

2007 年春节期间北京大气颗粒物中多环芳烃的污染特征

李杏茹¹, 郭雪清^{1,2}, 刘欣然¹, 刘晨书², 张姗姗², 王跃思^{1*}

(1. 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029; 2. 首都师范大学化学系, 北京 100037)

摘要:利用大流量颗粒物采样器分昼夜采集了 2007 年春节前后大气气溶胶中 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 样品, 并采用气相色谱-质谱技术对 $PM_{2.5}$ 样品中的多环芳烃进行了检测. 春节期间大气颗粒物中 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 夜间平均质量浓度为 $232 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $132 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 分别高于白天的 PM_{10} ($194 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 和 $PM_{2.5}$ ($107 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$); 除夕后颗粒物日平均质量浓度为 $252.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (PM_{10}) 和 $123.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ($PM_{2.5}$), 分别高于除夕前的 $166.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (PM_{10}) 和 $106.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ($PM_{2.5}$); 同时夜间 $PM_{2.5}$ 中多 17 种多环芳烃 (PAHs) 的总浓度都高于相应白天的总浓度, 且除夕前多环芳烃日均总浓度为 $95.9 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 高于除夕后的 $58.9 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$. 结果表明, 除了受一定的气象条件的影响外, 大量燃放烟花爆竹会对大气颗粒物浓度有影响, 但对大气中的多环芳烃影响不大, 而春节期间工业及交通污染排放的减少削减了排放到大气中的 PAHs. 根据荧蒽/芘等比值指标判别北京 PAHs 主要以燃煤为主、交通为次的混合局地源污染.

关键词: 春节; 大气颗粒物; 多环芳烃; 污染特征

中图分类号: X131.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2008)08-2099-06

Pollution Characteristic of PAHs in Atmospheric Particles During the Spring Festival of 2007 in Beijing

LI Xing-ru¹, GUO Xue-qing^{1,2}, LIU Xin-ran¹, LIU Chen-shu², ZHANG Shan-shan², WANG Yue-si¹

(1. LAPC, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 2. Department of Chemistry, Capital Normal University, Beijing 100037, China)

Abstract: Research on PM_{10} and $PM_{2.5}$ aerosols had been carried out with sampler of large flow capacity during the Spring Festival of 2007 in Beijing, and the concentration of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in $PM_{2.5}$ samples were determined via GC-MS. The average concentrations of aerosols are higher in the night (PM_{10} : $232 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; $PM_{2.5}$: $132 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) than those in the day time (PM_{10} : $194 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; $PM_{2.5}$: $107 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). The average concentrations are higher after the new year's eve (PM_{10} : $252.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $PM_{2.5}$: $123.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) compared with those before (PM_{10} : $166.7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $PM_{2.5}$: $106.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). And we also find that the concentration of PAHs in $PM_{2.5}$ aerosols is generally higher in the night ($106.4 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$) than that in the day time ($44.2 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$), and the total concentration of 17 PAHs before new year's eve ($95.9 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$) is higher than that after ($58.9 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$). Those results may mean that the aerosols are influenced by burning of fireworks in addition to be subjected to the meteorological condition. At the same time, there is little influence of playing fireworks on the PAHs concentration, and the changes of the concentration of PAHs can be explained by the decrease of industrial and vehicular transportation pollutant during the Festival period. It can be judged by the characteristic ratio such as Furanthene/pyrene that the primary resource of PAHs in particles is the combustion of coal, and the combustion of gasoline is in the next place.

Key words: the Spring Festival; atmospheric particles; PAHs; pollution characteristic

进入 21 世纪以来, 大气中的可吸入颗粒物及其中的有毒有机物的污染及危害越来越严重^[1~5], 已受到了全世界普遍关注. 可吸入颗粒物 (PM_{10}) 指 TSP 中能用口鼻吸入的部分, 其中的 $PM_{2.5}$ 指可吸入颗粒物中能进入肺泡、甚至血液循环的部分^[6~9], 一般也称为细粒子或细颗粒物. 目前人们最为关注的可吸入颗粒物中的有毒物质为多环芳烃 (polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)^[10~13].

春节是中国人的传统节日. 春节期间大部分工地停工, 工厂放假, 机动车出行减少, 污染物排放总

量显著减少, 并且北京在 2006 解除了持续 12a 的五环内禁止燃放烟花爆竹的规定, 这都会对大气污染物有一定的影响. 但是国内学者对这段休息日的可吸入颗粒物的研究较少^[14]. 因此本研究对北京大气可吸入颗粒物进行了昼夜采样, 讨论这段时间可吸入颗粒物的变化特征, 分析了部分 $PM_{2.5}$ 样品中

收稿日期: 2007-08-13; 修订日期: 2007-10-30

基金项目: 国家重点基础研究发展规划 (973) 项目 (2007CB407303); LAPC 开放课题基金项目

作者简介: 李杏茹 (1979 ~), 女, 博士研究生, 主要研究方向为气溶胶有机化学, E-mail: lxrc@126.com

* 通讯联系人, E-mail: wys@mail.iap.ac.cn

PAHs 的浓度变化特征, 以期为春节期间大气污染及燃放烟花爆竹引起的污染状况的研究提供依据.

1 材料与方法

1.1 实验仪器及试剂

仪器: 大流量颗粒物采样器(Thermal Anderson 美国), 气-质联用仪(Thermo Finnngen TRACE DSQ 美国), HP-5MS 弹性石英毛细柱(30 m × 0.25 mm × 0.25 μm), 氮气吹干仪(Pierce 公司), 旋转蒸发仪(Buchi, 瑞典); 电子天平(Sartorius, 德国), 恒温恒湿箱, 超声清洗仪, 马弗炉等均为国产.

药品及试剂: 二氯甲烷、正己烷、甲醇均为色谱醇(Dikoma, 美国); 无水硫酸钠: 分析纯; 硅胶(80 ~ 100 目)、三氧化二铝(100 ~ 200 目): 使用前抽提 72 h, 并进行活化处理. 六甲基苯(Supelco 公司, 美国), 标准化合物: EPA610 方法优先控制 16 种 PAHs 混合标样(Supelco 公司, 美国), 分别为: 萘(NA), 苊(ACY), 二氢苊(ACE), 芴(FL), 菲(PHEN), 蒽(AN), 荧蒽(FLUR), 芘(PY), 苯并(a)蒽(BaA), (CHRY), 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(dBAn), 苯并(g, h, i) (BPe).

1.2 样品采集及气象条件

采样点为中国科学院大气物理研究所(北京) 325 m 气象铁塔 15 m 观测平台(39°58'27"N, 116°22'20"E), 距北三环路与四环路各 1 km, 东 200 m 为南北走向的京昌高速公路, 北面 50 m 处为东西走向的北土城西路. 采样点处于城市之中, 周围有居民区、加油站、餐馆等, 属于典型的城市环境, 同时观测平台能够提供采样时的气象条件(见表 1), 因此选择在这里采样. 采样时间从 2007-02-08 ~ 2007-03-02, 分昼夜采集, 白天采样时间从 08:00 ~ 19:30, 晚上采样从 20:00 ~ 次日 07:30. 实验选用玻璃纤维滤膜, 采样前将滤膜在马弗炉中 550℃焙烧 4 h, 以消除可能的有机物, 冷却后放入恒温恒湿箱中平衡 24 h(温度 25℃, 湿度 50%), 用十万分之一的精密电子天平称重. 采样后的滤膜用铝箔封装后带回实验室, 恒温恒湿 24 h(温度 25℃, 湿度 50%), 用十万分之一的精密电子天平称重后放入冰箱中低温冷冻保存至分析.

1.3 样品的前处理和分析

将 1/2 大小的样品滤膜剪成细条状于锥形瓶中, 用适量的二氯甲烷超声抽提 3 次, 每次抽提 20 min, 每次更换溶剂, 合并提取液并过滤, 滤液在旋转蒸发仪上减压浓缩至即将干, 加入少量正己烷继续旋蒸 3 次, 以达到溶剂替换的目的, 最后用氮吹仪将滤液浓缩至约 1 mL. 将浓缩液滴加在硅胶和氧化铝

表 1 2007 年春节期间气象参数
Table 1 Meteorological parameters during the 2007 Spring Festival

日期/月-日	温度/℃		相对湿度/%		风速/m•s ⁻¹		总辐射/MJ•m ⁻²	
	白天	晚上	白天	晚上	白天	晚上	白天	晚上
02-08	5.3	4.4	34.4	28.2	1.5	0.9	0.2	0
02-09	10.1	3.5	20.5	23.8	3.7	1.7	0.3	0
02-10	5.7	3.3	21.8	28.2	1.4	0.7	0.4	0
02-11	8.7	3.7	18.8	29.3	1.4	0.8	0.3	0
02-12	9.9	5.3	24.8	42.8	1.1	1.1	0.2	0
02-13	2.5	-0.4	18.8	23.0	3.9	1.4	0.3	0
02-14	5.3	0.1	13.3	25.5	1.9	1.0	0.4	0
02-15	5.9	1.4	25.0	39.3	1.4	1.1	0.2	0
02-16	6.5	4.0	34.3	37.3	1.2	1.1	0.2	0
02-17	8.5	2.7	18.0	45.6	2.4	1.2	0.4	0
02-18	6.9	2.0	30.3	44.6	1.4	0.9	0.3	0
02-19	9.1	4.1	28.7	41.5	1.4	1.0	0.3	0
02-20	12.2	4.1	27.0	77.1	1.0	1.2	0.3	0
02-21	4.5	6.6	87.8	49.7	0.5	1.5	0.04	0
02-22	10.3	7.2	9.6	28.2	2.2	0.8	0.4	0
02-23	1.7	5.3	18.4	14.9	1.6	2.2	0.3	0
02-24	6.5	2.9	39.8	68.3	0.7	0.5	0.2	0
02-25	5.8	6.2	71.7	72.7	0.7	0.6	0.1	0
02-26	7.7	7.5	72.3	80.2	0.7	0.6	0.04	0
02-27	7.7	4.8	59.1	70.5	0.6	0.4	0.04	0
02-28	9.4	6.5	39.7	52.6	0.8	0.6	0.2	0
03-01	6.5	7.2	62.8	70.5	0.7	0.2	0.1	0
03-02	12.6	6.9	48.3	78.6	0.8	1.1	0.3	0

填充的层析柱中,依次用 70 mL 正己烷、70 mL 正己烷/二氯甲烷(体积比为 1:1)和 40 mL 甲醇洗脱,分别得到正构烷烃、多环芳烃和极性组分.将多环芳烃组分洗脱液旋转蒸发浓缩,加入六甲基苯作为内标,用氮吹仪缓缓吹至约 1 mL,最后定容至 1 mL,利用 GC-MS 进行分析检测. BbF 和 BkF 2 种物质在 GC-MS 的色谱图中部分重叠而分离得不精确,因此将这 2

种物质合并在一起进行分析.

通过 GC-MS 的各项控制参数,使样品的分离和检测达到最佳效果,仪器分析条件见表 2. 目标化合物通过谱图解析、与标准物质比对保留时间及质谱图定性确定;由标准物质浓度-特征离子峰面积的工作曲线定量. 苯并(e)芘用苯并(a)芘的标准曲线定量.

表 2 GC-MS 主要仪器控制参数
Table 2 Operating conditions for GC-MS

GC 参数	设定	MS 参数	设定
载气	高纯氦气(≥99.999%)	电离方式	EI
色谱柱	HP-5MS(J&W) 30 m×0.25 mm×0.5 μm	电子能量	70 eV
进样方式	手动进样	离子源温度	230℃
进样量	1 μL, 无分流	四极杆温度	150℃
进样口温度	280℃	扫描方式	全扫描
溶剂延迟时间	6.0 min	扫描质量范围	50 ~ 550 u
柱流量	1.0 mL/min 恒流模式	扫描频率	2.96 Scans/s
升温程序	50℃恒温 5 min, 以 15 ℃/min 升至 160℃, 保持 5 min. 以 5℃/min 升至 280℃, 恒温 15 min	倍增器电压	1 100 V(自调)
		离子化电流	300 μA

1.4 质量保证与质量控制

本研究参考美国 EPA-610 方法,做了试剂空白、实验室空白和回收率实验,结果表明实验符合空白质量保证和质量控制要求,各种 PAHs 的标准曲线线性良好,除萘的回收率较低外(77%),其余回收率为 88% ~ 110%. 实验所用试剂均为色谱纯,所用棉花、剪刀等均在正己烷中浸泡 48 h 以上.

2 结果与分析

2.1 大气气溶胶 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 在 2007 年春节期间的污染水平

采样期间的 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 的日平均质量浓度都较高,污染相当严重,如图 1 所示. PM₁₀ 样品中 91% 都超过我国 1996 年制定的 100 μg•m⁻³ 可吸入颗粒物二级排放标准, 91% 的 PM_{2.5} 样品超过 2007 年世界卫生组织指导值 50 μg•m⁻³ 二级排放标准. 无论是 PM₁₀ 还是 PM_{2.5}, 晚上的浓度都要高于白天的, 可能与晚上湿度较大, 温度较低, 逆温强度较大有关. 同时还发现, 除夕(2007-02-17)后的气溶胶平均质量浓度要高于除夕前, 除夕后 PM_{2.5} 平均质量浓度为 123.8 μg•m⁻³, PM₁₀ 为 252.3 μg•m⁻³; 除夕前平均质量浓度 PM_{2.5} 为 106.8 μg•m⁻³, PM₁₀ 为 166.7 μg•m⁻³. 由表 1 可以看出, 除夕前平均相对湿度为 27%, 平均风速为 1.5 m/s, 而除夕后平均分别为 51.7% 和 1.0 m/s, 有研究表明, 颗粒物浓度随着相对湿度的升高而增加, 随着风力的增强而降低^[15],

除了气象条件的影响外, 除夕前后颗粒物浓度的变化还与春节期间燃放烟花爆竹有关. 同时有研究表明, 燃放烟花爆竹会导致空气中 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 质量浓度在短时间内迅速上升, 并且 PM₁₀ 的变化更为明显^[16], 结论与本研究相符.

2.2 细粒子中 PAHs 的污染特征

2.2.1 PAHs 的污染水平

本研究对 2007-02-11 ~ 2007-02-23 所采集到的 PM_{2.5} 样品中的 17 种 PAHs 的组成及含量进行了分析, 17 种 PAHs 单体平均浓度见图 2, 总浓度见图 3. 单体白天平均浓度在 0.107 ~ 9.063 ng•m⁻³, 夜间平均浓度为 0.093 ~ 21.531 ng•m⁻³, 夜间平均浓度大于白天浓度. PAHs 的平均总浓度也有夜间大于白天的趋势, 这主要是由于夜间温度较低, 湿度较大, 风速较白天低(见表 1), 导致大气扩散能力较弱, 污染物难以扩散; 并且夜间的低温高湿的气象条件有利于 PAHs 气-粒转化的进行^[17]. 另外还发现, 17 日(除夕)前 PAHs 的平均总浓度(平均为 95.9 ng•m⁻³)要高于除夕后(平均为 58.9 ng•m⁻³), 分析原因可能是春节期间有 1 周的放假时间, 大批人员离开北京, 大部分工地停工, 工厂放假, 机动车出行减少, 这就相当于减少了排放源^[18]. 同时, 本研究未发现直接的证据可以证明烟花爆竹的燃放会加重 PAHs 的污染.

荧蒽是浓度最高的单体, 其次是芘和 . 其中 4 环芳烃占 56%, 4 环及以上多环芳烃占总芳烃的

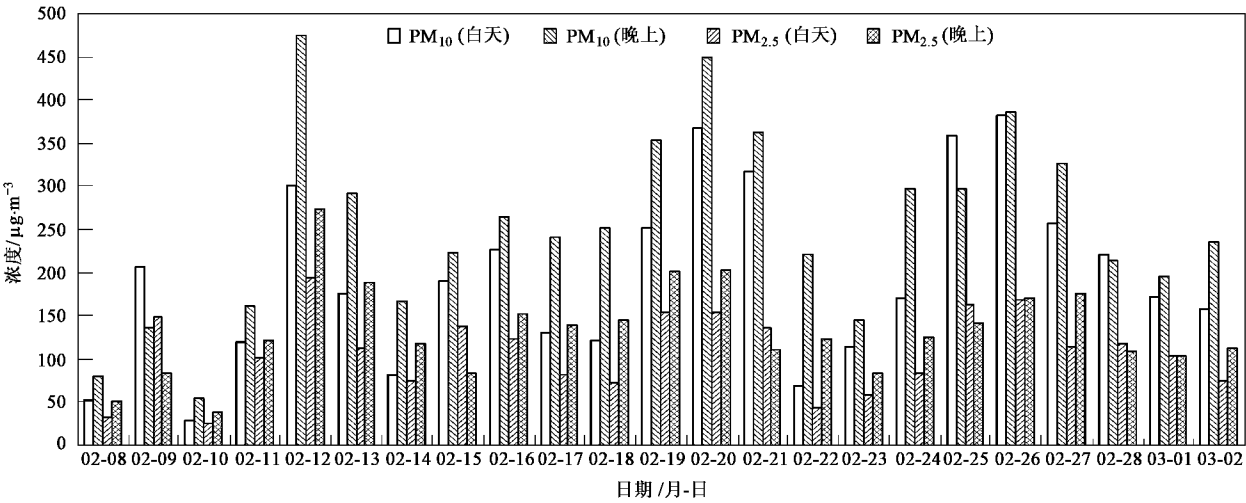


图 1 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 昼夜质量浓度

Fig.1 Diurnal and nocturnal mass concentrations of PM_{10} and $PM_{2.5}$

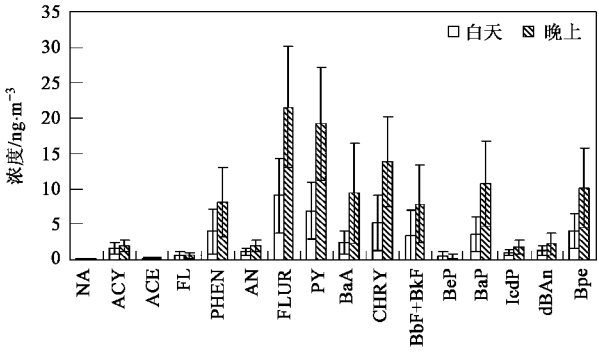


图 2 PAHs 各单体平均浓度

Fig.2 Average concentration of individual PAHs

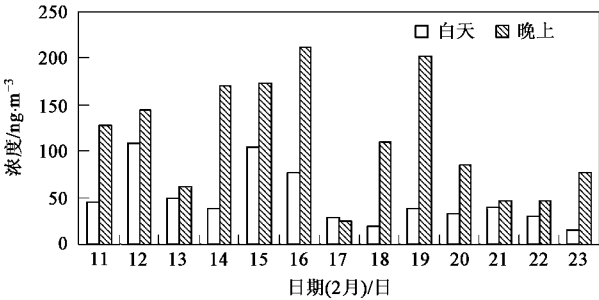


图 3 $PM_{2.5}$ 中 $\sum$ PAHs 的昼夜质量浓度

Fig.3 Diurnal and nocturnal mass concentrations of $\sum$ PAHs in $PM_{2.5}$

5 和 6 环的 PAHs 主要存在于颗粒相中,所以在传输的过程中更容易因沉降和光降解等作用而除去^[22]. 因此长距离迁移的颗粒物中以 4 环的 PAHs 所占的比例会更大,有人提出用 $PAH(4)/PAH(5,6)$ 的值来大致地估算 PAHs 的来源^[23],该值小说明受本地源的污染,反之则说明受外来污染源的影响较大.图 5 为本研究的 $PAH(4)/PAH(5,6)$ 值,该比值都小于 3,远小于 Hou 等^[23]在沙尘暴时期得到的 5.6,表明在采样的这段时间北京大气中的 PAHs 以本地源为主.

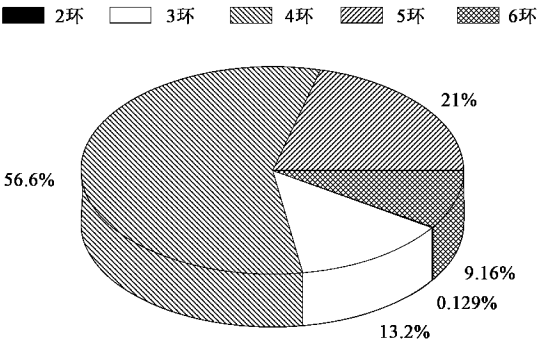


图 4 不同环数的 PAHs 的比例

Fig.4 Mass distribution of 2-6 rings PAHs

76.7%(见图 4). PAHs 总量中 4 环以上的高环数芳烃占优势表明多环芳烃主要来自高温燃烧^[19]. 另外,环境中的 PAHs 从源排放后,在传输的过程中会因降解、干湿沉降等从大气中除去^[20,21]. 不同环数的 PAHs 的环境行为却是不同的,4 环的 PAHs 是一类半挥发性的有机物,同时存在于气相和颗粒相中,而

2.2.2 PAHs 来源的定性解析

环境中的多环芳烃一般来自有机化合物的高温反应、石油等的低温蒸发以及森林大火和尘埃,其中有机物高温反应是最主要来源.城市大气气溶胶中 PAHs 的来源总体上与机动车保有量、工业过程和燃煤取暖关系密切.但一些 PAHs 之间的相对含量往

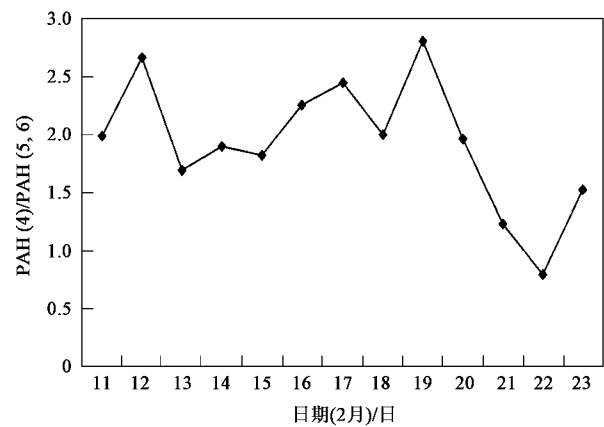


图 5 PAH(4)/PAH(5,6)的值
Fig.5 Ratios of PAH(4)/PAH(5,6)

往是较稳定的,因此可以根据 PAHs 的特征比值来定性判断颗粒物中 PAHs 的来源^[24].本研究采用表 3 中的特征比值来定性判断 PAHs 的来源.

$Ant/(Ant + Phe) < 0.1$ 认为是石油源; > 0.1 认为是燃烧源^[25].此次研究中, $Ant/(Ant + Phe)$ 比值为 $0.14 \sim 0.43$,应该判断是燃烧源.Sawicki^[26]提出可用 BaP/BPe 比值来判断污染类型,比值在 $0.3 \sim 0.4$ 污染,而比值为 $0.7 \sim 6.6$ 时为燃煤污染,二者之间则表明是燃煤和交通的混合污染.本研究中该比值为 $0.43 \sim 4.02$,表明北京冬季受到燃煤和交通的混合污染,但是大部分比值接近 0.6 ,说明燃煤污染占主要地位. $Flua/(Flua + Pyr)$ 接近 0.4 代表石油; $0.6 \sim 0.7$ 主要指机动车尾气; > 0.7 为草、木材等的燃

表 3 用于源识别的 PAHs 的特征比值

Table 3 Value of molecular diagnostic ratios of PAHs for source identification

日期/月-日	Ant/(Ant + Phe)	Bap/Bpe	Flua/(Flua + Pyr)	IcdP/BghiP	BeP/(BeP + BaP)	
					白天	晚上
02-11	0.21	0.79	0.56	0.22	0.31	0.002
02-12	0.21	0.43	0.54	0.25	0.015	0.006
02-13	0.29	0.70	0.51	1.20	0.005	0.003
02-14	0.25	4.02	0.55	0.67	0.493	0.001
02-15	0.14	1.45	0.53	0.09	0.101	0.003
02-16	0.16	0.67	0.54	0.11	0.003	0.002
02-17	0.26	0.55	0.56	0.69	0.007	0.002
02-18	0.28	0.56	0.58	0.39	0.005	0.002
02-19	0.17	0.71	0.55	0.40	0.010	0.001
02-20	0.20	0.78	0.55	0.29	0.266	0.065
02-21	0.30	0.48	0.57	0.16	0.002	0
02-22	0.43	1.49	0.67	0.39	0.236	0.176
02-23	0.36	0.78	0.59	0.56	0.006	0.005

烧^[27].本研究中该比值平均为 0.56 ,也说明了机动车尾气向北京大气中输入的 PAHs 量较大. $cdP/BghiP$ 也可以用来判断交通来源的类型,该值接近于 0.22 、 0.50 和 1.30 ,分别代表典型的汽油、柴油和煤油型的燃烧^[28].本研究中该比值为 $0.09 \sim 1.20$,变化较大,但总的来说还是以柴油和汽油为主. $BeP/(BeP + BaP)$ 的比值常用来表征光降解强弱^[24],该比值越大表明光降解越强.本研究中该比值都较小,说明采样期内北京光降解较弱.夜间的该值几乎为 0 ,说明晚上在没有阳光照射的情况下几乎不会发生光降解.

3 结论

(1)2007 年春节期间北京大气颗粒物污染严重,夜间平均浓度高于白天, PM_{10} 质量浓度超过国家标准, $PM_{2.5}$ 超过世界卫生组织指导值的 2 倍.烟花

爆竹燃放使大气可吸入颗粒物质量浓度增加.

(2)细粒子中 PAHs 含量较高,其中荧蒽浓度最高,其次是芘和 .春节期间因大批人员离开北京、工地停工、路面上机动车出行减少等原因会降低大气中多环芳烃的浓度.

(3)根据荧蒽/芘等比值指标判别北京 PAHs 主要以燃煤为主、交通为次的混合局地源污染.

致谢:感谢刘广仁高工和胡波博士为本研究提供的气象数据及相关分析指导.

参考文献:

[1] Kaupp H, McLachlan M S. Distribution of polychlorinated dibenzo-P-dioxins and dibenzofurans (PCDD/Fs) and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) within the full size range of atmospheric particles[J]. Atmospheric Environment, 2000, 34: 73-83.

[2] Menichini E, Monfredini F. Relationships between concentrations of particle-bound carcinogenic PAHs and PM_{10} particulate matter in urban air[J]. Fresenius Environmental Bulletin 2001, 10(6): 533-538.

- [3] Sharma A K, Jensen K A, Rank J, *et al.* Genotoxicity, inflammation and physico-chemical properties of fine particle samples from an incineration energy plant and urban air[J]. *Mutation Research/Genetic Toxicology and Environmental Mutagenesis*, 2007, **633**: 95-111.
- [4] 孙成均, 田边漂, 小谷野道子, 等. 室内外空气悬浮颗粒物中 8 种多环芳烃化合物粒径分布的研究[J]. 华西医科大学学报, 1994, **25**(4): 442-446.
- [5] 杨复沫, 马永亮, 贺克武. 细微大气颗粒物 PM_{2.5} 及其研究概况[J]. 世界环境, 2000, **4**: 32-34.
- [6] 王存忠, 俞卫平. 影响空气质量的吸入颗粒物[J]. 科技术语研究, 2002, **4**(3): 38-39.
- [7] 邵龙义, 时宗波, 黄勤. 都市大气环境中可吸入颗粒物研究[J]. 环境保护, 2000, **1**: 24-27.
- [8] 郭栋生, 袁小英, 张志强. 太原市大气飘尘中多环芳烃与 DNA 的结合反应[J]. 中国环境科学, 2000, **20**(1): 5-7.
- [9] 赵毓梅, 杨文敏. 大气粗细颗粒物的成分分析及其肺毒性研究[J]. 卫生研究, 1996, **25**: 89-91.
- [10] Boonyatumanond R, Murakami M, Wattayakorn G, *et al.* Sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in street dust in a tropical Asian mega-city, Bangkok, Thailand[J]. *Science of the Total Environment*, 2007, **384**: 420-432.
- [11] Valavanidis A, Fiotakis K, Vlahogianni T, *et al.* Characterization of atmospheric particulates, particle-bound transition metals and polycyclic aromatic hydrocarbons of urban air in the centre of Athens (Greece)[J]. *Chemosphere*, 2006, **65**: 760-768.
- [12] Dall'ora J B, M6nogo J G, Teixeira E C, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbons in atmospheric particles in the metropolitan area of Porto Alegre, Brazil[J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**: 1609-1625.
- [13] Offenberg J H, Baker J E. The influence of aerosol size and organic carbon content on gas/particle partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(7): 1205-1220.
- [14] Wang Y, Zhuang G, Xu C, *et al.* The air pollution caused by the burning of fireworks during the lantern festival in Beijing[J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**: 417-431.
- [15] 车瑞俊, 刘大锰, 袁杨森. 北京市冬季大气颗粒物污染水平和影响因素研究[C]. 广州: 第九届全国气溶胶会议暨第三届海峡两岸气溶胶技术研讨会论文集, 2007. 33-42.
- [16] 徐敬, 丁国安, 颜鹏, 等. 燃放烟花爆竹对北京城区气溶胶细粒子的影响[J]. 安全与环境科学, 2006, **6**: 79-82.
- [17] Vasilakos C, Levi N, Maggos T, *et al.* Gas-particle concentration and characterization of sources of PAHs in the atmosphere of a suburban area in Athens, Greece[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2007, **140**(1-2): 45-51.
- [18] 李令军, 李金香, 辛连忠, 等. 北京市春节期间大气污染分析[J]. 中国环境科学, 2006, **26**(5): 537-541.
- [19] 李军, 张干, 祁士华. 广州大气中多环芳烃分布特征、季节变化及其影响因素[J]. 环境科学, 2004, **25**(3): 7-13.
- [20] Christensen J H. The Danish Eulerian hemispheric model-A three-dimensional air pollution model used for the Arctic[J]. *Atmospheric Environment*, 1997, **31**(24): 4169-4191.
- [21] Halsall C J, Sweetman A J, Barrie L A, *et al.* Modelling the behaviour of PAHs during atmospheric transport from the UK to the Arctic[J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(2): 255-267.
- [22] Murakami M, Nakajima F, Furumai H. Modelling of runoff behaviour of particle-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) from roads and roofs[J]. *Water Research*, 2004, **38**(20): 4475-4483.
- [23] Hou X M, Zhuang G S, Sun Y, *et al.* Characteristics and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons and fatty acids in PM_{2.5} aerosols in dust season in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(18): 3251-3262.
- [24] 汤国才. 气溶胶中多环芳烃的污染源识别方法[J]. 环境科学研究, 1993, **6**: 37-41.
- [25] Budzinski H, Jones I, Bellocq J, *et al.* Evaluation of sediment contamination by polycyclic aromatic hydrocarbons in the Gironde estuary [J]. *Marine Chemistry*, 1997, **8**: 85-97.
- [26] Sawicki E. Analysis for airborne particulate hydrons, their relative proportion affected by different types of pollution [J]. *Nat Cancer Inst Monograph*, 1962, **9**(6): 201-208.
- [27] Kavouras I G, Koutrakis P, Tsapakis M, *et al.* Source apportionment of urban particulate aliphatic and polynuclear aromatic hydrocarbons (PAHs) using multivariate methods [J]. *Environ Sci Technol*, 2001, **35**(11): 2288-2294.
- [28] 牛红云, 王荟, 王格慧, 等. 南京大气气溶胶中多环芳烃源识别及污染评价[J]. 中国环境科学, 2005, **25**(5): 544-548.