ 中的 PAHs 来源具有明显差异,采暖季 PAHs 主要来源为煤和化石燃料等的复合燃烧污染,其次为机动车尾气排放,非采暖季主要来源为石油源和交通源。

采暖季和非采暖季的苯并(a)芘的毒性当量值分别为 69.2 和 $11.6 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,均大于 $1 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 。PAHs 的呼吸暴露风险评估 ILCR 值结果显示,暴露在北京大气中具有潜在致癌风险。

参考文献

段凤魁,贺克斌,马永亮. 2009. 北京 $\text{PM}_{2.5}$ 中多环芳烃的污染特征及来源研究. 环境科学学报, **29**(7): 1363-1371.

段小丽,聂静,王宗爽,等. 2009. 健康风险评估中人体暴露参数的国内外研究概况. 环境与健康杂志, **26**(4):

370-374

孙兆彬,安兴琴,崔麓麓,等. 2016. 北京地区颗粒物健康效应研究——沙尘天气、非沙尘天气下颗粒物($\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10})对心血管疾病入院人次的影响. 中国环境科学, **36**(8): 2536-2544.

王焕新,张续,马琳,等. 2016. 北京市昌平区大气颗粒物中多环芳烃露及人群健康风险评价. 环境与健康杂志, (11): 999-1002.

张健,梁云平,马召辉,等. 2016. 北京市典型排放源 $\text{PM}_{2.5}$ 中多环芳烃成分谱特征. 环境工程学报, **10**(6): 3141-3146.

张婉. 2017. 北京市大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中糖类化合物及多环芳烃污染特征研究(硕士学位论文). 北京: 中国地质大学(北京).

张昭勇,欧莉莉,罗嘉莹. 2017. 空气中多环芳烃在人体中的代谢反应及其对吸入性过敏性疾病的影响机制. 环境卫生学杂志, (1): 69-74.

Chang KF, Fang GC, Chen JC, et al. 2006. Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Asia: A review from 1999 to 2004. *Environmental Pollution*, **142**: 388-396.

Chen SC, Liao CM. 2006. Health risk assessment on human exposed to environmental polycyclic aromatic hydrocarbons pollution sources. *Science of the Total Environment*, **366**: 112-123.

Chiu J, Shen Y, Li H, et al. 2011. Effect of biomass open burning on particulate matter and polycyclic aromatic hydrocarbon concentration levels and PAH dry deposition in ambient air. *Environmental Letters*, **46**: 188-197.

Edwards NT, Ross-Todd BM, Garver EG. 1982. Uptake and metabolism of ^{14}C anthracene by soybean (*Glycine max*). *Environmental & Experimental Botany*, **22**: 349-357.

Feng J, Hu M, Chan CK, et al. 2006. A comparative study of the organic matter in $\text{PM}_{2.5}$ from three Chinese megacities in three different climatic zones. *Atmospheric Environment*, **40**: 3983-3994.

Fraser MP, Yue ZW, Tropp RJ, et al. 2002. Molecular composition of organic fine particulate matter in Houston, TX. *Atmospheric Environment*, **36**: 5751-5758.

Guo X, Li C, Gao Y, et al. 2016. Sources of organic matters (PAHs and n-alkanes) in $\text{PM}_{2.5}$ of Beijing in haze weather analyzed by combining the C-N isotopic and PCA-MLR analysis. *Environmental Science: Processes & Impacts*, **18**: 314-322.

Khalili NR. 1995. PAH source fingerprints for coke ovens, diesel and gasoline engines, highway tunnels, and wood combustion emissions. *Atmospheric Environment*, **29**: 533-542.

Li X, Wang Y, Guo X, et al. 2013. Seasonal variation and source apportionment of organic and inorganic compounds in $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} particulates in Beijing, China. *Journal of Environmental Sciences*, **25**: 741-750.

Menzie CA, Potocki BB, Joseph S. 1992. Exposure to carcinogenic PAHs in the environment. *Environmental Science &*

- Technology* , **26**: 1278–1284.
- Motelay-Massei A , Ollivon D , Garban B , *et al.* 2003. Polycyclic aromatic hydrocarbons in bulk deposition at a suburban site: Assessment by principal component analysis of the influence of meteorological parameters. *Atmospheric Environment* , **37**: 3135–3146.
- Nisbet IC , Lagoy PK. 1992. Toxic equivalency factors (TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). *Regulatory Toxicology & Pharmacology* , **16**: 290–300.
- Rogge WF , Hildemann LM , Mazurek MA , *et al.* 1993. Sources of fine organic aerosol. 2. Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavy-duty diesel trucks. *Environmental Science & Technology* , **27**: 636–651.
- Sampath S , Shanmugam G , Selvaraj KK , *et al.* 2015. Spatio-temporal distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in atmospheric air of Tamil Nadu , India , and human health risk assessment. *Environmental Forensics* , **16**: 67–87.
- USEPA. Risk assessment guidance for superfund: Volume 1: Human health evaluation manual (part A): Interim final. Washington DC: US Environmental Protection Agency , Office of Emergency and Remedial Response , 1989.
- Wang KY , Shen YT , Zhang SC , *et al.* 2009. Application of spatial analysis and multivariate analysis techniques in distribution and source study of polycyclic aromatic hydrocarbons in the topsoil of Beijing , China. *Environmental Geology* , **56**: 1041–1050.
- Yunker MB , Macdonald RW , Vingarzan R , *et al.* 2002. PAHs in the Fraser River basin: A critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition. *Organic Geochemistry* , **33**: 489–515.
- Zhang Y , Tao S. 2009. Global atmospheric emission inventory of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) for 2004. *Atmospheric Environment* , **43**: 812–819.
-
- 作者简介 宋光卫 男 ,1992 年生 ,硕士研究生 ,主要从事环境污染多环芳烃的研究。E-mail: guangweisong@163.com
责任编辑 魏中青
-