调查研究
Investigation

# 福州市工业区和商业居住区大气 $PM_{2.5}$ 中多环芳烃特征的变化及其健康风险

林少凯，王恺，詹小海，卢翠英，林在生

福建省疾病预防控制中心环境与学校卫生研究室，福建 福州 350001

CC BY NC ND

DOI 10.11836/JEOM22040

**摘要：**

[背景] $PM_{2.5}$ 污染已经成为广泛关注的环境卫生问题，多环芳烃（PAHs）是 $PM_{2.5}$ 的主要有害成分之一，其来源及致癌风险值得关注。

[目的] 分析福州市工业区和商业居住区大气 $PM_{2.5}$ 中的 PAHs 的污染来源，评估其经呼吸途径对人群健康的潜在致癌风险。

[方法] 在福州市仓山（工业区）和台江（商业居住区）两个区设置采样点，于 2017—2020 年每月 10—16 日通过滤膜采样法采集 $PM_{2.5}$。通过称重法测定大气中 $PM_{2.5}$ 质量浓度，采用超高效液相色谱-二极管阵列检测器-荧光检测器检测萘（NAP）、苊烯（ACY）、苊（ACE）、芴（FLU）、菲（PHE）、蒽（ANT）、荧蒽（FLT）、芘（PYR）、苯并 [*a*] 蒽（BaA）、䓛（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（IcdP）、二苯并 [*a*,*h*] 蒽（DahA）和苯并 [*g*,*h*,*i*] 苝（BghiP）共 16 种 PAHs 的质量浓度（后称浓度）。比较两区 $PM_{2.5}$ 及 PAHs 浓度以及不同季节大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 浓度。采用特征产物比值 [FLT/(FLT+PYR)、IcdP/(IcdP+BghiP)、BaA/(BaA+CHR) 和 BaP/BghiP ] 法和正定矩阵因子（PMF）分析法判断福州市大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 污染来源，并运用超额致癌风险评估模型评估通过呼吸暴露的 PAHs 的潜在致癌风险。

[结果] 2017—2020 年福州市仓山区和台江区大气 $PM_{2.5}$ 浓度的 $M(P_{25}, P_{75})$ 分别为 35.0（25.0，47.5）$\mu g \cdot m^{-3}$ 和 34.0（25.5，46.0）$\mu g \cdot m^{-3}$，$PM_{2.5}$ 超标率分别为 2.68%和 4.17%，差异均无统计学意义（$P > 0.05$）。仓山区 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 总浓度（ΣPAH）浓度的 $M(P_{25}, P_{75})$ 为 5.03（3.07，7.67）$ng \cdot m^{-3}$，高于台江区的浓度 [3.20（2.05，5.59）$ng \cdot m^{-3}$]（$P < 0.05$）。仓山区 $PM_{2.5}$ 中，除 ACY、FLU、ACE 三者以外，其余 13 种 PAH 单体的浓度均高于台江区（$P < 0.05$）。仓山区春、夏、秋、冬大气 $PM_{2.5}$ 中 ΣPAHs 浓度也均高于台江区相应的浓度（$P < 0.05$）；两个区冬季 PAHs 浓度均高于其他 3 个季节（$P < 0.05$）。特征比值法结果显示两个采样点 FLT/(FLT+PYR) 中位数均在 0.4~0.5 之间，IcdP/(IcdP+BghiP) 中位数在 0.2~0.5 之间，BaA/(BaA+CHR) 中位数在 0.2~0.35 之间，BaP/BghiP 比值中位数小于 0.6。在仓山区采样点 PMF 分析得到 4 种因子比例依次为：37.9%、13.2%、24.0%、24.9%；4 种因子的主要负载成分：因子 1 为 FLT、PHE、PYR；因子 2 为 FLU、ACY 和 ACE；因子 3 为 DahA；因子 4 为 BghiP、IcdP 和 BaP。在台江区采样点，4 种因子比例依次为：23.6%、19.3%、22.0%、35.1%；4 种因子的主要负载成分：因子 1 为 DahA；因子 2 为 BghiP；因子 3 为 FLT、PHE、PYR；因子 4 为 IcdP、BaP、BbF、BkF、CHR、BaA。仓山区和台江区 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 的总等效致癌毒性分别为 1.87 $ng \cdot m^{-3}$ 和 1.61 $ng \cdot m^{-3}$，两区经吸入途径暴露 PAHs 的超额致癌风险分别为 $3.83 \times 10^{-6}$ 和 $3.30 \times 10^{-6}$。

[结论] 福州市大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 污染来源复杂，包括扬尘、机动车排放、工业排风等等，两区的污染来源也有所差别，PAHs 对人群健康有一定的潜在致癌风险。

**关键词：** $PM_{2.5}$；多环芳烃；来源解析；正定矩阵因子分析法；超额致癌风险

**Variations and health risk of polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient $PM_{2.5}$ in industrial and residential areas in Fuzhou City**

LIN Shaokai, WANG Kai, ZHAN Xiaohai, LU Cuiying, LIN Zaisheng (Research Office of Environmental and School Health, Fujian Provincial Center for Disease Control and Prevention, Fuzhou, Fujian 350001, China)

**Abstract:**

[Background] $PM_{2.5}$ pollution has become a widely concerned environmental health problem. Polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs) are the main harmful components of $PM_{2.5}$, and their

**基金项目**
福建省科技厅引导性项目（2017Y0009）；福建省科技创新平台建设项目（2019Y2001）

**作者简介**
林少凯（1988—），男，硕士，主管医师，
E-mail：609442392@qq.com

**通信作者**
林在生，E-mail：fjcdclzs@163.com

**伦理审批** 不需要
**利益冲突** 无申报
**收稿日期** 2022-02-01
**录用日期** 2022-09-25

**文章编号** 2095-9982(2022)11-1277-07
**中图分类号** R122.2
**文献标志码** A

**▸引用**
林少凯，王恺，詹小海，等. 福州市工业区和商业居住区大气 $PM_{2.5}$ 中多环芳烃特征的变化及其健康风险 [J]. 环境与职业医学，2022，39（11）：1277-1283.

**▸本文链接**
www.jeom.org/article/cn/10.11836/JEOM22040

**Funding**
This study was funded.

**Correspondence to**
LIN Zaisheng, E-mail: fjcdclzs@163.com

**Ethics approval** Not required
**Competing interests** None declared
**Received** 2022-02-01
**Accepted** 2022-09-25

**▸ To cite**
LIN Shaokai, WANG Kai, ZHAN Xiaohai, et al. Variations and health risk of polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient $PM_{2.5}$ in industrial and residential areas in Fuzhou City[J]. Journal of Environmental and Occupational Medicine, 2022, 39(11): 1277-1283.

**▸ Link to this article**
www.jeom.org/article/en/10.11836/JEOM22040

sources and carcinogenic risk deserve attention.

**[Objective]** To analyze the source apportionment of PAHs in ambient $PM_{2.5}$ in Fuzhou, and to evaluate the potential carcinogenic risk through inhalation due to exposure to PAHs.

**[Methods]** In this study, two sampling sites were set up in Cangshan (industrial area) and Taijiang (commercial and residential area) districts in Fuzhou City. $PM_{2.5}$ was collected from 10th to 16th of each month from 2017 to 2020 by membrane filtration method. The concentrations of ambient $PM_{2.5}$ were measured by weighing, and the concentrations of 16 PAHs, including naphthalene(NAP), acenaphthylene(ACY), acenaphthene(ACE), fluorene(FLU), phenanthrene(PHE), anthracene(ANT), fluoranthene(FLT), pyrene(PYR), benzo[*a*]anthracene(BaA), chrysene(CHR), benzo[*b*]fluoranthene(BbF), benzo[*k*]fluoranthene(BkF), benzo[*a*]pyrene(BaP), indeno[1,2,3-*cd*]pyrene(IcdP), dibenzo[*a*,*h*]anthracene(DahA), and benzo[*g*,*h*,*i*]perylene(BghiP), were determined by ultra-high performance liquid chromatography coupled with diode array detector and fluorescence detector. The concentrations of $PM_{2.5}$ and PAHs were compared in the two districts and the concentrations of PAHs were also compared in different seasons. The diagnostic ratio [FLT/(FLT+PYR), IcdP/(IcdP+BghiP), BaA/(BaA+CHR), and BaP/BghiP] method and positive matrix factorization (PMF) analysis were used to determine the sources of PAHs in $PM_{2.5}$ in Fuzhou. The excess carcinogenic risk (ECR) model was used to assess the potential health risk of inhalation exposure to PAHs.

**[Results]** During 2017–2020, the $M$ ($P_{25}$, $P_{75}$) concentration of ambient $PM_{2.5}$ in Cangshan and Taijiang districts of Fuzhou were 35.0 (25.0, 47.5) and 34.0 (25.5, 46.0) $\mu g \cdot m^{-3}$ respectively, and the percentages of $PM_{2.5}$ exceeding the national standard in Cangshan and Taijiang were 2.68% and 4.17%, respectively, without significant differences ($P > 0.05$). The $M$ ($P_{25}$, $P_{75}$) concentrations of ΣPAHs in Cangshan was 5.03 (3.07, 7.67) $ng \cdot m^{-3}$, higher than that in Taijiang, 3.20 (2.05, 5.59) $ng \cdot m^{-3}$ ($P < 0.05$). The $M$ ($P_{25}$, $P_{75}$) concentrations of PAHs monomers except ACY, FLU, and ACE in Cangshan were higher than those in Taijiang ($P < 0.05$). The concentrations of ΣPAHs in $PM_{2.5}$ in four seasons in Cangshan were higher than those in Taijiang ($P < 0.05$). In both districts, the concentration of ΣPAHs in winter was higher than those in spring, summer, and autumn ($P < 0.05$). According to the diagnostic ratio method, the median ratios of FLT/(FLT+PYR) in the two districts ranged from 0.4 to 0.5, and those of IcdP/(IcdP+BghiP), BaA/(BaA+CHR), and BaP/BghiP were from 0.2 to 0.5, from 0.2 to 0.35, and less than 0.6, respectively. The results of PMF analysis showed the proportions of four factors in Cangshan were 37.9%, 13.2%, 24.0%, and 24.9%, respectively. The major load contributors to factor 1 included FLT, PHE, and PYR; to factor 2, FLU, ACY, and ACE; to factor 3, DahA; to factor 4, BghiP, IcdP, and BaP. The proportions of four factors in Taijiang were 23.6%, 19.3%, 22.0%, and 35.1%, respectively. The main load contributor to factor 1 was DahA; to factor 2, BghiP; to factor 3, FLT, PHE, and PYR; to factor 4, IcdP, BaP, BbF, BkF, CHR, and BaA. The benzo[a]pyrene equivalences (BEQ) in Cangshan and Taijiang districts were 1.87 $ng \cdot m^{-3}$ and 1.61 $ng \cdot m^{-3}$, respectively. The excess carcinogenic risks of PAHs through inhalation exposure was $3.83 \times 10^{-6}$ and $3.30 \times 10^{-6}$, respectively.

**[Conclusion]** The complex sources of PAHs in ambient $PM_{2.5}$ include dust, vehicle emissions, industrial emissions in Fuzhou, and are different in selected two districts. The level of PAHs in ambient $PM_{2.5}$ may pose a potential carcinogenic risk to local population.

**Keywords:** $PM_{2.5}$; polycyclic aromatic hydrocarbons; source apportionment; positive matrix factorization analysis; excess carcinogenic risk

研究表明多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)是大气中 $PM_{2.5}$ 的主要毒性成分之一[1]，具致畸性、致癌性和致突变性[2]，对儿童神经发育、免疫功能均会造成不良影响[3–4]。迄今已发现 200 余种 PAHs，根据化学性质和潜在毒性，美国环境保护署(Environmental Protection Agency, USEPA)将萘(naphthalene, NAP)、苊烯(acenaphthylene, ACY)、苊(acenaphthene, ACE)、芴(fluorene, FLU)、菲(phenanthrene, PHE)、蒽(anthracene, ANT)、荧蒽(fluoranthene, FLT)、芘(pyrene, PYR)、苯并 [*a*] 蒽(benzo[*a*]anthracene, BaA)、䓛(chrysene, CHR)、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)、茚并 [1,2,3-*cd*] 芘(indene[1,2,3-*cd*]pyrene, IcdP)、二苯并 [*a*,*h*] 蒽(dibenzo[*a*,*h*]anthracene, DahA)和苯并 [*g*,*h*,*i*] 苝(benzo[*g*,*h*,*i*]perylene, BghiP)共 16 种 PAHs 列为优先控制的 PAHs[5]。

PAHs 通常由含碳物质在不完全燃烧过程中产生，大部分由人类生产活动(如生活燃煤、交通运输、工业生产、垃圾焚烧等)产生[6]。不同生产活动产生的 PAHs 成分不尽相同，2~3 环 PAHs 主要为原油和石油产品泄露、化石燃料不完全燃烧和生物质低温燃烧产生，4 环 PAHs 主要来源于煤燃烧，5~6 环 PAHs 主要来源于汽油和柴油燃烧，不同来源产生的 PAHs 的组成和质量浓度(浓度)比例有一定的差异，而同种污染源排放出的 PAHs 之间的比例相对固定，可以通过相对稳定的 PAHs 成分的比例判断 PAHs 的来源[7]。

福州市大气颗粒物浓度与国内其他地区相比，污染程度处于较低水平[8–10]，但本团队前期基于福州市 2015—2018 年数据研究发现，低浓度 $PM_{2.5}$ 可增加老年人呼吸、循环等系统疾病的死亡风险[11]，提示福州市大气颗粒物污染的健康危害同样值得关注。PAHs

作为大气颗粒物中主要毒性成分，目前国内已有部分城市对其来源解析和风险评估的报道，但不同地区的PAHs 来源不尽相同[12–14]。福州市位于祖国东南沿海，地理特征为三面环山一面临海的典型河口盆地，有其自身的气候和污染特征，然而福州市过往大气颗粒物健康影响的研究多基于颗粒物浓度或仅对 PAHs 浓度水平进行分析，PAHs 成分健康风险的分析报告较少。因此本研究旨在通过在福州市城区连续采集大气 $PM_{2.5}$，分析大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 的污染特征及来源，并评估其对人体健康的潜在致癌风险，为福州市进一步制定空气治理措施提供科学依据。

## 1 材料与方法

### 1.1 样品采集

本研究依据商业居住区和工业区的分布特征，将福州市台江区和仓山区作为监测区域。其中台江区位于中心城区，交通拥挤，人口密度大；仓山区位于福州市西部，靠近金山工业区。将台江区采样点设置于福州市疾控中心办公楼天台，仓山区采样点设置于福州市洪塘小学教学楼天台，两个采样点放置高度（距平台地面）约 10~15 m，周围均无障碍物。于 2017 年 1 月至 2020 年 12 月每月 10—16 日进行采样，如遇台风等特殊天气顺延，采样时间每日不低于 20 h。两个采样点分别采集样本 336 份。使用流量为 100 $L\cdot min^{-1}$ 的 $PM_{2.5}$ 中流量采样器（青岛恒远，中国）。滤膜采用玻璃纤维滤膜，采样前后均放入恒温恒湿箱（美墨尔特，德国）中（温度 25 ℃，湿度 50%），平衡 24 h 后采用万分之一天平（梅特勒公司，瑞士）在相同环境下称重，两次称重差不超过 0.04 mg为满足恒重要求。采样结束后滤膜用无齿塑料镊子夹取后至置于保存盒，密封后低温条件保存尽快测定。

### 1.2 样品检测

大气中 $PM_{2.5}$ 质量浓度（后称：浓度）采用称重法测定。采用超高效液相色谱仪（沃特世公司，美国）配二极管阵列检测器-荧光检测器检测 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 浓度。用乙腈提取 PAHs，使用 PAH 色谱柱分离，以甲醇、乙腈和水梯度洗脱，二极管管阵列检测器检测苊烯，荧光检测器检测其他 15 种 PAHs，外标法定量。

采样过程中放置现场空白样，1-氟萘作为多环芳烃替代物，在样品处理前加载在滤膜上再进行提取，考察样品提取方法的效率，其回收率为 93.8%~98.7%，说明该提取方法可取；通过对空白滤膜的加标回收考察方法的加标回收率，得到回收率为 90.0%~111.8%。经中疾控环境所实验室比对，方法可靠。具体实验过程数据可查阅本团队前期发表文献资料[15]。

### 1.3 PAHs 来源分析

**1.3.1 特征产物比值法** 本次研究采用 FLT/(FLT+PYR)、IcdP/（IcdP+BghiP）、BaA/（BaA+CHR）和BaP/BghiP 对PAHs 来源进行分析。不同比值提示 PAHs 不同的来源，具体见表 1。

**表 1 大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 特征产物比值提示**

Table 1 The suggestion of diagnostic ratios of PAHs in ambient $PM_{2.5}$

| 指标 | 比值 | 提示来源 |
|---|---|---|
| FLT/(FLT+PYR) [16] | <0.4 | 石油本身挥发 |
| | 0.4~0.5 | 汽油、柴油等石油燃烧 |
| | >0.5 | 草木和煤的燃烧 |
| IcdP/（IcdP+BghiP）[17] | <0.2 | 石油本身 |
| | 0.2~0.5 | 汽油、柴油等石油燃烧 |
| | >0.5 | 草木和煤的燃烧 |
| BaA/（BaA+CHR）[17] | 0.2~0.35 | 煤的燃烧 |
| | >0.35 | 机动车尾气排放 |
| BaP/BghiP[18] | <0.6 | 非交通工具排放 |
| | >0.6 | 交通工具排放 |

**1.3.2 正定矩阵因子（positive matrix factorization, PMF）分析法** 根据特征产物比值法只能半定量分析 PAHs 主要来源，但是 PAHs 的污染来源是复杂的，本研究采用 PMF 分析法进一步估计 PAHs 的来源及各种来源所占比例。PMF 是一种基于加权最小平方估计源成分谱及其贡献的多元受体模型[19]。根据 USEPA 发布的 PMF 5.0 指导手册[20]，采用方法检出限（method detection limit, MDL）和误差分数（error fraction, EF）来确定模型的不确定度（uncertainty, Unc），通过计算参差与不确定比值的平方加权值 $Q$ 对拟合优度进行评价，将运行次数设定为 20，研究因子数设定为 4，当 $Q$（robust）和 $Q$（TURE）达最低值，拟合度最佳。

### 1.4 PAHs 健康风险评估

通过致癌等效系数（toxic equivalency factors, TEFs）（$f_{TEF_i}$[21]：DahA 为 5，BaP 为 1，BaA、BbF、BkF、IcdP 为 0.1，ANT、CHR、BghiP 为 0.01，其余 7 种均为 0.001）计算 16 种 PAHs 单体的 BaP 等效毒性（benzo[a]pyrene equivalence, BEQ），计算公式如下。

$$V_{BEQ} = \sum C_i \cdot f_{TEF_i}, \quad i = 1 \sim 16 \qquad (1)$$

（1）式中：$V_{BEQ}$为 PAHs 的 BaP 等效毒性值，$C_i$ 为第 $i$ 种 PAH 浓度，$f_{TEF_i}$为第 $i$ 种 PAH 的致癌等效系数值。

结合参考 USEPA[22]和 WST 666—2019《大气污染人群健康风险评估技术规范》评估 PAHs 通过呼吸道

暴露途径造成的超额致癌风险(excess cancer risk, ECR)，其值计算公式如下。

$$R_{ECR}=(\rho_{EC}\cdot f_{ASFs_{<2}}\cdot f_{IUR})+(\rho_{EC}\cdot f_{ASFs_{2\sim16}}\cdot f_{IUR})+(\rho_{EC}\cdot f_{ASFs_{\geq16}}\cdot f_{IUR}) \quad (2)$$

(2)式中：$f_{IUR}$ 指吸入单位致癌强度系数，BaP 的 $f_{IUR}$ 为 $6\times10^{-4}$ $(\mu g\cdot m^{-3})^{-1}$[23]。$f_{ASFs}$ 为年龄敏感因子，其中 $f_{ASFs<2}$ 为 10，$f_{ASFs2\sim16}$ 为 3，$f_{ASFs\geqslant16}$ 为 1[22]；$\rho_{EC}$ 为暴露浓度值($\mu g\cdot m^{-3}$)，计算公式如下。

$$\rho_{EC}=\rho_{CA}\cdot t_{ET}\cdot t_{EF}\cdot t_{ED}/t_{AT} \quad (3)$$

(3)式中：$\rho_{CA}$ 为空气中污染物的浓度($\mu g\cdot m^{-3}$)，采用 BEQ 作为评价浓度；$t_{ET}$ 为暴露时间(24 $h\cdot d^{-1}$)；EF 为暴露频率(365 $d\cdot 年^{-1}$)；ED 为暴露持续时间(70 年)；AT 为平均暴露时间(613 200 h)，即 70 年对应的小时数。

### 1.5 统计学方法

采用 SPSS 18.0 对数据进行整理和分析，经正态性检验，所有 PAHs 均未满足正态分布，采用中位数 $M$ 和第 25、75 百分位数($P_{25}$, $P_{75}$)表示；两采样点 PAHs 浓度比较采用 Mann-Whitney $U$ 检验；按照 3—5 月、6—8 月、9—11 月、12 月—次年 2 月分成春夏秋冬四季，不同季节 PAHs 浓度比较采用 Kruskal-Wallis $H$ 检验。检验水准 $\alpha$=0.05。

## 2 结果

### 2.1 大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 组分浓度分析

仓山区和台江区 2017—2020 年 $PM_{2.5}$ 浓度 $M(P_{25}, P_{75})$ 分别为 35.0(25.0，47.5)、34.0(25.5，46.0) $\mu g\cdot m^{-3}$，差异无统计学意义($Z$=−0.077，$P$=0.939)。根据 GB3095—2012《环境空气质量标准》二级标准，仓山区和台江区 $PM_{2.5}$ 超标率分别为 2.68%和 4.17%，差异无统计学意义($P>0.05$)。

仓山区 2017—2020 年 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 总浓度(ΣPAHs 浓度)的 $M(P_{25}, P_{75})$ 为 5.03(3.07，7.67) $ng\cdot m^{-3}$，高于台江区的 3.20(2.05，5.59) $ng\cdot m^{-3}$($P<0.05$)。两个采样点比较，除 ACY、FLU、ACE 三者以外，其余 13 种 PAH 单体的浓度仓山区均高于台江区($P<0.05$)。见表 2。

### 2.2 两区不同季节大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 浓度比较

仓山区采样点春、夏、秋、冬大气 $PM_{2.5}$ 中 ΣPAHs 浓度均高于台江区采样点($P<0.05$)；对两个采样点 4 个季节 ΣPAHs 浓度进行比较，结果显示冬季 PAHs 浓度均高于其他 3 个季节($P<0.05$)。见表 3。

### 2.3 PAHs 来源

**2.3.1 特征产物比值法分析结果** 两个采样点 FLT/(FLT+PYR)中位数均在 0.4~0.5 之间，IcdP/(IcdP+BghiP)中位数在 0.2~0.5 之间，均提示来源为汽油、柴油燃烧产物；BaA/(BaA+CHR)中位数在 0.2~0.35 之间，提示来源为燃煤产物；BaP/BghiP 比值中位数小于 0.6，提示来源为非交通工具排放。见表 4。

**表 2 福州市两区大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 组分浓度**

Table 2 The concentrations of PAHs in ambient $PM_{2.5}$ in the two districts of Fuzhou

单位: $ng\cdot m^{-3}$

| PAHs | 环数 | 仓山区($n$=336) | | 台江区($n$=336) | | $Z$ | $P$ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | $M(P_{25}, P_{75})$ | 范围 | $M(P_{25}, P_{75})$ | 范围 | | |
| NAP | 2 | 0.13(0.04, 0.13) | 0.04~1.41 | 0.10(0.04, 0.13) | 0.04~0.85 | −2.857 | **0.004** |
| ACY | 3 | 0.08(0.07, 0.08) | 0.07~1.46 | 0.08(0.07, 0.08) | 0.07~1.26 | −0.013 | 0.989 |
| FLU | 3 | 0.07(0.04, 0.23) | 0.02~2.90 | 0.08(0.04, 0.20) | 0.02~1.85 | −0.187 | 0.852 |
| ACE | 3 | 0.07(0.04, 0.07) | 0.01~1.42 | 0.07(0.03, 0.07) | 0.01~1.31 | −1.298 | 0.194 |
| PHE | 3 | 0.15(0.07, 0.26) | 0.03~1.60 | 0.11(0.06, 0.22) | 0.01~1.16 | −3.606 | **<0.001** |
| ANT | 3 | 0.03(0.01, 0.04) | 0.01~0.23 | 0.02(0.01, 0.04) | 0.01~0.79 | −2.284 | **0.022** |
| FLT | 4 | 0.22(0.12, 0.41) | 0.03~2.04 | 0.16(0.05, 0.32) | 0.03~2.01 | −4.019 | **<0.001** |
| PYR | 4 | 0.31(0.19, 0.53) | 0.04~1.76 | 0.20(0.13, 0.33) | 0.01~1.58 | −7.159 | **<0.001** |
| CHR | 4 | 0.29(0.18, 0.53) | 0.04~3.03 | 0.16(0.11, 0.29) | 0.04~2.59 | −8.951 | **<0.001** |
| BaA | 4 | 0.15(0.09, 0.27) | 0.03~1.33 | 0.08(0.05, 0.13) | 0.02~0.74 | −9.945 | **<0.001** |
| BbF | 5 | 0.59(0.38, 0.91) | 0.01~3.88 | 0.36(0.21, 0.60) | 0.01~2.88 | −8.367 | **<0.001** |
| BkF | 5 | 0.25(0.14, 0.42) | 0.02~1.99 | 0.13(0.08, 0.21) | 0.02~1.27 | −10.145 | **<0.001** |
| BaP | 5 | 0.45(0.27, 0.78) | 0.01~4.50 | 0.18(0.12, 0.32) | 0.01~3.06 | −11.645 | **<0.001** |
| DahA | 5 | 0.06(0.03, 0.17) | 0.01~3.16 | 0.05(0.02, 0.17) | 0.01~4.31 | −2.589 | **0.010** |
| BghiP | 6 | 0.94(0.50, 1.59) | 0.05~9.07 | 0.43(0.21, 1.18) | 0.05~9.57 | −7.219 | **<0.001** |
| IcdP | 6 | 0.53(0.28, 0.87) | 0.04~5.01 | 0.21(0.11, 0.48) | 0.03~6.02 | −8.590 | **<0.001** |
| ΣPAHs | — | 5.03(3.07, 7.67) | 1.01~29.67 | 3.20 (2.05, 5.59) | 0.82~19.29 | −6.942 | **<0.001** |

**表 3 福州市两区不同季节大气 $PM_{2.5}$ 中 ΣPAHs 浓度**

Table 3 The concentrations of ΣPAHs in ambient $PM_{2.5}$ in the two districts of Fuzhou in different seasons

单位: $ng\cdot m^{-3}$

| 季节 | 仓山区 | | 台江区 | | $Z$ | $P$ |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | $n$ | $M(P_{25}, P_{75})$ | $n$ | $M(P_{25}, P_{75})$ | | |
| 春 | 84 | 5.28(3.42, 7.75) | 84 | 3.74(2.44, 6.33) | −3.099 | **0.002** |
| 夏 | 84 | 3.84(2.59, 5.61) | 84 | 2.52(1.66, 4.31) | −3.710 | **<0.001** |
| 秋 | 84 | 4.75(2.83, 7.41) | 84 | 2.79(1.74, 4.34) | −4.689 | **<0.001** |
| 冬 | 84 | 7.13(4.77, 11.25) | 84 | 5.42(2.72, 7.98) | −3.358 | **<0.001** |
| $H$ | | 43.876 | | 40.141 | | |
| $P$ | | **<0.001** | | **<0.001** | | |

**表 4 福州市两区 PAHs 特征产物比值 [$M(P_{25}, P_{75})$]**

Table 4 The diagnostic ratios of PAHs in the two districts of Fuzhou [$M(P_{25}, P_{75})$]

| 采样点 | FLT/(FLT+PYR) | IcdP/(IcdP+BghiP) | BaA(BaA+CHR) | BaP/BghiP |
|---|---|---|---|---|
| 仓山区 | 0.41(0.35, 0.49) | 0.37(0.31, 0.40) | 0.34(0.30, 0.38) | 0.55(0.42, 0.68) |
| 台江区 | 0.43(0.35, 0.55) | 0.36(0.23, 0.41) | 0.33(0.28, 0.38) | 0.50(0.22, 0.71) |

2.3.2 PMF 分析法结果　在仓山区采样点，4 种因子来源及其比例分别为：因子 1（37.9%）、因子 2（13.2%）、因子 3（24.0%）和因子 4（24.9%）。FLT 对因子 1 的载荷贡献最大，其次是 PHE、PYR；因子 2 中 FLU 的载荷贡献最高，其次为 ACY 和 ACE；因子 3 的主要载荷贡献污染物为 DahA；因子 4 中 BghiP、IcdP 和 BaP 的载荷贡献较高，其次 BbF 和 BkF。见图 1A。

在台江区采样点，4 种因子来源比例分别为：因子 1（23.6%）、因子 2（19.3%）、因子 3（22.0%）和因子 4（35.1%）。因子 1 中 DahA 的贡献载荷最高；因子 2 中主要为 BghiP；因子 3 主要包括 FLT、PHE、PYR；因子 4 中，贡献载荷最高的污染物为 IcdP、BaP、BbF、BkF、CHR、BaA。见图 1B。

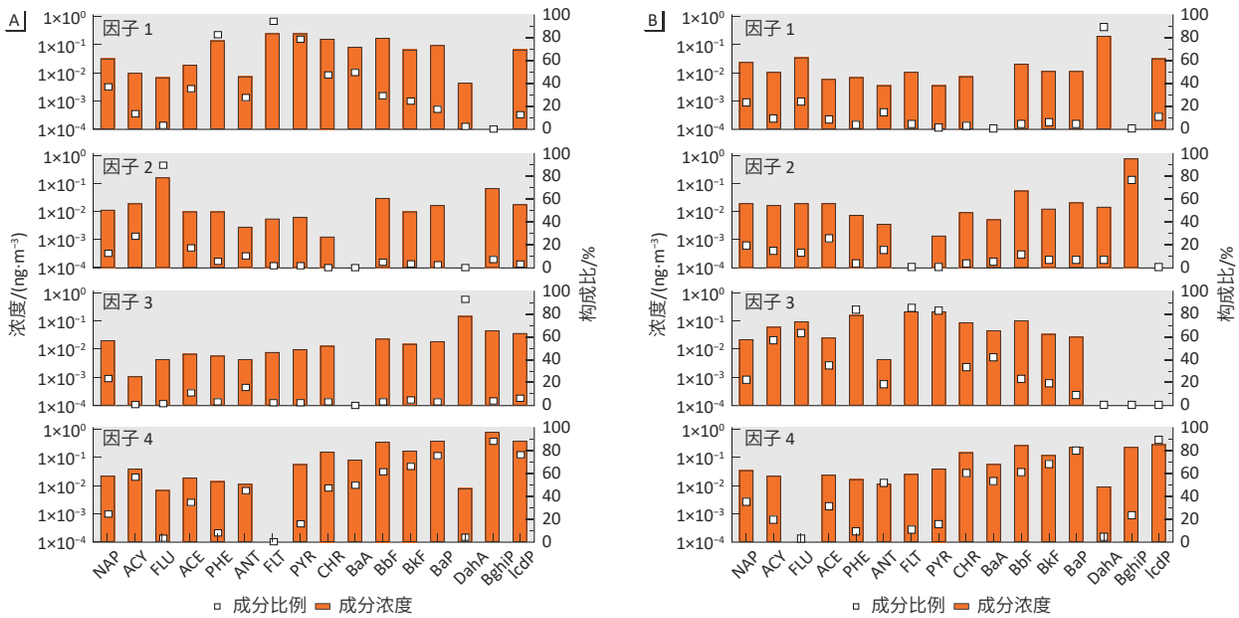


**图 1　福州市仓山区（A）和台江区（B）两区 PAHs 的 PMF 分析成分谱**

Figure 1　The contributions of different factors of PAHs in Cangshan (A) and Taijiang (B) districts of Fuzhou by PMF

## 2.4　PAHs 健康风险

经计算，福州市仓山区和台江区 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 的总等效毒性分别为 1.87 ng·m$^{-3}$ 和 1.61 ng·m$^{-3}$。不同年龄阶段人群经吸入途径暴露 PAHs 的超额致癌风险见表 5；两区人群的终生超额致癌风险分别为 3.83×10$^{-6}$ 和 3.30×10$^{-6}$。

**表 5　福州市人群不同年龄阶段吸入途径 PAHs 超额致癌风险**

Table 5　The excess carcinogenic risks of PAHs to different populations through inhalation in Fuzhou

| 采样点 | 年龄段 | 超额致癌风险(×10$^{-6}$) |
|---|---|---|
| 仓山区 | 儿童(0~2岁) | 0.67 |
| | 儿童(2~16岁) | 1.31 |
| | 成人(16~70岁) | 1.85 |
| 台江区 | 儿童(0~2岁) | 0.58 |
| | 儿童(2~16岁) | 1.13 |
| | 成人(16~70岁) | 1.59 |

## 3　讨论

本次研究结果显示，2017—2020 年福州市仓山和台江两城区 $PM_{2.5}$ 的 $M(P_{25}, P_{75})$ 浓度分别为 35.0（25.0，47.5）μg·m$^{-3}$ 和 34.0（25.5，46.0）μg·m$^{-3}$，超标率分别为 2.68%和 4.17%，低于同时期国内北京（77.1 μg·m$^{-3}$）、郑州（93.0 μg·m$^{-3}$）、广州（38.36 μg·m$^{-3}$）的报道结果[8–10]，在国内处于污染程度较轻水平。

福州市两城区大气 $PM_{2.5}$ 中 ΣPAHs 浓度变化表现为冬季明显高于其他季节，夏季最低，此结果与国内其他地区研究结果一致[9–10]，原因可能是多方面的。其一，PAHs 在不同的气温条件下，状态在气态和颗粒态间切换，尤其是 2~3 环的 PAHs 在气温较高条件下主要以气态形式存在，在温度较低条件下更多以颗粒态形式存在[24]，导致冬、春季温度较低情况下 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 浓度升高；其二，福州市地理结构为三面环山的盆地结构，冬季气温低，气压高，出现逆温条件不利于污染物扩散，而夏季气温高，不存在逆温情况，且雨量大，PAHs 可以得到更有效的扩散和沉降[25]。

采用特征产物比值法对两区大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 来源进行分析，结果显示福州市 PAHs 来源较为复杂，既存在机动车汽油、柴油燃烧排放的尾气，也存在燃煤等排放来源。仓山区不同季节 $PM_{2.5}$ 中 ΣPAHs 中位

浓度均高于台江区，其中以 4~6 环 PAHs 的差别更为明显，提示仓山区 PAHs 的污染较之台江区更为严重。台江区作为商业住宅区，人口集中，交通拥挤，机动车尾气排放是 PAHs 重要污染来源之一。仓山区内的金山工业区内集中了一批电子信息、化工、机械制造等支柱企业，工业燃煤排放可能是仓山区 PAHs 污染较台江区严重的原因之一；同时仓山区四面临江，南北分别是乌龙江和闽江，两江是福州港口与内陆城市重要的水上运输通道，船舶燃油排放可能也是该区域污染的来源。

对仓山区 PAHs 进行 PMF 来源解析，结果显示 FLT 对因子 1 的负载贡献最大，其次是 PHE 和 PYR，FLT、PHE 和 PYR 是扬尘来源的主要成分[26]，提示因子 1 主要为扬尘来源；因子 2 中 FLU 的负载贡献最高，其次为 ACY 和 ACE，FLU、ACY 和 ACE 是石油产品泄漏和挥发的标志[27]，推断因子 2 可能与石油产品运输、储存，加油站加油过程中的挥发和泄漏有关；因子 3 的主要负载贡献污染物为 DahA，有研究表明 DahA 是钢铁工业排放的典型标志[28]，提示因子 3 可能为工业排放。因子 4 中 BghiP、IcdP 和 BaP 的负载贡献较高，其次为 BbF 和 BkF，BghiP 和 IcdP 是机动车源的特征排放物，推断因子 4 为机动车排放源[29]。在台江区采样点，因子 1 中 DahA 的贡献负载最高，提示为工业排放；因子 2 中主要为 BghiP。Gao 等[30]在广州的研究显示生物质燃烧比汽车尾气更可能是 BghiP 的来源，提示因子 2 可能来源于生物质燃烧；因子 3 主要包括 FLT、PHE、PYR，推断为扬尘来源；因子 4 中，贡献载荷依次为 IcdP、BaP、BbF、BkF、CHR、BaA 等，IcdP 是机动车车来源追踪的标志物，所以可以推断因子 4 为汽油车排放来源[27]。对比两个采样点，仓山区扬尘、机动车排放、工业排放、石油产品泄漏或挥发的比例分别为 37.9%、24.9%、24.0%和 13.2%；台江区机动车排放、工业排放、扬尘比例和生物质燃烧分别为 35.1%、23.6%、22.0%和 19.3%。两个区扬尘污染来源比例较高可能与近年福州市道路、地铁、新区建设等大规模基建有关。

根据国家卫健委发布的 WS/T 777—2021《化学物质环境健康风险评估技术指南》，当 CR > $1\times10^{-4}$ 时表明致癌风险很高，介于 $1\times10^{-6}$~$1\times10^{-4}$ 表明具有潜在的致癌风险，ECR < $1\times10^{-6}$ 是一个可接受的风险水平。福州市仓山区和台江区大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 的致癌风险分别为 $3.83\times10^{-6}$ 和 $3.30\times10^{-6}$，均大于 $1\times10^{-6}$，说明存在潜在的致癌风险。

本次研究历经 4 年，每个月检测 $PM_{2.5}$ 及其 PAHs 成分数据，可以较好地反映福州市大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 污染真实水平。但本次研究也存在一定的局限性，一是由于条件所限，仅在两个区域各仅设置一个采样点，可能造成分析成果与实际情况存在一定偏差，在后期的研究中本团队将扩大样本量；二是 PAHs 是以气态和颗粒态形式存在于大气中，有必要进一步收集气态 PAHs 数据；三是 PAHs 不仅存在于大气中，在土壤、水等环境中也广泛存在，有必要收集更广泛的环境中 PAHs 的含量，更全面地评估 PAHs 对人群健康风险。

综上所述，福州市大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 污染来源复杂，包括扬尘、机动车排放、工业排风等，两区的污染来源也有所差别，PAHs 对人群健康有一定的潜在致癌风险。因此需要进一步加强福州市大气 $PM_{2.5}$ 污染的治理，持续优化产业、能源、交通，压减落后产能，进一步发展清洁能源，推动新能源公交车、私家车进一步发展；推进工业治污减排，促进钢铁、制造工业实施低排放改造，加强石化、化工产业的排放治理；强化船舶污染排放监管，规范船舶燃油排放。

## 参考文献


[1] YANG L, WANG W C, LUNG S C C, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons are associated with increased risk of chronic obstructive pulmonary disease during haze events in China[J]. Sci Total Environ, 2017, 574: 1649-1658.

[2] ZHANG S, OU K, HUANG J, et al. In utero exposure to mixed PAHs causes heart mass reduction in adult male mice[J]. Ecotoxicol Environ Saf, 2021, 225: 112804.

[3] 曹晓敏, 李金玉, 刘成娟, 等. 母亲孕期多环芳烃暴露对其子女神经行为发育的影响[J]. 环境与职业医学, 2020, 37(6): 539-545.
CAO X M, LI J Y, LIU C J, et al. Effect of prenatal maternal exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons on children's neurobehavioral development [J]. J Environ Occup Med, 2020, 37(6): 539-545.

[4] 张婷, 周小林, 孟倩倩, 等. 多环芳烃暴露与儿童生长和免疫功能的关系: 基于中国北部某焦化污染区的研究[J]. 环境与职业医学, 2020, 37(6): 586-593.
ZHANG T, ZHOU X L, MENG Q Q, et al. Associations of polycyclic aromatic hydrocarbons exposure with growth and immune function of children: a study in a coking contaminated area in northern China[J]. J Environ Occup Med, 2020, 37(6): 586-593.

[5] WISE S A, SANDER L C, SCHANTZ M M. Analytical methods for determination of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs)-a historical perspective on the 16 U. S. EPA priority pollutant PAHs[J]. Polycyclic Aromat Compd, 2015, 35(2/3/4): 187-247.

[6] NIYONSABA E, MANHEIM J M, YERABOLU R, et al. Recent advances in petroleum analysis by mass spectrometry[J]. Anal Chem, 2019, 91(1): 156-177.

[7] REN Y, ZHOU B, TAO J, et al. Composition and size distribution of airborne particulate PAHs and oxygenated PAHs in two Chinese megacities[J]. At-

mos Res, 2017, 183: 322-330.

[8] 李欢, 唐贵谦, 张军科, 等. 2017~2018年北京大气$PM_{2.5}$中水溶性无机离子特征[J]. 环境科学, 2020, 41(10): 4364-4373.
LI H, TANG G Q, ZHANG J K, et al. Characteristics of water-soluble Inorganic Ions in $PM_{2.5}$ in Beijing during 2017-2018[J]. Environ Sci, 2020, 41(10): 4364-4373.

[9] 董喆, 姜楠, 王佳, 等. 郑州市大气$PM_{2.5}$中多环芳烃的污染特征及健康风险评价[J]. 郑州大学学报(理学版), 2020, 52(2): 108-113.
DONG Z, JIANG N, WANG J, et al. Pollution characterization and health risk assessment of $PM_{2.5}$-bound PAHs in ambient air in Zhengzhou[J]. J Zhengzhou Univ (Nat Sci Ed), 2020, 52(2): 108-113.

[10] 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 S L, LI W X, 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.

[11] 林在生, 林少凯, 王恺, 等. 低浓度$PM_{2.5}$对老年人群死亡的影响: 基于2015—2018年福州市数据的时间序列研究[J]. 环境与职业医学, 2020, 37(2): 157-161.
LIN Z S, LIN S K, WANG K et al. Time-series study on effects of low-concentration $PM_{2.5}$ on mortality in elderly people in Fuzhou from 2015 to 2018[J]. J Environ Occup Med, 2020, 37(2): 157-161.

[12] 李宽, 周家斌, 袁畅, 等. 武汉市大气$PM_{2.5}$中多环芳烃的分布特征及来源[J]. 环境科学研究, 2018, 31(4): 648-656.
LI K, ZHOU J B, YUAN C, et al. Characteristics and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in atmospheric $PM_{2.5}$ of Wuhan City, China[J]. Res Environ Sci, 2018, 31(4): 648-656.

[13] 李盛, 王金玉, 李普, 等. 兰州市某工业区大气$PM_{2.5}$中多环芳烃污染特征及健康风险评估[J]. 环境与职业医学, 2021, 38(2): 137-141.
LI S, WANG J Y, LI P, et al. Pollution characterization and health risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in $PM_{2.5}$ in an industrial area of Lanzhou[J]. J Environ Occup Med, 2021, 38(2): 137-141.

[14] 赵岩, 冯利红, 姜长城, 等. 天津市市郊社区不同采暖期昼夜$PM_{2.5}$成分及来源差异[J]. 中华疾病控制杂志, 2019, 23(9): 1121-1125,1131.
ZHAO Y, FENG L H, JIANG C C, et al. Composition and source apportionment differences of daytime and nighttime samples of $PM_{2.5}$ in the community of suburb in Tianjin during different heating periods[J]. Chin J Dis Control Prev, 2019, 23(9): 1121-1125,1131.

[15] 林侃. 超高效液相色谱法测定大气细颗粒物中16种多环芳烃[J]. 中国卫生检验杂志, 2017, 27(17): 2465-2469.
LIN K. Determination of 16 polycyclic aromatic hydrocarbons in atmospheric fine particulate matter by ultra performance liquid chromatography[J]. Chin J Health Lab Tec, 2017, 27(17): 2465-2469.

[16] CHEN Y, LI X, ZHU T, et al. $PM_{2.5}$-bound PAHs in three indoor and one outdoor air in Beijing: concentration, source and health risk assessment[J]. Sci Total Environ, 2017, 586: 255-264.

[17] AKYÜZ M, CABUK H. Gas-eparticle partitioning and seasonal variation of polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmosphere of Zonguldak, Turkey[J]. Sci Total Environ, 2010, 408(22): 5550-5558.

[18] KATSOYIANNIS A, TERZI E, CAI Q Y. On the use of PAH molecular diagnostic ratios in sewage sludge for the understanding of the PAH sources. Is this use appropriate?[J]. Chemosphere, 2007, 69(8): 1337-1339.

[19] MOLNÁR P, JOHANNESSON S, QUASS U. Source apportionment of $PM_{2.5}$ using positive matrix factorization (PMF) and PMF with factor selection[J]. Aerosol Air Qual Res, 2014, 14(3): 725-733.

[20] NORRIS G, DUVALL R, BROWN S, et al. EPA positive matrix factorization (PMF) 5.0 fundamentals and user guide[R]. Washington: U. S. Environmental Protection Agency, 2014.

[21] NISBET I C T, LAGOY P K. Toxic equivalency factors (TEFs) for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs)[J]. Regul Toxicol Pharmacol, 1992, 16(3): 290-300.

[22] Integrated Risk Information System, National Center for Environmental Assessment Office of Research and Development, U. S. Environmental Protection Agency. Toxicological review of Benzo[a]pyrene: executive summary: EPA/635/R-17/003Fc[R]. Washington: Integrated Risk Information System, National Center for Environmental Assessment Office of Research and Development, U. S. Environmental Protection Agency, 2017.

[23] U. S. EPA. Supplemental guidance for assessing susceptibility from early-life exposure to carcinogens: EPA/630/R-03/003F[R]. Washington: U. S. Environmental Protection Agency, 2005.

[24] 成海容, 张干, 刘向, 等. 青海瓦里关大气中多环芳烃的研究[J]. 中国环境科学, 2006, 26(6): 646-649.
CHENG H R, ZHANG G, LIU X, et al. Studies on polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmosphere of Waliguan, Qinghai[J]. China Environ Sci, 2006, 26(6): 646-649.

[25] 陈彬彬, 林长城, 杨凯, 等. 福州市大气污染时空变化及其与气象条件关系[J]. 环境科学与技术, 2009, 32(6C): 125-128,132.
CHEN B B, LIN C C, YANG K, et al. Spatial-temporal Characteristics of Air Pollution and the relationship with meteorological conditions in Fuzhou City[J]. Environ Sci Technol, 2009, 32(6C): 125-128,132.

[26] HASSANIEN M A, ABDEL-LATIF N M. Polycyclic aromatic hydrocarbons in road dust over Greater Cairo, Egypt[J]. J Hazard Mater, 2008, 151(1): 247-254.

[27] TAGHVAEE S, SOWLAT M H, HASSANVAND M S, et al. Source-specific lung cancer risk assessment of ambient $PM_{2.5}$-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in central Tehran[J]. Environ Int, 2018, 120: 321-332.

[28] ZENG H, ZHANG L, SUN F, et al. Inhalation bioaccessibility, health risk assessment, and source appointment of ambient $PM_{2.5}$-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Caofeidian, China[J]. Environ Sci Pollut Res Int, 2021, 28(34): 47574-47587.

[29] CHAO S, LIU J, CHEN Y, CAO H, et al. Implications of seasonal control of $PM_{2.5}$-bound PAHs: an integrated approach for source apportionment, source region identification and health risk assessment[J]. Environ Pollut, 2019, 247: 685-695.

[30] GAO B, GUO H, WANG X M, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons in $PM_{2.5}$ in Guangzhou, southern China: spatiotemporal patterns and emission sources[J]. J Hazard Mater, 2012, 239-240: 78-87.

(**英文编辑**: 汪源; **责任编辑**: 张晨晨, 丁瑾瑜)