

2019—2020年兰州市两城区大气多环芳烃污染特征、来源与健康风险评估

李盛¹, 王金玉^{2a}, 高青^{2b}, 杨海霞³, 魏巧珍³, 冯亚莉^{2a}, 李守禹^{2a}, 李普⁴, 刘琼⁵, 任晓卫^{2a}, 王称⁶

1. 兰州市第一人民医院公共卫生科,甘肃兰州730050
2. 兰州大学 a. 基础医学院 b. 公共卫生学院,甘肃兰州730000
3. 甘肃省疾病预防控制中心公共卫生科,甘肃兰州730000
4. 白银市第二人民医院,甘肃白银730900
5. 兰州市疾病预防控制中心,甘肃兰州730030
6. 甘肃省妇幼保健院,甘肃兰州730050

摘要:

[背景]多环芳烃(PAHs)是大气中分布最广泛、对人群危害最大的有机污染物之一。

[目的]探究2019—2020年兰州市两城区大气中PAHs的分布特征及组成来源,并评估PAHs经吸入途径对不同人群的健康风险。

[方法]于2019年1月至2020年12月在兰州市两城区(城关区和西固区)定期对大气中16种PAHs质量浓度(后简称为浓度)进行检测,采用Mann-Whitney U秩和检验比较两组中位数的差异,采用特征比值法和主成分分析法对其来源进行解析,采用终生致癌风险(ILCR)模型对PAHs进行健康风险评估。

[结果]2019—2020年兰州市城关区、西固区PAHs年浓度 [$M(P_{25}, P_{75})$]分别为24.04(14.59, 41.81) $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和25.97(18.59, 42.56) $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$,差异无统计学意义($Z=-0.970, P>0.05$)。季节分布特征显示,城关区多数PAHs单体浓度在夏季高于西固区,且苯并[a]蒽和苯并[g,h,i]芘在春秋季节也高于西固区($P<0.05$),但冬季两城区PAHs单体浓度无明显差异($P>0.05$)。环数分布特征表明,在冬春季,城关区、西固区占比最高的均为4环PAHs,分别为37.32%~41.73%、35.20%~39.66%,在夏秋季,城关区、西固区占比最高的均为2~3环PAHs,分别为39.38%~49.54%~47.17%~51.23%,具有季节波动性。特征比值法分析表明,两城区大气PAHs的主要来源是化石燃料、煤炭及生物质燃烧的混合来源。主成分分析法结果显示,四个主成分因子累计贡献率达到79.54%。主成分1包括菲、蒽、荧蒽、芘、屈、苯并[a]蒽、苯并[b]荧蒽、苯并[k]荧蒽和苯并[a]芘;主成分2包括二氢苊、二苯并[a,h]蒽;主成分3是芴;主成分4为萘。健康风险评估结果表明,城关区成年男性、成年女性及儿童的ILCR值分别为 2.30×10^{-6} 、 2.16×10^{-6} 和 1.73×10^{-6} ;西固区男性、女性及儿童的ILCR值分别为 1.58×10^{-6} 、 1.48×10^{-6} 和 1.19×10^{-6} ;均大于 10^{-6} 。

[结论]兰州市两城区大气存在PAHs污染,其主要来源为化石燃料、煤炭及生物质燃烧的混合来源,且对人群存在潜在致癌风险。

关键词:多环芳烃;分布;来源;健康风险评估

Pollution characteristics, sources, and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in atmosphere of two districts of Lanzhou City from 2019 to 2020 LI Sheng¹, WANG Jinyu^{2a}, GAO Qing^{2b}, YANG Haixia³, WEI Qiaozhen³, FENG Yali^{2a}, LI Shouyu^{2a}, LI Pu⁴, LIU Qiong⁵, REN Xiaowei^{2a}, WANG Cheng⁶ (1. Department of Public Health, Lanzhou First People's Hospital, Lanzhou, Gansu 730050, China; 2.a. School of Basic Medicine b. School of Public Health, Lanzhou University, Lanzhou, Gansu 730000, China; 3. Department of Public Health, Gansu Provincial Centre for Disease Control and Prevention, Lanzhou, Gansu 730000, China; 4. Baiyin Second People's Hospital, Baiyin, Gansu 730900, China; 5. Lanzhou Center for Disease Control and Prevention, Lanzhou, Gansu 730030, China; 6. Gansu Provincial Maternity and Child-care Hospital, Lanzhou, Gansu 730050, China)

Abstract:

[Background] Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) are one of the most widely distributed



DOI [10.11836/JEOM21475](https://doi.org/10.11836/JEOM21475)

基金项目

甘肃省科技计划资助项目(20YF8FA075, 20CX9FA134);兰州市卫健委科技计划项目(2019-001)

作者简介

李盛(1976—),男,学士,主任医师;
E-mail: 1178708407@qq.com

通信作者

王金玉,E-mail: wangjiny@lzu.edu.cn

伦理审批 不需要

利益冲突 无申报

收稿日期 2021-09-30

录用日期 2022-09-08

文章编号 2095-9982(2022)11-1269-08

中图分类号 R12

文献标志码 A

补充材料

www.jeom.org/article/cn/10.11836/JEOM21475

引用

李盛,王金玉,高青,等.2019—2020年兰州市两城区大气多环芳烃污染特征、来源与健康风险评估[J].环境与职业医学,2022,39(11):1269-1276.

本文链接

www.jeom.org/article/cn/10.11836/JEOM21475

Funding

This study was funded.

Correspondence to

WANG Jinyu, E-mail: wangjiny@lzu.edu.cn

Ethics approval Not required

Competing interests None declared

Received 2021-09-30

Accepted 2022-09-08

Supplemental material

www.jeom.org/article/en/10.11836/JEOM21475

To cite

LI Sheng, WANG Jinyu, GAO Qing, et al. Pollution characteristics, sources, and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in atmosphere of two districts of Lanzhou City from 2019 to 2020[J]. Journal of Environmental and Occupational Medicine, 2022, 39(11):1269-1276.

Link to this article

www.jeom.org/article/en/10.11836/JEOM21475

and harmful organic pollutants in the atmosphere.

[Objective] To investigate the distribution characteristics and composition sources of PAHs in the atmosphere of two districts of Lanzhou from 2019 to 2020 and evaluate the health risks of PAHs via inhalation to different populations.

[Methods] The PAHs concentrations in two urban areas (Chengguan District and Xigu District) of Lanzhou City from January 2019 to December 2020 were regularly monitored. Mann-Whitney *U* test was used to compare differences in target pollutant concentrations between the two areas. Diagnostic ratio method and principal component analysis were adopted for source identification. Incremental lifetime cancer risk (ILCR) model was applied to evaluate the health risks of PAHs.

[Results] The M (P_{25} , P_{75}) PAHs concentrations in Chengguan District and Xigu District were 24.04 (14.59 , 41.81) $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$ and 25.97 (18.59 , 42.56) $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$, respectively, with no significant difference ($Z=-0.970$, $P > 0.05$). As to seasonal distribution, most PAHs monomer concentrations in Chengguan District were higher than those in Xigu District in summer, and the concentrations of benzo[*a*]anthracene and benzo[*g,h,i*]perylene in Chengguan District were also higher than those in Xigu District in spring and autumn ($P < 0.05$), but there were no significant differences in PAHs monomer concentrations between the two urban areas in winter ($P > 0.05$). Ring number of PAHs exhibited seasonal fluctuations. In winter and spring, the highest proportions in Chengguan District and Xigu District were both 4-ring PAHs (37.32%-41.73%, 35.20%-39.66%), and in summer and autumn, the highest proportions were both 2- and 3-ring PAHs (39.38%-49.54%, 47.17%-51.23%). The results of diagnostic ratio method revealed mixed atmospheric PAHs sources in the two urban areas, including fossil fuel, coal, and biomass combustion. The results of principal component analysis showed that the cumulative contribution rate of the four principal component factors reached 79.54%. Principal component 1 included phenanthrene, anthracene, fluoranthene, pyrene, chrysene, benzo[*a*]anthracene, benzo[*b*]fluoranthene, benzo[*k*]fluoranthene, and benzo[*a*]pyrene; principal component 2 included acenaphthene and dibenzo[*a,h*]anthracene; principal component 3 was fluorene; principal component 4 was naphthalene. The results of health risk assessment showed that the ILCR values of adult males, adult females, and children in Chengguan District were 2.30×10^{-6} , 2.16×10^{-6} , and 1.73×10^{-6} , respectively; and those in Xigu District were 1.58×10^{-6} , 1.48×10^{-6} , and 1.19×10^{-6} , respectively; all were greater than 10^{-6} .

[Conclusion] PAHs pollution exists in the atmosphere of the two urban areas of Lanzhou City, mainly comes from mixed sources of fossil fuels, coal, and biomass burning, and may pose potential carcinogenic risks to the population.

Keywords: polycyclic aromatic hydrocarbons; distribution; source; health risk assessment

多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 是一组含有至少两个具有稠合结构苯环的有机化合物, 也是一类广泛存在于环境中的持久性有毒物质, 具有致癌性和致突变性, 并可长期悬浮在空气中^[1]。PAHs 的形成既有火山爆发、森林火灾自然来源, 也有煤、化石燃料或生物质的不完全燃烧, 工业废气, 交通排放等人为活动来源^[2]。随着工业化和城市化进程的加快, 能源消耗迅速增加, 全球 PAHs 的排放量和大气浓度持续增加, 人类活动是其主要的贡献者^[3], 美国环境保护局 (Environmental Protection Agency, EPA) 将 16 种 PAHs 列为大气主要污染物^[4]。由于 PAHs 的半挥发性, 吸附在颗粒物上的 PAHs 具有较高的分子量, 对人体的毒性更大, 接触这些 PAHs 会增加患皮肤癌和肺癌等疾病的风险^[5-6]。近年来研究发现, 大气颗粒物 PAHs 已成为我国城市中最受关注的污染物之一^[7]。然而, 由于城市发展、气象条件和能源消耗等方面差异, 不同城市大气颗粒物 PAHs 的污染水平差异很大^[8]。兰州市作为典型的河谷型城市, 其产业结构以重工业为主, 春季沙尘暴频发, 冬季燃煤供暖增多, 全年气候干燥, 降水量少, 大气中的颗粒物不易被沉降扩散, 使大气污染难以治理, 吸附在大气颗粒物上的 PAHs 更是不容忽视^[9]。本研究就兰州市两个不同功能的城区

大气 PAHs 的分布特征、组成特征、来源以及健康风险进行综合分析, 研究结果可为兰州市大气污染防治提供参考。

1 材料与方法

1.1 样品的采集

于 2019 年 1 月至 2020 年 12 月在兰州市城关区 (商居混合区) 和西固区 (核心工业区) 进行样品采集。采样前, 将石英纤维滤膜 (Whatman 滤膜, 90 mm, GE, 英国) 放入马弗炉中于 400°C 下加热 4 h, 进行干燥预处理。采样时, 使用大气 TSP 智能中流量 $\text{PM}_{2.5}$ 采样器 (TH-150C, 武汉天虹, 中国) 和石英纤维滤膜采集大气样品, 进气口高度距离地面约 10 m, 采样流量为 $100 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, 每天采样 24 h, 每月 10—16 日每个采样点连续采样 7 d, 记录采样时间、气流量、气温、大气压, 便于换算成标准体积。采样后将滤膜放进恒温恒湿箱 (上海恒准仪器科技有限公司, 中国) 平衡 24 h 后进行称量, 4°C 避光低温保存待用, 共获得 $\text{PM}_{2.5}$ 样品 322 份 (2020 年 2 月因新冠疫情未外出采样)。

1.2 PAHs 的洗脱和检测

利用高效液相色谱法从 $\text{PM}_{2.5}$ 上洗脱 PAHs, 样品处理具体步骤如下: 将采样后的玻璃纤维滤膜尘面向

内剪成小条, 放入 50 mL 离心管中, 加入二氯甲烷 30 mL, 冰浴超声 20 min 收集提取液, 再加入二氯甲烷 30 mL, 冰浴超声 20 min 收集提取液; 合并两次提取液, 在旋转蒸发仪上低温浓缩至近干; 最后用乙腈定容至 2 mL, 过 0.22 μm 有机滤膜, 保存待测。利用高效液相色谱仪依次检测 16 种 PAHs 单体萘(naphthalene, Nap)、苊烯(perylene, Any)、芴(fluorene, Flu)、二氢苊(ace-naphthene, Ace)、菲(phenanthrene, Phe)、蒽(an-thracene, Ant)、荧蒽(fluoranthene, Flt)、芘(pyrene, Pyr)、屈(chrysene, Chr)、苯并[a]蒽(benzo[a]an-thracene, BaA)、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)、二苯并[a,h]蒽(dibenzo[a,h]anthracene, DbahA)、苯并[g,h,i]芘(benzo[g,h,i]perylene, BghiP)、茚并[1,2,3-cd]芘(indeno[1,2,3-cd]pyrene, IcdP)的质量浓度(后简称为浓度), 根据采样体积换算得到空气中相应化合物的含量。

1.3 PAHs 的来源解析

特征比值法是解析 PAHs 来源的传统方法, 特定 PAHs 化合物或 PAHs 类化合物的浓度可用于确定不同的排放源^[3]。近年来, 许多研究应用特征比值法得出如下结论: Ant/(Ant+Phe) 值小于 0.1 表示来源为石油源, 大于或等于 0.1 表示燃烧源; BaA/(BaA+Chr) 值小于 0.2 表示为石油源, 介于 0.2~0.35 之间表示石油源或燃烧源, 大于 0.35 表示与煤炭和生物质燃烧有关的来源^[10]; BaP/BghiP 值小于 0.6 表示非交通源, 等于或大于 0.6 与交通排放源相关; 当 IcdP/(IcdP+BghiP) 值小于 0.2 时来源为石油源, 介于 0.2~0.5 之间表示化石燃料燃烧源, 大于 0.5 则为煤炭或生物质燃烧源^[11~12]。

主成分分析法是利用降维的思想, 把多目标转化为少数几个综合指标^[13], 即将原来具有一定相关性的信息指标重新组合成一组新的相互无关的综合指标, 同时根据实际需要从中可以取出若干综合指标尽可能多地反映原来指标的信息的统计分析方法, 常被用来分析污染物的分类和寻找其来源。本研究应用 SPSS 25.0 软件对两城区大气中多环芳烃来源进行主成分分析。

1.4 PAHs 的健康风险评估

1.4.1 计算等效毒性质量浓度 选择研究最多的 BaP 作为参考物, BaP 是唯一被国际癌症研究机构列为 1 类致癌物的 PAHs, 通过毒性当量因子(toxic equivalence factor, TEF)来计算不同类型 PAHs 的 BaP 等效毒性质量(toxic equivalent quantity, TEQ)浓度, 进而评估 PAHs 的致癌性, 基于 BaP 的 TEQ 方程如公式^[14](1)所示:

$$C_{\text{TEQ}_{\text{BaP}}} = \sum C_{\text{BaP}_{\text{eq}}} = \sum_i^{n-1} C_i f_{\text{TEF}_i} \quad (1)$$

式中: $C_{\text{TEQ}_{\text{BaP}}}$ 指 PAHs 的总体等效浓度, $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$; $C_{\text{BaP}_{\text{eq}}}$ 指 BaP 的等效毒性质量浓度, $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$; C_i 指某 PAHs 单体的浓度, $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$; f_{TEF_i} 指研究推荐的某 PAHs 单体基于 BaP 的毒性当量因子(无单位), 其中 Nap、Any、Flu、Phe、Pyr、Ace 和 Flt 的 TEF 为 0.001, Ant、Chr 和 BghiP 的 TEF 为 0.01, BaA、BbF、BkF 和 IcdP 的 TEF 为 0.1, BaP 和 DbahA 的 TEF 为 1。

1.4.2 评估致癌风险 采用美国 EPA 推荐的终生致癌风险(incremental lifetime cancer risk, ILCR)模型来评估 PAHs 的健康风险, 计算见公式^[15](2)。由于人体主要以呼吸途径接触吸附在 PM_{2.5} 上的 PAHs, 故本研究主要分析经呼吸途径造成的致癌风险, 具体暴露参数参照《中国人群暴露参数手册》^[16~18]。

$$R_{\text{ILCR}} = \frac{f_{\text{CSF}} C_{\text{TEQ}_{\text{BaP}}} v_{\text{IR}} f_{\text{EF}} t_{\text{ED}}}{m_{\text{BW}} t_{\text{AT}}} \quad (2)$$

式中: f_{CSF} 为吸入 BaP 的致癌强度系数, 为 $3.85 \text{ mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$; $C_{\text{TEQ}_{\text{BaP}}}$ 指 PAHs 的总体等效浓度, $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$; v_{IR} 为呼吸速率, 成年男性为 $17.7 \text{ m}^3\cdot\text{d}^{-1}$, 成年女性为 $14.5 \text{ m}^3\cdot\text{d}^{-1}$, 儿童为 $10.8 \text{ m}^3\cdot\text{d}^{-1}$; f_{EF} 为暴露频率, $365 \text{ d}\cdot\text{year}^{-1}$; t_{ED} 为暴露年限, 成人为 30 年, 儿童为 18 年; m_{BW} 为体重, 成年男性为 66.1 kg, 成年女性为 57.8 kg, 儿童为 32.2 kg; t_{AT} 为平均暴露时间, 为 25 550 d; R_{ILCR} 为致癌风险, 当 R_{ILCR} 在 $10^{-6} \sim 10^{-4}$ 之间, 可能存在潜在致癌风险, 当 R_{ILCR} 小于 10^{-6} 时, 可认为不存在致癌风险, 当 R_{ILCR} 大于 10^{-4} 时, 表明存在致癌风险, 且 R_{ILCR} 值越高, 致癌风险越大。

1.5 统计学方法

采用 Microsoft Excel 2013 建立数据库, 用 SPSS 25.0 进行统计分析, 数据的正态性检验采用 Kolmogorov-Smirnov 法。经正态检验发现, 城关区和西固区 PM_{2.5} 中 PAHs 浓度均不符合正态分布, 故用 $M(P_{25}, P_{75})$ 进行统计描述。两个独立样本的比较用 Mann-Whitney U 秩和检验。检验水准 $\alpha=0.05$ 。

2 结果

2.1 PAHs 的浓度

2019 和 2020 年兰州市城关区、西固区 PAHs 年均浓度 $M(P_{25}, P_{75})$ 分别为 $24.04(14.59, 41.81) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $25.97(18.59, 42.56) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 差异无统计学意义($Z=-0.970, P>0.05$)。两城区各 PAHs 单体年均浓度如补充材料表 S1 所示, 根据公式(1)计算得出: 两城区平均 $C_{\text{TEQ}_{\text{BaP}}}$ 为 $4.40 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 城关区 $C_{\text{TEQ}_{\text{BaP}}}$ 为 $5.21 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 西

固区 $C_{\text{TEQ}_{\text{BaP}}}$ 为 $3.58 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。两城区2019—2020年PAHs的月均浓度趋势见图1。在采样期间,城关区PAHs浓度略高于西固区,PAHs的月浓度从4月至10月处于较低水平,而在11月至次年3月处于较高水平。两城区PAHs浓度在2019年12月达到最高,城关区为

$89.26 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$,西固区为 $71.83 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$,城关区在2020年6月份浓度最低($12.63 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$),西固区在2019年8月最低($3.34 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)。此外,BaP作为致癌性PAHs的代表,全年在城关区和西固区的浓度分别为 $1.11(0.58, 2.04) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0.71(0.39, 1.28) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

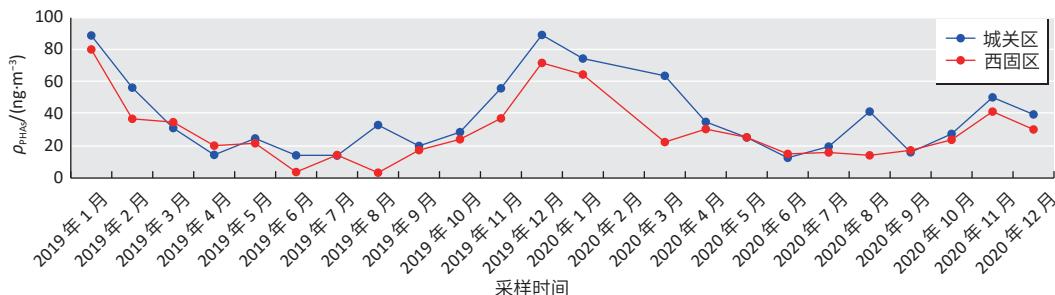
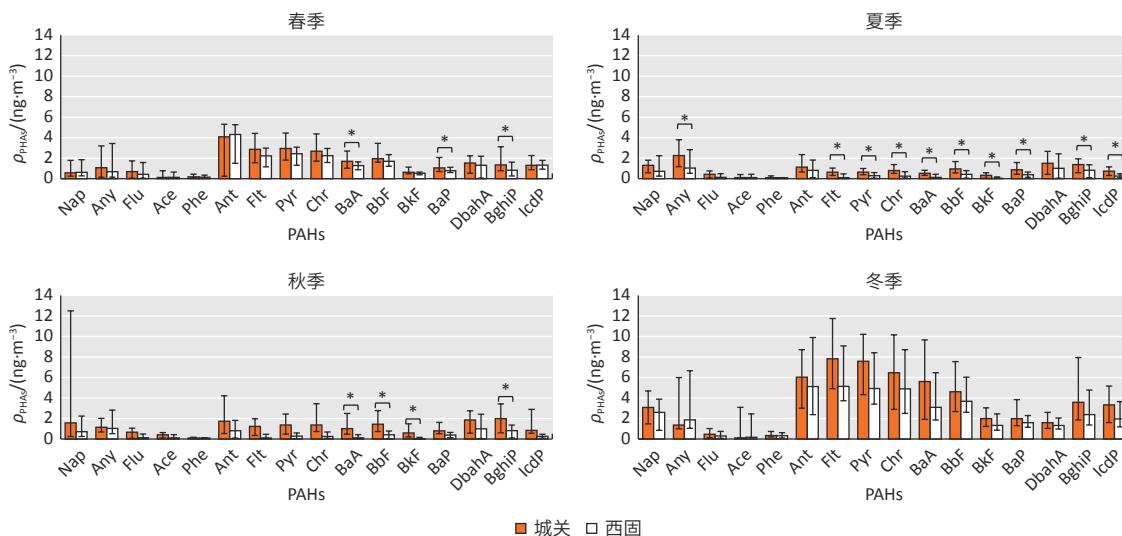


图1 兰州市两城区PAHs的浓度时间变化趋势

Figure 1 Time trend of PAHs concentrations in two urban areas of Lanzhou

进一步将两城区PAHs单体按检测月份划分为春季(2—4月)、夏季(5—7月)、秋季(8—10月)、冬季(11—1月),分析不同季节两城区PAHs单体浓度特征,结果见图2。从季节差异上来看,两城区的大多数PAHs

单体平均浓度具有季节波动性。从地区差异上来看,城关区多数PAHs单体浓度在夏季高于西固区($P < 0.05$),且BaA和BghiP在春秋季节也高于西固区($P < 0.05$),但冬季两城区PAHs单体浓度无明显差异($P > 0.05$)。



[注] *: 城关区与西固区相比, $P < 0.05$ 。

图2 兰州市两城区PAHs单体浓度季节变化趋势

Figure 2 Seasonal variations of PAHs monomer concentrations in two urban areas of Lanzhou

2.2 PAHs的环数分布特征

兰州市两城区不同季节PAHs环数分布见图3,在冬春季,城关区和西固区占比最高的均为4环PAHs,分别为 $37.32\% \sim 41.73\%$ 、 $35.20\% \sim 39.66\%$;在夏秋季,城关区和西固区占比最高的均为2~3环PAHs,分别为 $39.38\% \sim 49.54\%$ 、 $47.17\% \sim 51.23\%$,具有季节波动性。城关区全年占比最高的PAHs是2~3环PAHs(35.58%),4环次之(33.58%),6环最低(12.69%)。西固区全年占比最高的则是4环(36.76%),2~3环次之(32.40%),

6环最低(11.33%)。

2.3 PAHs的来源

本研究选择 $\text{Ant}/(\text{Ant}+\text{Phe})$ 、 $\text{BaA}/(\text{BaA}+\text{Chr})$ 、 BaP/BghiP 和 $\text{IcdP}/(\text{IcdP}+\text{BghiP})$ 四种比值来分析PAHs的潜在来源,结果见表1。所选取的四个项目在两城区的季节变化基本一致, $\text{Ant}/(\text{Ant}+\text{Phe})$ 在两城区各个季节均大于0.1, $\text{BaA}/(\text{BaA}+\text{Chr})$ 的值也基本上大于0.35,说明3环和4环PAHs可能来源于与煤炭或生物质有关的燃烧源。 BaP/BghiP 值大于0.6或者接近0.6,表明交

通排放源的 PAHs 普遍存在。 $IcdP/(IcdP+BghiP)$ 的比值在 0.0~1.0 之间变化, 表明 PAHs 来自化石燃料、煤炭及生物质燃烧的混合来源。

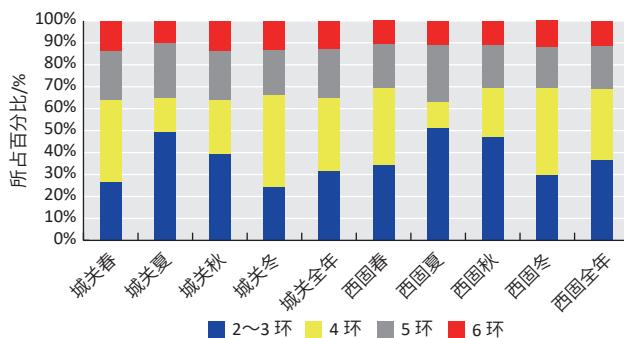


图 3 兰州市两城区不同季节 PAHs 环数分布

Figure 3 Distribution of PAHs rings in different seasons in two urban areas of Lanzhou

表 1 兰州市两城区 PAHs 的特征比值

Table 1 Diagnostic ratios of PAHs in two urban areas of Lanzhou

项目	城关				西固			
	春	夏	秋	冬	春	夏	秋	冬
Ant/(Ant+Phe)	0.93	0.42	0.23	0.44	0.95	0.37	0.25	0.56
BaA/(BaA+Chr)	0.92	0.39	0.40	0.37	0.89	0.38	0.47	0.26
BaP/BghiP	0.67	0.77	0.54	0.59	0.79	0.53	0.51	0.60
IcdP/(IcdP+BghiP)	0.93	0.50	0.07	0.46	0.94	0.46	0.08	0.51

主成分分析结果见表 2。共提取出 4 个主成分, 累计方差贡献率为 79.54%。主成分 1 包括 Phe、Ant、Flt、Pyr、Chr、BaA、BbF、BkF 和 BaP; 主成分 2 包括 Ace 和 DbahA; 主成分 3 是 Flu; 主成分 4 为 Nap。

表 2 兰州市两城区 PAHs 的主成分分析结果

Table 2 Principal component analysis results of PAHs in two urban areas of Lanzhou

PAHs	主成分1	主成分2	主成分3	主成分4
Nap	-0.065	0.427	-0.288	0.811*
Any	0.176	-0.522	0.038	0.015
Flu	0.145	-0.471	0.648*	0.333
Ace	0.430	0.674*	0.388	0.164
Phe	0.578*	-0.229	0.483	0.152
Ant	0.677*	-0.274	0.500	0.041
Flt	0.951*	-0.124	0.013	-0.010
Pyr	0.943*	-0.171	-0.131	0.005
Chr	0.967*	0.032	-0.030	-0.042
BaA	0.940*	0.196	-0.037	-0.145
BbF	0.824*	-0.304	-0.391	0.136
BkF	0.830*	0.379	0.013	-0.201
BaP	0.774*	-0.253	-0.458	0.195
DbahA	0.308*	0.738*	0.242	0.053
BghiP	0.782*	-0.041	-0.169	0.093
IcdP	0.698*	0.312	-0.009	-0.270
特征值	7.809	2.286	1.608	1.024
方差贡献率/%	48.806	14.288	10.047	6.401
累计方差贡献率/%	48.806	63.094	73.141	79.542

[注]*表示主成分。

2.4 PAHs 的人群健康风险

兰州市两城区大气 PAHs 的健康风险评估结果见表 3。两城区平均男性、女性及儿童的 ILCR 分别为 1.94×10^{-6} 、 1.82×10^{-6} 和 1.46×10^{-6} , 均大于 10^{-6} , 可认为两城区大气 PAHs 对当地居民存在潜在致癌风险; 城关区成年男性、成年女性及儿童的 ILCR 值分别为 2.30×10^{-6} 、 2.16×10^{-6} 和 1.73×10^{-6} , 均大于 10^{-6} , 可认为城关区大气 PAHs 对当地居民存在潜在致癌风险; 西固区男性、女性及儿童的 ILCR 值分别为 1.58×10^{-6} 、 1.48×10^{-6} 和 1.19×10^{-6} , 可认为西固区大气 PAHs 对当地居民有潜在致癌风险。从地区分布来看, 城关区 PAHs 的致癌风险高于西固区。从人群分布来看, 两城区 PAHs 致癌风险表现为成年男性最高, 成年女性次之, 儿童最低。

表 3 兰州市两城区 PAHs 的致癌风险

Table 3 Cancer risks of PAHs in two urban areas of Lanzhou

人群	城关ILCR	西固ILCR	平均ILCR
成年男性	2.30×10^{-6}	1.58×10^{-6}	1.94×10^{-6}
成年女性	2.16×10^{-6}	1.48×10^{-6}	1.82×10^{-6}
儿童	1.73×10^{-6}	1.19×10^{-6}	1.46×10^{-6}

3 讨论

2019 和 2020 年兰州市城关区、西固区 PAHs 年均浓度分别为 $24.04(14.59, 41.81) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $25.97(18.59, 42.56) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 与近几年我国其他省会城市大气 PAHs 污染情况相比, 兰州市 PAHs 年均浓度低于西安($243.78 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[19]和南京($307.79 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[20], 但高于长沙($9.47 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[21]及广州($4.91 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[22]。不同地区大气 PAHs 浓度差异可能来源于不同采样方法和统计方法。与以往兰州市大气 PAHs 污染情况相比, 2019 和 2020 年大气 PAHs 浓度较 2015 年($93 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[23]、2016 年($48 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[23]和 2018 年($70 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)^[24]明显降低, 说明本市大气污染治理初有成效, 这可能与近几年兰州市实行的改造燃煤锅炉、加强超标车辆管理、鼓励使用清洁燃料、坚持喷雾降尘等政策措施有关^[25]。

就两城区 PAHs 的月均浓度变化来说, 4 月至 10 月其浓度处于较低水平, 而在 11 月至次年 3 月处于较高水平。兰州市采暖季为每年 11 月初到次年 3 月底, 说明集中供暖的化石燃料燃烧导致空气中颗粒物增多, 同时不良气候(如春季沙尘暴)也影响颗粒物的扩散和沉淀, 机动车低温驱动尾气的排放也加重了空气污染。此外, BaP 作为致癌性 PAHs 的代表, 在城关区的浓度高于我国 GB 3095—2012《环境空气质量标

准》的年平均二级浓度限值($1 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)，提示城关区大气依旧存在 BaP 污染。城关区 PAHs 浓度和 BaP 浓度均高于西固区，其原因可能是城关区人群活动和机动车辆流动量较大，相当数量的 BaP 等 PAHs 可能来源于汽车尾气，从而加重了城关区空气污染。从季节差异上来看，两城区的大多数 PAHs 单体平均浓度具有季节波动性，总体上呈现冬季最高，春季次之，夏秋季较低。这与我国华北地区 PAHs 的变化基本一致，可能与冬季我国北方城市燃煤增加或化石燃料燃烧取暖增加有关^[26]，也可能与冬季低温和弱太阳辐射等气象影响导致 PAHs 的挥发性和降解率下降有关^[27]。

研究发现，低分子量 PAHs(2~3 环)主要在低温或中温燃烧过程(如石油燃烧)中产生，而高分子量 PAHs(4~6 环)主要在高温燃烧过程(如汽车内燃机和化石燃料燃烧)中产生^[28]。在冬春季，兰州市两城区占比最高的均为 4 环 PAHs，在夏秋季，两城区占比最高的均为 2~3 环 PAHs，具有季节波动性。据此推断，两城区的 PAHs 来源可能是化石燃料燃烧和车辆排放废气。就环数占比季节差异性来说，一方面，两城区在不同季节的污染源类型不同；另一方面，PAHs 的环数越大，结构式越复杂，化学性质越稳定，在大气中固-气相分配系数越大，主要以固体形式存在于大气中，而冬春季大气层稳定，气温较低，大气颗粒物不容易扩散，挥发性较弱的中高分子量 PAHs 在大气颗粒物中富集量增多，从而导致冬春季节中高分子量 PAHs 占比较高^[29]。就两城区环数占比差异来说，城关区全年占比最高的 PAHs 是 2~3 环 PAHs，西固区全年占比最高的则是 4 环。西固区周边农村地带冬季可能依旧存在以燃烧固体化石燃料为主的供暖方式，造成了西固区全年 4 环 PAHs 占比最高。

应用比值特征法对两城区 PAHs 来源进行分析，发现两城区大气 PAHs 的主要来源是化石燃料、煤炭及生物质燃烧的混合来源，与以往的研究结果基本相似^[24]。对两城区 PAHs 来源进行主成分分析，共提取出 4 个主成分，主成分 1 包括 Phe、Ant、Flt、Pyr、Chr、BaA、BbF、BkF 和 BaP，主要来源于煤炭、天然气燃烧、柴油车燃烧以及生物质燃烧^[30]；主成分 2 包括 Ace 和 DahA，主要来源于煤炭燃烧和汽油车燃烧^[31]；主成分 3 是 Flu，主要来源于煤炭燃烧和柴油车燃烧^[32]；主成分 4 为 Nap，Nap 是轻质石油产品中挥发性 PAHs 排放的标志^[33]，上述两种源分析表明兰州市两城区 PAHs 主要来源于化石燃料、煤炭燃烧以及生物质燃烧所产生的复杂混合源。

与兰州市近几年的研究相比，本研究中 2019—2020 年兰州市两城区 PAHs 的成人及儿童的 ILCR 值均低于 2014 年(4.0×10^{-6} ~ 1.6×10^{-5})^[34]和 2015 年(3.39×10^{-6} 、 1.14×10^{-5})^[26]，说明兰州市近几年的大气污染防治效果明显，空气质量有所改善，但大气 PAHs 依旧对居民存在潜在致癌风险，应继续加强治理。与近几年国内其他城市相比，兰州市两城区 PAHs 的 ILCR 值低于西安^[19]和广州^[35]等城市，但高于长春^[36]和西宁^[37]等城市。不同城市的污染源分布、气象条件、地理位置等因素的差异可能导致大气 PAHs 的水平不同；此外，采样点布设、采样方式、采样时间等因素也会影响 PAHs 的水平，从而导致各地 PAHs 的致癌风险不同。

本研究存在以下几个方面的局限性：(1)本研究所选取的采样点较少，城关区和西固区两个采样点的研究结果对兰州市整体而言具有局限性，此后的研究中设置多个采样点的代表性更好；(2)人体接触 PAHs 的途径包括经皮肤接触、经口接触等多种途径，但人体主要以呼吸途径接触吸附在 PM_{2.5} 上的 PAHs，因此本研究只考虑了经呼吸摄入 PAHs 的途径；(3)低分子量的 PAHs 因蒸气压较高，挥发性较强，主要以气态的形式存在，而高分子量的 PAHs 挥发性较弱，主要以颗粒态的形式存在。本研究仅研究了 PM_{2.5} 中颗粒态的 PAHs，此后的研究应该完善此方面的不足。

综上，本研究结果显示兰州市两城区大气呈现 PAHs 污染，主要来源为化石燃料、煤炭燃烧以及生物质燃烧所产生的复杂混合源，且存在潜在的致癌风险。因此，相关政府部门应定期监测 PAHs 的浓度，并继续实施调节能源结构、管理机动车辆废气排放等节能减排措施，以减少 PAHs 的人群暴露及其危害。

参考文献

- [1] LAKHANI A. Polycyclic aromatic hydrocarbons: sources, importance and fate in the atmospheric environment[J]. *Curr Org Chem*, 2018, 22(11): 1050-1069.
- [2] GUO L, HU J, XING Y, et al. Sources, environmental levels, and health risks of PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons in energy-producing cities in northern China[J]. *Environ Pollut*, 2021, 272: 116024.
- [3] HE Y, HE W, YANG C, et al. Spatiotemporal toxicity assessment of suspended particulate matter (SPM)-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Lake Chaohu, China: Application of a source-based quantitative method[J]. *Sci Total Environ*, 2020, 727: 138690.
- [4] 康敏捷, 樊文华, 武智晖, 等. 太原市冬季大气颗粒物中多环芳烃分布特征及健康风险评价研究[J]. *环境科学与管理*, 2021, 46(5): 180-184.
KANG MJ, FAN WH, WU ZH, et al. Distribution characteristics and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in atmospheric particulates in Taiyuan in winter[J]. *Environ Sci Manag*, 2021, 46(5): 180-184.

- [5] CHANG J, SHEN J, TAO J, et al. The impact of heating season factors on eight PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) concentrations and cancer risk in Beijing[J]. *Sci Total Environ*, 2019, 688: 1413-1421.
- [6] SARIGIANNIS D A, KARAKITSIOS S P, ZIKOPOULOS D, et al. Lung cancer risk from PAHs emitted from biomass combustion[J]. *Environ Res*, 2015, 137: 147-156.
- [7] JIN N, LI J, JIN M, et al. Spatiotemporal variation and determinants of population's PM_{2.5} exposure risk in China, 1998-2017: a case study of the Beijing-Tianjin-Hebei region[J]. *Environ Sci Pollut Res*, 2020, 27(25): 31767-31777.
- [8] YAN D, WU S, ZHOU S, et al. Characteristics, sources and health risk assessment of airborne particulate PAHs in Chinese cities: a review[J]. *Environ Pollut*, 2019, 248: 804-814.
- [9] 张稼轩, 李博, 王颖, 等. 河谷城市大气环境容量的研究[J]. *环境科学研究*, 2020, 33(4): 801-808.
- ZHANG J X, LI B, WANG Y, et al. Atmospheric environmental capacity in river valley terrain[J]. *Res Environ Sci*, 2020, 33(4): 801-808.
- [10] IWEGBUE C M A, IRERHIEVWIE G O, TESI G O, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in surficial sediments from selected rivers in the western Niger Delta of Nigeria: spatial distribution, sources, and ecological and human health risks[J]. *Mar Pollut Bull*, 2021, 167: 112351.
- [11] LIU X, SCHNELLE-KREIS J, SCHLÖTER-HAI B, et al. Analysis of PAHs associated with PM₁₀ and PM_{2.5} from different districts in Nanjing[J]. *Aerosol Air Qual Res*, 2019, 19(10): 2294-2307.
- [12] DUDHAGARA D R, RAJPARA R K, BHATT J K, et al. Distribution, sources and ecological risk assessment of PAHs in historically contaminated surface sediments at Bhavnagar coast, Gujarat, India[J]. *Environ Pollut*, 2016, 213: 338-346.
- [13] 庄马展. 厦门大气PM_{2.5}中元素特征及重金属健康风险评价[J]. *环境化学*, 2016, 35(8): 1723-1732.
- ZHUANG M Z. Characteristic of elements in PM_{2.5} and health risk assessment of heavy metals at Xiamen [J]. *Environ Chem*, 2016, 35(8): 1723-1732.
- [14] IRAPORN C, KUNCHIRAT, SURAJITT, et al. Physicochemical and toxicological characteristics of nanoparticles in aerosols in southern Thailand during recent haze episodes in lower southeast Asia[J]. *J Environ Sci*, 2020, 94(08): 72-80.
- [15] U. S. EPA. Methods for Derivation of Inhalation Reference Concentrations and Application of Inhalation Dosimetry[EB/OL]. [2021-07-23]. <https://www.epa.gov/risk/methods-derivation-inhalation-reference-concentrations-and-application-inhalation-dosimetry>.
- [16] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册: 成人[M]. 北京: 中国环境出版社, 2013: 1-69.
- Ministry of Environmental Protection. Exposure factors handbook of Chinese population: adults[M]. Beijing: China Environmental Press, 2013: 1-69.
- [17] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册(儿童卷: 0~5岁)[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2016.
- Ministry of Environmental Protection. Exposure factors handbook of Chinese population: 0-5 years Children[M]. Beijing: China Environmental Press, 2016.
- [18] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册(儿童卷6~17岁)[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2016.
- Ministry of Environmental Protection. Exposure factors handbook of Chinese population: children (6-17 years)[M]. Beijing: China Environmental Press, 2016.
- [19] 蔡瑞婷, 肖舜, 董治宝, 等. 汾渭平原典型城乡PM_{2.5}中多环芳烃特征与健康风险[J]. *地理学报*, 2021, 76(3): 740-752.
- CAI R T, XIAO S, DONG Z B, et al. Characteristics and health risk of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} in the typical urban and rural areas of the Fenwei plain[J]. *Acta Geogr Sin*, 2021, 76(3): 740-752.
- [20] MENG Q, FAN S, HE J, et al. Particle size distribution and characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons during a heavy haze episode in Nanjing, China[J]. *Particuology*, 2015, 18: 127-134.
- [21] 苏莎, 杨珍, 汪琼, 等. 长沙市某区域大气PM_{2.5}中多环芳烃的污染特征分析[J]. *中南医学科学杂志*, 2021, 49(4): 393-396.
- SU S, YANG Z, WANG Q, et al. Pollution characteristics of PAHs in PM_{2.5} at a district of Changsha[J]. *Med Sci J Central South China*, 2021, 49(4): 393-396.
- [22] 杨轶戬, 吕嘉韵, 步犁, 等. 广州市大气PM_{2.5}中多环芳烃的现状及分布情况[J]. *实用预防医学*, 2021, 28(5): 542-545.
- YANG T J, LU J Y, BU L, et al. Current status and distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in atmospheric PM_{2.5} in Guangzhou City[J]. *Prac Preve Med*, 2021, 28(5): 542-545.
- [23] 王宇红, 宋全全, 李盛, 等. 兰州市城区大气PM_{2.5}中多环芳烃的分布特征[J]. *环境卫生学杂志*, 2017, 7(5): 363-367.
- WANG Y H, SONG Q Q, LI S, et al. Distribution characteristics of PAHs in ambient PM_{2.5} in urban area of Lanzhou[J]. *J Environ Hyg*, 2017, 7(5): 363-367.
- [24] 陈瑞, 李拥军, 杨海霞, 等. 2018年兰州社区大气细颗粒物中多环芳烃的污染特征及健康风险评价[J]. *卫生研究*, 2019, 48(6): 957-963.
- CHEN R, LI Y J, YANG H X, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in fine particulate matter in Lanzhou community[J]. *J Hyg Res*, 2019, 48(6): 957-963.
- [25] 高晓丹, 李汉菁. 兰州市大气污染治理成效的初步分析[J]. *农业灾害研究*, 2020, 10(4): 69-70.
- GAO X D, LI H J. Preliminary analysis of the effect of air pollution control in Lanzhou City[J]. *J Agri Catas*, 2020, 10(4): 69-70.
- [26] SHEN R, WANG Y, GAO W, et al. Size-segregated particulate matter bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) over China: Size distribution, characteristics and health risk assessment[J]. *Sci Total Environ*, 2019, 685: 116-123.
- [27] HE LY, HU M, HUANG X F, et al. Seasonal pollution characteristics of organic compounds in atmospheric fine particles in Beijing[J]. *Sci Total Environ*, 2006, 359(1/2/3): 167-176.
- [28] DOS SANTOS RODRIGUES C C, SANTOS L, SANTOS E, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments of the Amazon River Estuary (Amapá, Northern Brazil): Distribution, sources and potential ecological risk[J]. *Mar Pollut Bull*, 2018, 135: 769-775.
- [29] JI Y L, LAN D A, HE J B, et al. Quantification and seasonal pattern of atmospheric reaction products of gas phase PAHs in PM2.5[J]. *Atmos Environ*, 2012, 55: 17-25.
- [30] GURKAN AYYILDIZ E, ESEN F. Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) at Two Sites, in Bursa, Turkey: Determination of Concentrations, Gas-Particle Partitioning, Sources, and Health Risk[J]. *Arch Environ Contam Toxicol*, 2020, 78(3): 350-366.
- [31] YIN H L, QIU C Y, YE Z X, et al. Seasonal variation and source apportionment of organic tracers in PM10 in Chengdu, China[J]. *Environ Geochem Health*, 2015, 37(1): 195-205.
- [32] WU D, Li Q, SHANG X, et al. Commodity plastic burning as a source of inhaled toxic aerosols[J]. *J Hazard Mater*, 2021, 416: 125820.
- [33] KARGAR N, MATIN G, MATIN A A, et al. Biomonitoring, status and source risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) using honeybees, pine tree leaves, and propolis[J]. *Chemosphere*, 2017, 186: 140-

- 150.
- [34] WANG Z, LI J, MU X, et al. A WRF-CMAQ modeling of atmospheric PAH cycling and health risks in the heavy petrochemical industrialized Lanzhou valley, Northwest China [J]. *J Clean Prod*, 2021, 291: 125989.
- [35] 江思力, 李文学, 步犁, 等. 广州市2018年大气PM_{2.5}中多环芳烃的污染特征分析和健康风险评价 [J]. 中国热带医学, 2020, 20(8): 710-716.
- JIANG SL, LI WX, BU L, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} in Guangzhou, 2018 [J]. *China Trop Med*, 2020, 20(8): 710-716.
- [36] 李娜, 魏鑫, 周宇峰, 等. 长春市大气环境PM_{2.5}中多环芳烃的来源解析及健康风险评价 [J]. 科学技术与工程, 2021, 21(1): 410-416.
- LI N, WEI X, ZHOU YF, et al. Source analysis and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in atmospheric environment PM_{2.5} in Changchun city [J]. *Sci Technol Eng*, 2021, 21(1): 410-416.
- [37] 吉秀亮, 杨君胜, 谢晓媛, 等. 2019年西宁市城区PM_{2.5}中多环芳烃的污染特征及健康风险评价 [J]. 现代预防医学, 2020, 47(22): 4056-4059.
- JI XL, YANG JS, XIE XY, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons of PM_{2.5} in Xining in 2019 [J]. *Mod Prev Med*, 2020, 47(22): 4056-4059.

(英文编辑: 汪源; 责任编辑: 汪源)

· 告知栏 ·

《环境与职业医学》稿件相关要求与投稿方式

长摘要

《环境与职业医学》对原创研究性论文的摘要(中英文)有特别要求: 中文摘要字数不少于700字。摘要分背景、目的、方法、结果、结论五部分; 背景部分写明主要研究背景信息, 应简洁而明确, 原则不超过50字; 重点描述方法与结果。英文摘要需提供与中文摘要对应的信息。

投稿方式

《环境与职业医学》唯一投稿方式为在线投稿。请登录杂志主页 www.jeom.org, 注册后投稿(注册账户永久有效, 不必重复注册)。一旦发现一稿两投、造假、抄袭等学术不端行为, 《环境与职业医学》将立即退稿或在杂志上刊登撤销该论文的声明, 并在一定范围内通报, 3年内拒收该作者来稿。

投稿时需提交的材料包括投稿文书、基金证明文件及伦理审批件。各文件需在投稿后7日内提交, 文件齐备后方进行稿件后续处理。自投稿之日起30日内未提交材料之稿件, 将作退稿处理。文件提交方式: ①将所有文件制作成1个压缩文件。各文件按照“1. 投稿文书; 2. 基金证明件-基金名称; 3. 伦理审批件”方式命名。②登录编辑系统, 进入稿件信息页面后, 点击“详细信息”, 于“版权协议”处上传。③如文件体积过大, 请自行压缩。

编辑部将于收稿后1周内发出回执。作者在收到回执后, 可按稿件编号登录投稿系统查询稿件处理进展。

《环境与职业医学》编辑部

2022年11月25日