

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

长江经济带PM_{2.5}空间异质性和驱动因素的地理探测

王丽丽, 刘笑杰, 李丁, 孙颖琦



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年3月

第43卷 第3期
Vol.43 No.3

目次

2000~2020年天津PM _{2.5} 质量浓度演变及驱动因子分析	蔡子颖,郝国,韩素芹,唐颖潇,杨旭,樊文雁,姚青,邱晓滨(1129)
天津市PM _{2.5} -O ₃ 复合污染特征及来源分析	肖致美,徐虹,高璟,蔡子颖,毕温凯,李鹏,杨宁,邓小文,戴运峰(1140)
基于随机森林模型的武汉市城区大气PM _{2.5} 来源解析	张志豪,陈楠,祝波,陶卉婷,成海容(1151)
华北南部重污染城市周边区域二次气溶胶的化学特征及来源解析	任秀龙,胡伟,吴春苗,胡偲豪,高娜娜,张崇崇,岳亮,王金喜,樊景森,牛红亚(1159)
“大气十条”实施结束川南城市群秋季霾污染过程中水溶性离子特征	吴安南,黄小娟,何仁江,李金建,叶林麟,吴涛,肖智丹,刘子锐,王跃思,张小玲,张军科(1170)
郑州市典型污染过程PM ₁₀ 中重金属浓度、来源及健康风险评估	翟诗婷,王申博,张栋,赵孝因,杨洁茹,刘洋,陈红阳,张瑞芹(1180)
长江经济带PM _{2.5} 空间异质性和驱动因素的地理探测	王丽丽,刘笑杰,李丁,孙颖琦(1190)
长三角地区PM _{2.5} 浓度对土地利用/覆盖转换的空间异质性响应	周丽霞,吴涛,蒋国俊,张建珍,濮励杰,徐飞,解雪峰(1201)
“2+26”城市春节和元宵节期间污染特征、气象影响和预报回顾分析	朱媛媛,王晓斐,汪巍,刀谔,王帅,陈善荣(1212)
基于小波变换的山西省PM _{2.5} 污染特征及影响因素	张可可,胡冬梅,闫雨龙,彭林,段小琳,尹浩,王凯,邓萌杰(1226)
中国地表臭氧浓度估算及健康影响评估	赵楠,卢毅敏(1235)
湖南省臭氧污染基本特征分析及长期趋势变化主控因素识别	刘妍妍,杨雷峰,谢丹平,泽仁央宗,黄志烟,杨俊,赵鹏,韩静磊,贾文超,袁自冰(1246)
山东半岛近地面O ₃ 浓度时空变化及潜在源区解析	李乐,刘旻霞,肖仕锐,王思远,米佳乐(1256)
COVID-19疫情期间雄安新区VOCs的变化特征、臭氧生成潜势及来源解析	刘新军,王淑娟,刘程,范莉茹,付翠轻,齐堃,宿文康(1268)
淄博市城区臭氧超标期间的VOCs污染特征与来源解析	王帅,王秀艳,杨文,王雨燕,白瑾丰,程颖(1277)
淄博市夏季城区与背景点VOCs污染特征比较	秦涛,徐勃,王信梧,李丽明,杨文,王晓丽,耿春梅(1286)
四川省餐饮源挥发性有机物组分特征和清单	钱骏,韩丽,陈军辉,王斌,姜涛,徐晨曦,李英杰,王成辉,王波(1296)
餐饮源气相与颗粒相多环芳烃排放特征	李源速,吴爱华,童梦雪,栾胜基,李骞(1307)
堆肥厂不同工作区空气真菌的多样性与群落结构	于奥园,邢礼军,孙兴滨,仇天雷,王旭明,高敏(1315)
城市扬尘污染主要成因与精准治尘思路	李廷昆,冯银厂,毕晓辉,张裕芬,吴建会(1323)
黄河干流水质评价与时空变化分析	刘彦龙,郑易安(1332)
典型山地城市河流营养元素空间分布特征及影响因素分析:以重庆市清水溪为例	王超,叶秋,贾伯阳,何文战,党超军,黄焱,杜浪(1346)
三峡库区支流的河-湖两态及其对沉积物不同形态磷含量的影响	黄伟,张研,罗晓佼,张磊(1356)
派河及其支流溶解性有机质分子组成特征	詹亚,尹浩,冯景伟,冯艾荣,胡艳云,张刘,郑刘根(1365)
粤港澳大湾区典型潮间带环境多介质中Cd形态空间分布特征及其影响因素	崔新月,莫武秋,廖建波(1375)
骆马湖及主要入湖河流表层水体中抗生素的赋存特征及风险评价	龚润强,赵华璋,高占欣,胡冠九,卜元卿,张圣虎,邱慧(1384)
宁夏第三排水沟中抗生素的污染特征与生态风险评估	李富娟,高礼,李凌云,郑兰香,陶红,杨桂钦(1394)
百年以来北方湖泊沉积物PAHs的变化特征及其对人类活动的响应	龚雄虎,赵中华,丁琪琪,张路,姚书春,薛滨(1404)
长江流域河流和湖库的浮游细菌群落差异	胡愈忻,张静,黄杰,段春建,李天翠,刘威,王英才,胡圣(1414)
河套平原灌溉间隙期乌梁素海水体细菌群落结构特征	史玉娇,李文宝,张博尧,姚国旺,史小红(1424)
不同空间尺度的景观结构对袁河浮游细菌群落的影响	舒旺,王鹏,丁明军,张华,黄高翔,聂明华(1434)
鄱阳湖白鹤保护区微塑料表面微生物群落结构特征	刘淑丽,简敏菲,邹龙,胡启武(1447)
微塑料对变形杆菌生物膜生长发育的影响	陶辉,戚怡婷,于多,杨兰,顾颖,厉彦辉(1455)
乌梁素海低密度微塑料聚合物沉降规律	刘禹,史小红,张生,郝若男,孙标,赵胜男(1463)
老化前后微塑料对富里酸的吸附	宋亚丽,俞娅,郝磊,汪华,朱文芳(1472)
天津市滨海河流N、O ₃ 扩散通量及控制因子	汤梦瑶,胡晓康,王洪伟,王云仓,常素云,王松庆,钟继承(1481)
铁矿石和生物炭添加对潜流人工湿地污水处理效果和温室气体排放及微生物群落的影响	陈鑫童,郝庆菊,熊艳芳,胡剑,江长胜(1492)
降雨径流污染风险等级识别与优化方法	齐小天,张质明,赵鑫,胡文翰,刘迪(1500)
基于贝叶斯网络的给水管网消毒副产物生成因素分析	江杉杉,王臻宇,高权,杨愿愿,高方舟,胡佩,应光国(1512)
聚硫代酰胺修饰活性炭对Au(Ⅲ)的选择性吸附效果与机制	赵文金,张顺,安晓强,兰华春,刘会娟,曲久辉(1521)
F/M对活性污泥微生物生态网络的影响	张冰,孙展翔,文湘华(1529)
城乡融合区土壤元素地球化学特征与源解析:以天府新区青龙片区为例	刘书准,王德伟,施泽明,唐亮,章凤英,廖程,李晓雨,徐文斌(1535)
基于总量与形态的矿区周边土壤重金属生态风险与健康风险评估	王蕊,陈楠,张二喜(1546)
湖南锡矿山周边土壤-农作物系统镉迁移转化特征及污染评价	张龙,宋波,黄凤艳,肖乃川,顿梦杰(1558)
生物炭负载氧化石墨烯对离子型稀土土壤中重金属的阻控效应	杨士,刘祖文,龙培,毕永顺,林苑,左华伟(1567)
溶解性有机质强化棉花修复镉污染土壤	闵涛,罗彤,陈丽丽,茹思博,李俊华(1577)
铁锰氧化物-微生物负载生物炭材料对镉和砷的吸附机制	连斌,吴骥子,赵科理,叶正钱,袁峰(1584)
不同冬小麦品种镉富集转运及离子组特征差异	刘畅,徐应明,黄青青,陶雪莹,王林,孙约兵,赵立杰(1596)
镉胁迫下不同小麦品种对镉的积累特性	任超,任成仲,王浩,朱利文,李竞天,杜倩倩,李萍(1606)
嘉陵江滨岸带不同土地利用类型对土壤细菌群落多样性的影响	刘坤和,薛玉琴,竹兰萍,徐飞,朱志豪,张拓,张富斌(1620)
蚯蚓/钾锰改性生物炭对As污染红壤中细菌多样性和群落结构的影响	苏倩倩,李莲芳,朱昌雄,叶婧,刘雪,耿兵,田云龙,黄晓雅(1630)
DA-6和EDDS施用对龙葵生长、Cd吸收和土壤细菌群落结构的影响	罗洋,孙丽,刘方,任军,郭金梅,闫修民(1641)
地膜覆盖对农田土壤养分和生态酶计量学特征的影响	胡志娥,肖谋良,王双,童瑶瑶,鲁顺保,陈剑平,葛体达(1649)
增温和增雨对黄土丘陵区撂荒地土壤呼吸的影响	王兴,钟泽坤,朱玉帆,王佳懿,杨改河,任成杰,韩新辉(1657)
秸秆还田、地膜覆盖及施氮对冬小麦田N ₂ O和N ₂ 排放的影响	彭毅,李惠通,张少维,阳婷,王筱斐,周春菊,王林权(1668)
基于Meta分析的不同生产条件下秸秆还田对土壤氮挥发的影响	赵政鑫,王晓云,田雅洁,王锐,赵青,蔡焕杰(1678)
施肥对农田土壤抗生素抗性基因影响的整合分析	冉继伟,肖琼,黄敏,蔡岸冬,张文菊(1688)

餐饮源气相与颗粒相多环芳烃排放特征

李源遽, 吴爱华*, 童梦雪, 栾胜基, 李贇

(北京大学深圳研究院, 环境模拟与污染控制市重点实验室, 深圳 518057)

摘要: 多环芳烃(PAHs)是导致大气二次污染严重和臭氧浓度高的原因之一。通过对深圳市3家商业性餐馆和1家食品加工厂的采样调查, 分析对比了我国主要中式餐饮源排放的PAHs在气相和颗粒相之间的差异, 也重点关注了餐饮源烷基PAHs的排放特征。结果表明, 食品加工厂排放的颗粒相和气相 ρ (总PAHs)为 $(1\,381.6 \pm 140.5) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, ρ (PAHs-川菜)为 $(1\,030.2 \pm 116.4) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, ρ (PAHs-粤菜)为 $(908.3 \pm 111.9) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, ρ (PAHs-浙菜)为 $(838.0 \pm 93.5) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 。超过60%的PAHs分布于气相之中, 尤其是4环的蒽及其之前的相对分子质量较低的PAHs, 蒽气相占比最高, 各餐馆均超过了75%; 苯并(b)荧蒹之后的相对分子质量较高的PAHs则主要分布于颗粒相中。餐饮源排放的烷基PAHs总量远低于对应的母体PAHs, 且餐饮源烷基多环芳烃的分布特征与其他污染源存在较大差异。lgK_p和lgP_L线性拟合结果显示3家商业性餐馆的斜率范围为-0.25~-0.28, 食品加工厂的斜率为-0.18, 均未达到平衡。

关键词: 大气环境; 多环芳烃(PAHs); 餐饮源; 气相; 颗粒相; 气粒分配

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)03-1307-08 DOI: 10.13227/j.hjkk.202107169

Emission Characteristics of Gas-and Particle-Phase Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from Cooking

LI Yuan-ju, WU Ai-hua*, TONG Meng-xue, LUAN Sheng-ji, LI Zhi

(Laboratory of Environmental Simulation and Pollution Control, Shenzhen Institute, Peking University, Shenzhen 518057, China)

Abstract: Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) play a key role in the formation of secondary organic aerosol and ozone. This study sampled three commercial Chinese restaurants and a food plant in Shenzhen to analyze the emission characteristics of PAHs, especially the alkyl PAHs in both gas and particle phases. The results showed that the ρ (total PAHs) in the particle and gas phase were $(1\,381.6 \pm 140.5) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, $(1\,030.2 \pm 116.4) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, $(908.3 \pm 111.9) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, and $(838.0 \pm 93.5) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ in the food plant, Sichuan, Cantonese, and Zhejiang restaurants, respectively. More than 60% of the PAHs were distributed in the gas phase, especially the lower molecular weight PAHs (lower than Chrysene). The gas phase proportion of naphthalene was the highest, with over 75% of it distributed in the gas phase. However, the PAHs with a higher molecular weight than that of benzo(b)fluorene were mainly distributed in the particle phase. The total concentration of alkyl PAHs emitted from cooking was much lower than that of the corresponding parent PAHs, and the distribution characteristics of alkyl PAHs were quite different from those of other emission sources. The linear fitting of lgK_p and lgP_L showed that the slopes of the three commercial restaurants ranged from -0.25 to -0.28, whereas for the food plant, the value was -0.18, which indicates that the gas-particle partitioning of PAHs were not in equilibrium.

Key words: atmospheric environment; polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs); cooking emission; gas phase; particle phase; gas-particle partitioning

随着我国加快生态文明体制改革, 不少地区大气环境逐步改善。2020年, 深圳市全年 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 仅为 $19 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 环境空气质量优良率为97%, 全年灰霾天数3 d, 创1988年以来新低^[1]。但是, 在 $\text{PM}_{2.5}$ 、 NO_x 和CO等污染物浓度持续降低的背景下, $\rho(\text{O}_3)$ 却长期维持在 $100 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 以上, 城市大气环境表现出颗粒物浓度不高, 但大气氧化性增强、局部二次污染突出等新的污染特征^[1,2]。多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)作为半挥发性有机物, 进入大气后的气粒分配以及光氧化反应是导致大气二次污染严重、臭氧浓度升高的原因之一^[3~5], 深入研究大气及各类污染源PAHs的气粒分配和排放特征是解决当前深圳等地面临的新型大气污染问题的重要内容。

烹饪过程会排放大量的PAHs, 国内外学者已经对颗粒相PAHs的排放特征进行了深入地研究^[6,7]。有研究发现餐饮源排放的PAHs占 $\text{PM}_{2.5}$ 总

质量的0.01%~0.25%^[6], 是重要的餐饮源示踪指标, 例如中式烹饪会排放较高浓度的蒽和苯并[a]蒽等PAHs, 而西餐等其他菜系则会排放更多的蒽等相对分子质量较高的PAHs^[6,8~11]。但是, 目前国内并未对食品加工厂PAHs排放特征进行研究, 也未对餐饮源气相PAHs与颗粒相PAHs的排放特征进行比较。食品加工厂作为一类重要的餐饮源, 明晰其PAHs排放特征和气粒分配特征能为解析大气二次有机气溶胶(SOA)的生成机制和来源提供重要依据。

此外, 前人针对餐饮源烷基PAHs的研究也不够深入。烷基PAHs不仅是重要的源示踪物, 还对人

收稿日期: 2021-07-20; 修订日期: 2021-08-20

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0211501); 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室开放课题项目(19K02ESPCP)

作者简介: 李源遽(1990~), 男, 博士(后), 主要研究方向为大气颗粒物溯源及成因分析, E-mail: xqshjy@qq.com

* 通信作者, E-mail: IEResp@163.com

体健康有巨大的危害,长期接触会导致突变和畸形^[3,12,13].而且,烷基 PAHs 进入大气后比相应的母体 PAHs 更容易生成酚类化合物,酚类化合物会进一步与 NO_x 反应生成硝化物.酚类和硝化物都是大气 SOA 的主要成分之一,也会破坏正常的 NO_x 与 O₃ 反应循环,从而导致大气 O₃ 浓度的进一步提高^[3,4].因此,餐饮源烷基 PAHs 的排放特征应受到足够重视.

餐饮源对大气有机气溶胶(OA)的贡献已不容忽视,据报道,餐饮源对北京大气 OA 的贡献达到了 24.4%,其贡献度与交通源相当^[14~16].而随着我国对工厂和机动车等大气污染源减排工作地持续推进,餐饮源对大气环境的影响将进一步凸显.由餐饮源等城市生活污染源主导的新型大气复合污染问题,不仅是当前深圳等发达地区也将是未来我国大部分地区将面临的主要大气环境问题.因此,本研究在深圳选择了粤菜、川菜和浙江菜的 3 家商业性餐馆以及 1 家食品加工厂作为对象,对比分析了餐饮源颗粒相和气相 PAHs 特别是烷基 PAHs 的排放特征,以期为解决当前新型大气复合污染问题提供重要理论依据,也为我国大气污染物溯源工作提供新的思路.

1 材料与方法

1.1 样品采集

本研究在深圳市选择了粤菜馆、川菜馆、浙菜馆和油炸食品加工厂这 4 种类型的餐饮源,各类型餐饮源的具体信息见表 1.每个采样点采样 2 d,每

天 2 次,3 家餐馆每日采样时间是 11:00~13:00 和 17:00~19:00 的用餐高峰期,食品加工厂的采样时间则是每日 10:00~12:00 和 14:00~16:00 的工厂作业时间.采样流程和标准严格按照国标 HJ 646-2013 执行.采样期间,使用两台采样速率为 16.7 L·min⁻¹ 的小流量采样泵(Model2030,崂应,中国)在烟道-专用采样口进行采集.采样为等速采样,并未进行稀释处理,采样口位于烟道垂直管段,采样头全部进入烟道内,以保证采样不受外界影响.采样头主要是滤膜夹,滤膜夹内放置直径为 47 mm 的石英滤膜(Whatman plc, Middlesex, 英国),用于采集颗粒相 PAHs.采样头后端与吸附剂套筒连接,套筒内放置玻璃采样筒,用于采集气相和半挥发相 PAHs.玻璃筒底部由玻璃筛板支持,筒内装有高度为 5 cm 的 XAD-2(苯乙烯-二乙烯基苯聚合物)大孔树脂颗粒,树脂上下放置 1 cm 厚聚氨酯泡沫(PUF)作为支撑.

采样前,采样膜于马弗炉内在 600℃ 下加热 5 h,然后用铝箔包好放在恒温恒湿箱中静置 24 h 后取出待用.玻璃筒在马弗炉中 600℃ 下加热 6 h 后冷却密封保存.XAD-2 树脂使用前用二氯甲烷回流提取 16 h 两次,然后用乙醚/正己烷提取液回流 16 h,最后放置在通风橱中,等溶剂挥发完毕后密封保存待用.PUF 为密度 25 mg·cm⁻³,长 1 cm 的圆柱.使用前用蒸馏水清洗、沥干水分后用丙酮洗 3 次,放入索氏提取器,然后先用丙酮回流提取 16 h,再用乙醚/正己烷回流提取 2 次,每次 16 h,之后取出待溶剂挥发完毕之后密封保存待用.

表 1 餐厅及采样基本信息

Table 1 Basic and sampling information for each restaurant

餐馆类型	餐馆特点	灶台数	食用油	实测风量 /m ³ ·h ⁻¹	空气质量系数 (AQI)	烟气温度 /℃	相对湿度 /%
粤菜	长时间蒸煮为主,少量油炸,调味料较少	4	大豆油	18 556	14	39	67
川菜	用油量大、口味较重,多用辛辣调味料	4	菜籽油	22 038	18	37	69
浙菜	用油量大、口味偏甜或者食物原味	5	花生油	13 654	16	39	65
食品加工厂	烹饪量大主要为油炸豆制品	4	花生油	33 476	22	43	65

1.2 样品分析

对滤膜称重后,将采样膜均匀剪碎后放入提取瓶中.首先将已知量的氘代二十四烷(*n*-C₂₄D₅₀)、氘代苯甲酸(C₇H₅O₂-D₅)和 5 种多环芳烃(萘-D₈、二氢萘-D₁₀、菲-D₁₀、蒽-D₁₂、芘-D₁₂)加入作为内标,然后加入体积比为 1:3 的甲醇和二氯甲烷混合提取液,在超声波仪(KQ3200B,昆山超声仪器有限公司)中提取,每个样品提取 3 次.提取完毕后将提取液过滤并倒入蒸馏瓶中,利用旋转蒸发仪(N-1000,东京理化器械株式会社,日本)浓缩.蒸发水浴的温

度为 37℃,压力 0.02~0.08 MPa.直到浓缩至 3 mL 时,将样品转移到 K-D 浓缩管中,用高纯氮气重复吹扫定容至 1 mL,然后保存待测.

另一方面将玻璃采样筒称重后,将其中的 PUF 和树脂颗粒转移至提取瓶中,用一定量的乙醚/正己烷提取液冲洗玻璃采样筒并将提取液转入提取瓶中,剩余提取步骤与滤膜提取操作一致.

检测仪器为 GC-MS(6890plus/5973N,美国安捷伦公司).色谱柱为 DB-5MS(J&W, 60 m×0.25 mm×0.25 μm).GC-MS 的主要条件是:进样口温度

300℃; 不分流进样; 恒流模式, 流速 1.0 mL·min⁻¹; 升温程序是: 起始温度 60℃, 保持 10 min, 以 6℃·min⁻¹, 升温到 300℃, 保持 40 min; 扫描模式为全扫描. 有机组分的定性定量利用内标-工作曲线法进行确定.

所有标准品的相对标准偏差均在 10% 以内, 回收率范围从 69%~115%. 每次采样都额外准备了 1 个运输空白和 1 个全程序空白, 每 4 个样品准备 1 个实验室空白. 空白样品中仅检测出了极微量的萘, 并不影响研究结果.

2 结果与讨论

2.1 气相-颗粒相 PAHs 总体分布特征

食品加工厂排放的颗粒相和气相 ρ (总 PAHs) 为 $(1\,381.6 \pm 140.5) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 气相占比为 60.1%; ρ (PAHs-川菜) 为 $(1\,030.2 \pm 116.4) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 气相占比为 62.5%; ρ (PAHs-粤菜) 为 $(908.3 \pm 111.9) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 气相 PAHs 占 61.3%; ρ (PAHs-浙菜) 为 $(838.0 \pm 93.5) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 气相占比为 61.3%. 无论是商业性餐馆还是食品加工厂气相 ρ (PAHs) 均高于颗粒相. 食品加工厂和餐馆的气相 ρ (PAHs) 大小顺序为: 食品加工厂 > 川菜 > 粤菜 > 浙菜, 范围为 $(513.4 \pm 54.8) \sim (829.7 \pm 80.5) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$. 颗粒相 ρ (PAHs) 的大小顺序与气相一致, 范围在 $(324.6 \pm 38.7) \sim (551.8 \pm 60.0) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 4 类餐饮源 ρ (PM_{2.5}) 为 $(1.203 \pm 0.157) \sim (1.595 \pm 0.113) \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$, 颗粒相 PAHs 约占 PM_{2.5} 的 0.02%~0.03%.

2.2 母体 PAHs

由于 PAHs 实际浓度受到多种因素影响, 为了准确对比不同餐饮源的排放特征, 本研究对 PAHs 浓度进行了均一化, 具体结果如图 1 所示. 粤菜馆排放的颗粒相母体 PAHs 中, 菲的浓度最高, 其次是芴和萘, Zhao 等^[8]的研究指出粤菜排放的颗粒物中浓度最高的 PAHs 是芴, 这与本研究的结果有一定出入. 不过, 本研究在粤菜馆排放的颗粒物中检测到一定量的苯并(a)芴, 这与文献[8~10, 13]的结论一致. 与粤菜馆不同, 川菜馆排放的 PM_{2.5} 中芴的浓度最高, 其次是菲, 两者的浓度较大幅度高于其余 PAHs. 浙菜馆排放的颗粒相 PAHs 中, 2 环和 3 环 PAHs 占据主导地位, 其中菲的浓度最高. 不过浙菜馆也排放了大量的芴, 其浓度仅次于芴, 这一现象与前人的结论存在一定的差异, 因为目前的研究认为芴主要存在于西餐排放物中, 而中餐排放的芴浓度往往较低^[6]. 可能的原因与浙菜烹饪重油有关, 并且浙菜馆所使用的花生油也被证明在加热过程中会

释放较高浓度的芴^[6, 14]. 食品加工厂的烹饪方式仅为油炸, 因此 PAHs 的整体排放特征更接近于西式快餐烹饪的结果^[9, 14~16], 表现为颗粒物中芴的浓度远远高于 3 家中式餐馆. 不过与西式快餐不同的是, 食品工厂仍然排放了大量相对分子质量较低的 PAHs, 如菲和萘, 两者的浓度甚至高于芴. 最后, 相较于其余 3 家中式餐馆, 食品加工厂排放的颗粒相 PAHs 中还包含了一定量的高分子 PAHs, 如茚并(1,2,3-cd)芴和二苯并(ah)芴, 其排放量分别约为中式商业餐馆的 8~9 倍和 6~9 倍.

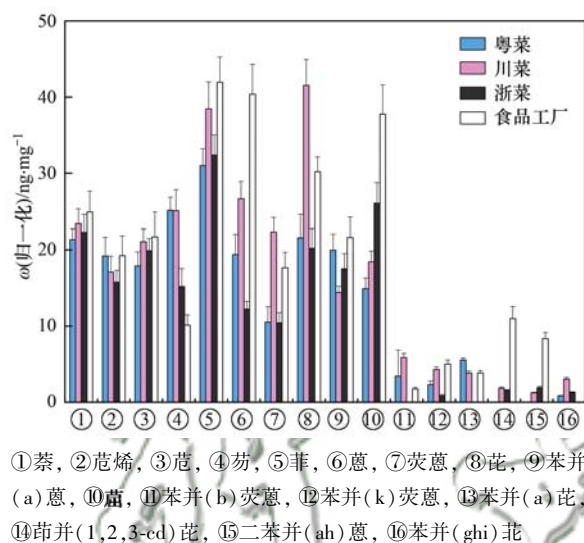


图 1 商业性餐馆和食品加工厂颗粒相母体 PAHs 排放特征

Fig. 1 Distribution of parent-PAHs in particle phase emitted from different restaurants and food plant

如图 2 所示, 粤菜馆排放的气相 PAHs 主要集中在芴之前的相对分子质量较低的 PAHs. 其中萘的浓度远高于其他 PAHs, 大约是第二位菲的 2 倍. 与颗粒相相比, 粤菜馆排放的气相 PAHs 中, 芴之前的 PAHs 在气相中的浓度高于颗粒相, 而从苯并(b)芴开始, 相对分子质量较高的 PAHs 在气相的分布明显少于颗粒相. 川菜馆气相 PAHs 的排放特征大体与粤菜馆相似, 萘的浓度仍然最高, 并且是 4 类餐饮源中最高的. 川菜馆与粤菜馆不同的是其排放的气相 PAHs 中芴的浓度高于菲, 处于第二位, 而值得注意的是, 在川菜馆排放的颗粒相 PAHs 中, 芴的浓度同样高于菲. 浙菜馆的气相母体 PAHs 排放量最低, 与其他餐饮源主要的不同点在于浙菜馆排放了较大量的芴, 这一现象在颗粒相中也存在. 最后, 对于食品加工厂来说, 萘的浓度最高, 菲、芴和芴等也处于较高水平. 尽管食品加工厂的气相母体 PAHs 的排放量远高于川菜馆, 但萘的浓度却略低于川菜馆.

总体来看, 母体 PAHs 的气相占约为 62.3%~64.2%. 2 环、3 环和 4 环 PAHs 主要分布于气相,

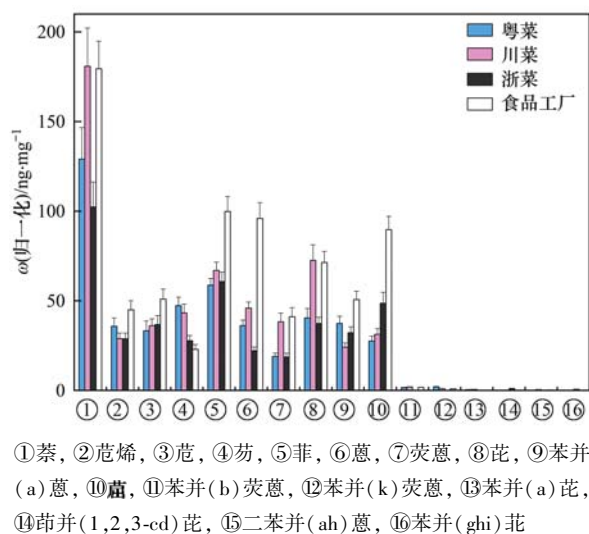


图2 商业性餐馆和食品加工厂气相母体 PAHs 排放特征

Fig. 2 Distribution of parent-PAHs in gas phase emitted from different restaurants and food plant

气相占比均超过 50%, 其中萘的气相占比超过了 75%, 川菜甚至达到了 86.7%. 而 5 环和 6 环 PAHs 在气相的占比极低, 苯并(ghi)芘等甚至接近 0.

2.3 烷基 PAHs

本研究主要检测了: C1-、C2-、C3-萘; C1-、C2-菲; C1-蒽和 C1-芘等烷基 PAHs. C1-萘包括 1-和 2-甲基萘(1-MN 和 2-MN)两种同分异构体. C2-萘则包括 9 种二甲基萘和 1 种乙基萘. C3-萘的同分异构体主要包括: 1-乙基-2-甲基萘、1-甲基-2-乙基萘和 1,2,8-三甲基萘. C1-菲主要是 1-、2-、3-和 9-甲基菲(1-MP、2-MP、3-MP 和 9-MP)4 类同分异构体. C2-菲和 C1-芘虽然存在大量同分异构体, 但总量极低. C1-蒽仅检测到 9-甲基蒽. 萘和菲的烷基衍生物与高等植物有密切关系, 因为他们大多来源于高等植物体内的倍半萜和三萜, 因此餐饮油烟中的烷基萘和烷基菲主要应来自蔬菜^[15,17].

图 3 显示了各餐饮源排放的颗粒相烷基 PAHs 的分布特征. 粤菜馆排放的 PM_{2.5} 中, C1-菲是最丰富的烷基 PAHs, $\omega(C1-菲)$ (浓度归一化, 下同) 为 $(19.28 \pm 1.79) \text{ ng} \cdot \text{mg}^{-1}$, 其中浓度较高的是 1-MP 和 9-MP, 这个结果符合前人对中式连锁餐饮的观察^[18]. 不过对于大多数石油、干草燃烧和机动车源来说, 1-MP 和 9-MP 的浓度往往低于 2-MP 和 3-MP, 而大多数落叶树燃烧排放的颗粒相 PAHs 中, 占主导地位的则是 1-MP 和 2-MP^[19~26]. 这种差别是餐饮源烷基 PAHs 区别于其余污染源的重要特征. 实际上, 相对于 2-MP 和 3-MP, 1-MP 和 9-MP 热稳定更低, 因此, 按照生物质→腐殖质→干酪根→石油的顺序, 1-MP 和 9-MP 的比例将逐步降低^[15,17]. 另外, 本研究在粤菜馆排放的 PM_{2.5} 样品中检测到 5 类

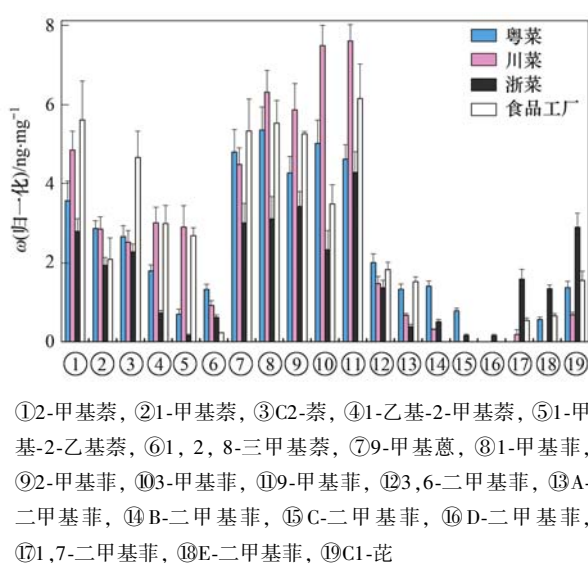


图3 商业性餐馆和食品加工厂颗粒相烷基 PAHs 排放特征

Fig. 3 Distribution of A-PAHs in particle phase emitted from different restaurants and food plant

C2-菲的同位异构体, 其中 3,6-二甲基菲的浓度最高. 粤菜馆排放的颗粒相 C2-菲的浓度低于 C1-菲, C2-菲的浓度仅约为 C1-菲的 30%, 而 C2-菲在燃煤、石油和机动车排放物中浓度较高^[19~21, 24~26], 且通常高于 C1-菲, 这也是餐饮源区别于其他污染源的特点.

川菜馆排放的颗粒相 $\omega(C1-菲)$ 为 $(27.28 \pm 2.51) \text{ ng} \cdot \text{mg}^{-1}$, 浓度最高, 接近浙菜的 2 倍. 4 种类型的 C1-菲异构体的分布与粤菜馆类似, 9-MP 的浓度最高, 其次是 3-MP. 此外, 本研究在川菜馆排放的 PM_{2.5} 样品中仅检测到 3 种 C2-菲的同位异构体, 主要以 3,6-二甲基菲为主, 这一点也与粤菜馆类似. 浙菜颗粒相 $\omega(C1-菲)$ 为 $(13.16 \pm 1.13) \text{ ng} \cdot \text{mg}^{-1}$, 低于粤菜, 且分布特征与其余餐馆差异较大. 浙菜排放的 C2-菲的浓度是 4 类餐饮源中最低的, 但是类型丰富, 其中 1,7-二甲基菲的浓度最高, 这一点也与粤菜和川菜馆不同. 据报道, 1,7-二甲基菲的热稳定性低于 3,6-二甲基菲, 生物质燃烧的排放量会较大, 而机动车等污染源的排放量则较低^[26~28]. 食品加工厂排放的颗粒相烷基 PAHs 的总量最高. 虽然 C1-菲的浓度低于川菜馆, 但 1-MP 与 9-MP 之和仍然高于 2-MP 和 3-MP 之和, 这一点与 3 家餐厅以及前人的结果是一致的^[21]. 另外, 食品加工厂排放的颗粒相 C2-菲大约是商业性餐馆的 4~5 倍, 所有 C2-菲异构体中 3,6-二甲基菲的浓度最高.

如图 4 所示, 粤菜馆气相 ω (烷基 PAHs) 为 $(61.12 \pm 6.39) \text{ ng} \cdot \text{mg}^{-1}$. 其中, $\omega(C1-菲)$ 为 $(24.28 \pm 2.66) \text{ ng} \cdot \text{mg}^{-1}$, 约占气相烷基 PAHs 总量的 40%. 4 类 C1-菲的同分异构体中浓度最大的是

1-MP, 并且 1-MP 与 9-MP 之和高于 2-MP 与 3-MP 之和, 这些都与颗粒相的特征一致。同样, C2-菲的主要排放特征也与颗粒相类似, 浓度最高的 C2-菲同分异构体是 3,6-二甲基菲。2 类 C1-萘的同分异构体的浓度均较高, 并且 2-MN 是所有烷基 PAHs 中浓度最高的。C3-萘的浓度低于 C1-萘, 3 种 C3-萘同分异构体中占主导地位的是 1-乙基-2-甲基萘。川菜馆 ω (烷基 PAHs) 为 $(63.32 \pm 6.42) \text{ ng} \cdot \text{mg}^{-1}$, 略高于粤菜馆。在 2 种 C1-萘的同分异构体中, 2-MN 的浓度远高于 1-MN, 大约是 1-MN 的 2 倍。4 种 C1-菲的同分异构体浓度大小顺序为: 1-MP > 3-MP > 9-MP > 2-MP, 排序与粤菜馆一致。川菜馆排放的气相 C2-菲的浓度远低于粤菜馆, 但 3,6-二甲基菲的浓度仍然高于其余 C2-菲异构体。在 4 类餐饮源中, 浙菜馆排放了浓度最低的气相烷基 PAHs, 为 $(49.66 \pm 6.98) \text{ ng} \cdot \text{mg}^{-1}$, 但是烷基萘的总量却高于粤菜和川菜。不过, 浙菜馆排放的烷基菲的浓度较大幅度低于其余餐馆。并且 4 类 C1-菲的同分异构体中, 9-MP 的浓度高于 1-MP, 明显区别于其余粤菜和川菜。C2-菲同分异构体中浓度最高的是 1,7-二甲基菲, 相关的特征与颗粒相的结果保持一致。对于食品加工厂来说, 气相烷基 PAHs 的排放量远高于其余 3 家商业性餐馆, 其中 C1-萘大约是商业性餐馆的 1.4 ~ 1.7 倍, C2-萘是餐馆的 1.8 ~ 2.5 倍, 而 C3-萘则是餐馆的 1.5 ~ 2.1 倍, 而烷基菲的浓度则与餐馆接近, C1-菲的浓度甚至略低于川菜馆。

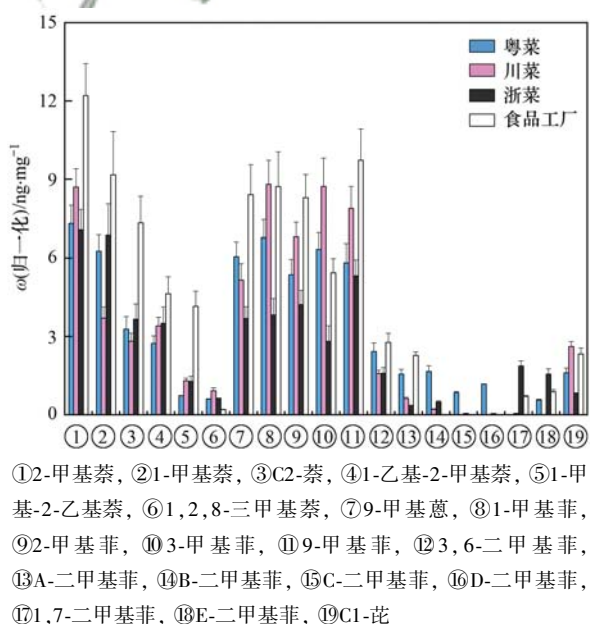


图4 商业性餐馆和食品加工厂气相烷基 PAHs 排放特征

Fig. 4 Distribution of A-PAHs in gas phase emitted from different restaurants and food plant

烷基 PAHs 在颗粒相和气相中的分配与母体 PAHs 有一定区别, 其气相占比低于母体 PAHs, 范

围在 59.3% ~ 62.0%。本研究检测到的烷基 PAHs 多为 2、3 和 4 环母体 PAHs 的烷基衍生物, 烷基 PAHs 的气相占比明显低于对应的母体 PAHs, 这表明烷基影响了 PAHs 在两相的分配, 尤其明显的是 C1-萘的气相占比基本高于 60%, 而随着取代基碳数的升高, 烷基萘的气相占比呈现明显下降趋势, 某些 C3-萘的气相占比甚至不到 40%。尽管如此, 一些颗粒相烷基 PAHs 的重要分布特征 (如 C1-菲) 在气相中也存在, 说明气粒分配并不影响烷基 PAHs 同分异构体的分布。

菜系的不同对 PAHs 的排放特征有明显影响, 浙菜排放的烷基萘的气相占比高于其余餐饮源, 而萘的气相占比却低于其他餐饮源; 川菜排放的萘的气相占比最高, 而 C1-萘的气相占比却最低。本研究通过计算不同菜系 PAHs 组分的分散系数 (CD 值) 来判断菜系对 PAHs 排放特征的影响, 计算结果显示任意两种菜系的 CD 值在 0.316 ~ 0.608 之间, 均大于 0.3, 这表明不同菜系 PAHs 的分布特征存在明显差异。

2.4 气相-颗粒相分配

有研究认为 5 环以上的 PAHs 主要存在于颗粒相中, 2 环和 3 环等 PAHs 主要存在于气相中, 4 环的 PAHs 则同时存在于颗粒相和气相之中^[3,20]。根据气粒分配理论, 本研究所选用的分配模型为 $\lg K_p - \lg P_L$ 模型:

$$\lg K_p = m_r \lg P_L + b_r \quad (1)$$

$$K_p = (F/PM_{2.5})/A \quad (2)$$

$$\lg P_L = a - (b/T) \quad (3)$$

式中, K_p 为气粒分配系数, $\text{m}^3 \cdot \mu\text{g}^{-1}$, 由公式 (2) 求得; P_L 为某物质的过冷饱和蒸气压, Pa, 由公式 (3) 得出; m_r 和 b_r 为 $\lg K_p$ 和 $\lg P_L$ 线性回归拟合的斜率和截距。F 为某组分在颗粒相的浓度, A 为某组分在气相的浓度, $PM_{2.5}$ 为颗粒物的浓度, $\mu\text{g}^{-1} \cdot \text{m}^3$ 。T 为温度, K; a 和 b 为与 PAHs 有关的常数。

各餐厅 $\lg K_p$ 和 $\lg P_L$ 线性拟合结果如图 5 所示, 3 家商业性餐馆的斜率范围为 -0.25 ~ -0.28, 3 家餐馆的采样条件接近, 所以拟合结果差异不大; 食品加工厂的斜率为 -0.18, 高于商业性餐馆。总体来看, 餐馆和加工厂的斜率均大于 -0.6, 说明吸收作用主导了 PAHs 在颗粒相和气相之间的分配, 也说明餐馆和加工厂排放的 PAHs 在颗粒相和气相之间并未达到平衡状态。由于在大气中的停留时间较短, 源头采集的 PAHs 通常较难达到平衡。如表 2 所示, 燃煤电厂的斜率也在 -0.3 左右, 而类似的结果, 前人在针对生物质燃烧、燃煤和焦油厂废气的

研究中也报道^[27-29]. 因此,烟气温湿度可能对斜率的影响更大. 因为 3 家商业性餐馆的烟气温度差距非常小,所以最终三者的斜率非常接近. 而食品加工厂的烟温高于商业性餐馆,斜率偏离 -1 的程度也更大. 但是,餐馆和食品加工厂烟气的湿度范围为 65%~69%,其中浙菜和食品加工厂的相对湿度均为 65%,但两者斜率相差明显,难以判断烟道中湿度对 PAHs 两相分配的影响.

相较于大气环境中的 PAHs,餐饮源 PAHs 会更多地分配到气相. 因此,与广州等地的大气环境中的 PAHs 相比较,餐饮源的斜率高于城市背景值^[30,31]. 但是,将餐馆和食品加工厂的数据汇总并根据 PAHs 的环数分组拟合(表 2),可以发现环数较低和环数较高的 PAHs 均未达到平衡,仅有 4 环 PAHs 最接近平衡,这一点与前人针对城市大气 PAHs 的研究结果是一致的^[29].

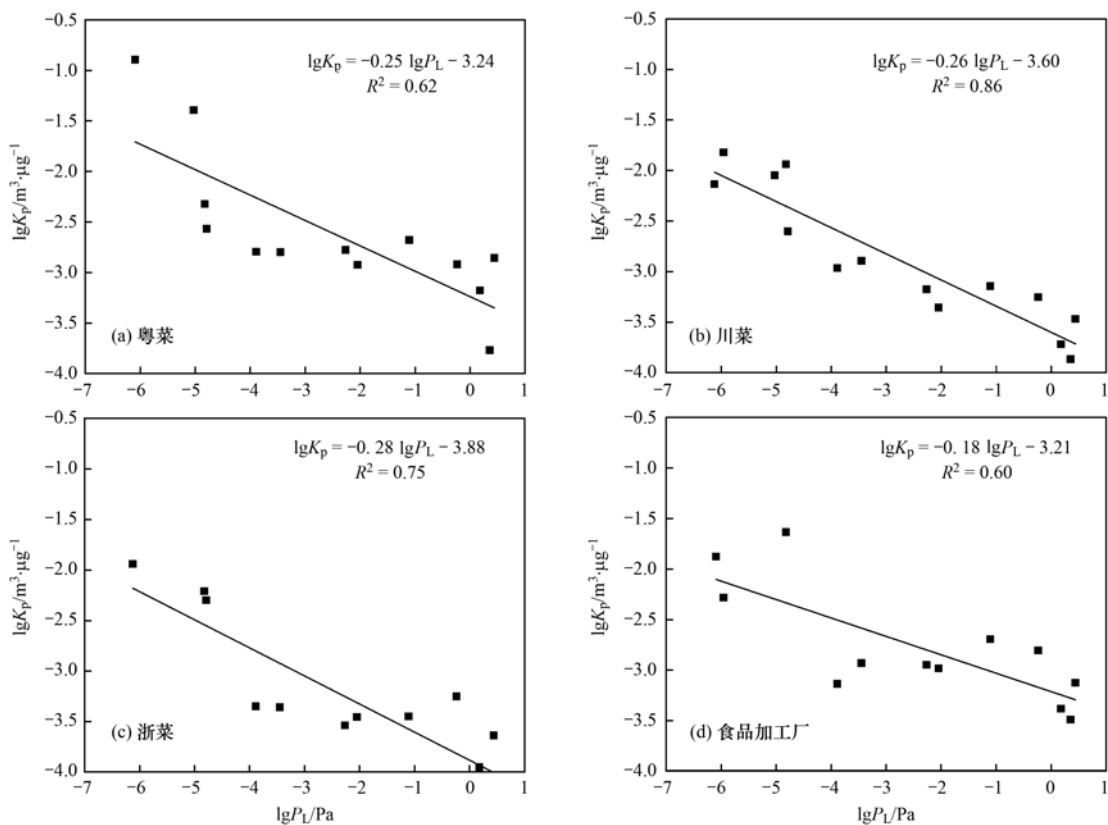


图 5 商业性餐馆和食品加工厂气-粒分配特征

Fig. 5 Gas-particle partitioning of commercial restaurants and food plant

表 2 餐饮源 lgK_p 和 lgP_L 线性拟合结果

Table 2 Linear fitting results of lgK_p and lgP_L for cooking

项目	斜率	R ²
餐饮源	-0.251	0.78
3 环 PAHs	-0.426	0.61
4 环 PAHs	-0.753	0.83
5 环 PAHs	-0.329	0.59
6 环 PAHs	-0.221	0.77
燃煤电厂 ^[28]	-0.27 ~ -0.32	>0.75
广州大气 ^[29]	-0.58	0.89
环渤海西区大气 ^[31]	-1.03	0.78

2.5 PAHs 特征比值

PAHs 特征比值是确定污染物来源的重要指标之一. 表 3 列出了不同污染源主要的 PAHs 特征比值. 如前所述,部分重要的 PAHs 尤其是烷基 PAHs 在气相和颗粒相中的分布差异不大,且前人的研究

也表明气粒分配对 PAHs 的特征比值较小^[6],因此本研究仅计算了总 PAHs 的特征比值(气相 PAHs 与颗粒相 PAHs 之和). 总体来说, Phe/(Ant + Phe) 的值受菜系影响较大,且本研究与前人的结果也有明显的差距,也较大幅度低于深圳大气背景值. 而 Fla/(Fla + Pyr) 和 BaA/(BaA + Chry) 的比值则相对稳定,本研究与前人结果接近. InP/(InP + BghiP) 的值同样受到菜系影响,但餐饮源的比值低于生物质燃烧,与深圳大气背景值接近. 因为餐饮源所排放的烷基 PAHs 中各类烷基 PAHs 的浓度远低于相应的母体 PAHs. 因此, C0/(C0 + C1)-Phe/Ant 和 C0/(C0 + C1)-Pyr 高于其他污染源的比值,而餐饮源(2-MP + 3-MP)/(1-MP + 9-MP) 的比值也明显区别于机动车排放和秸秆燃烧,因此,这 3 类烷基 PAHs 的特征比值都可以作为餐饮源示踪指标.

表 3 不同菜系餐馆的特征指标¹⁾

Table 3 Diagnostic ratios of each cooking style

排放源	Phe	Fla	BaA	InP	C0/(C0 + C1) -	C0	(2-MP + 3-MP)
	/(Phe + Ant)	/(Fla + Pyr)	/(BaA + Chry)	/(InP + BghiP)	Phe/Ant	/(C0 + C1) -Pyr	/(1-MP + 9-MP)
粤菜	0.61	0.32	0.57	0.47	0.72	0.95	0.93
川菜	0.59	0.35	0.44	0.39	0.72	0.97	0.94
浙菜	0.72	0.34	0.40	0.56	0.78	0.93	0.77
食品加工厂	0.51	0.37	0.36	—	0.80	0.96	0.75
粤菜 ^[10]	1.00	0.36	0.47	0.19	—	—	—
湘菜 ^[10]	0.96	0.44	0.51	—	—	—	—
木材燃烧 ^[22]	0.86	0.64	0.07	0.86	0.44	0.77	0.76
秸秆燃烧 ^[23]	0.23	0.48	0.53	1.00	0.63	1.00	1.35
燃煤 ^[19,26]	0.71	0.54	0.45	0.48	0.32	0.40	0.74
机动车 ^[24,25]	0.81	0.40	0.42	—	0.38	0.50	1.58
深圳大气 ^[18]	0.70	0.50	0.49	0.55	0.58	0.71	1.06

1) Phe 表示菲, Ant 表示蒽, Fla 表示荧蒽, Pyr 表示芘, BaA 表示苯并(a)蒽, Chry 表示䓛, InP 表示茚并(1,2,3-cd)䓛, BghiP 表示苯并(ghi)䓛, C0 表示母体 PAHs, C1 表示 C1-PAHs; “—”表示没有数据

3 结论

(1) 食品加工厂排放的颗粒相和气相 ρ (总 PAHs) 为 $(1\,381.6 \pm 140.5) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$; ρ (川菜) 为 $(1\,030.2 \pm 116.4) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$; ρ (粤菜) 为 $(908.3 \pm 111.9) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$; ρ (浙菜) 为 $(838.0 \pm 93.5) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$.

(2) 超过 60% 的 PAHs 分布于气相之中, 其中母体 PAHs 的气相占比约为 62.3%~64.2%, 烷基 PAHs 的气相占比为 59.3%~62.0%. 4 环的䓛及其之前的相对分子质量较低的 PAHs 主要分布于气相, 气相占比接近 60%.

(3) 餐饮源排放的颗粒相和气相烷基 PAHs 总量均远低于其他污染源, 并且所有烷基 PAHs 中烷基菲占主导地位, 且各类烷基 PAHs 的浓度低于相应的母体 PAHs.

(4) $\lg K_p$ 和 $\lg P_L$ 线性拟合结果显示 3 家商业性餐馆的斜率范围为 $-0.25 \sim -0.28$, 食品加工厂的斜率为 -0.18 , 均偏离 -1 , 并未达到平衡. 餐饮源排放的 PAHs 中, 4 环 PAHs 在气相和颗粒相之间的分配最接近平衡, 环数较低和环数较高的 PAHs 均未达到平衡.

致谢: 感谢中国科学院化学研究所赵紫薇同学对本研究样品采集工作的帮助.

参考文献:

[1] 深圳市生态环境局. 深圳市 2020 年大气污染防治工作总结 [EB/OL]. http://meeb.sz.gov.cn/ztfw/ztlz/hjbhxxgkzl/kqhjxx/dqwrfgzjz/content/post_8410388.html, 2021-03-11.

[2] 湛社霞, 匡耀求, 阮柱. 基于灰色关联度的粤港澳大湾区空气质量影响因素分析[J]. 清华大学学报(自然科学版), 2018, 58(8): 761-767.

Zhan S X, Kuang Y Q, Ruan Z. Factors impacting the regional air quality in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area: a study based on grey relational analysis[J]. Journal of Tsinghua University (Science and Technology), 2018, 58(8):

761-767.

[3] 唐孝炎, 张远航, 邵敏. 大气环境化学[M]. (第二版). 北京: 高等教育出版社, 1992.

[4] 王振亚, 郝立庆, 张为俊. 二次有机气溶胶形成的化学过程[J]. 化学进展, 2005, 17(4): 732-739.

Wang Z Y, Hao L Q, Zhang W J. Chemical processes on the formation of secondary organic aerosols [J]. Progress in Chemistry, 2005, 17(4): 732-739.

[5] 张小曳, 孙俊英, 王亚强, 等. 我国雾-霾成因及其治理的思考[J]. 科学通报, 2013, 58(13): 1178-1187.

Zhang X Y, Sun J Y, Wang Y Q, et al. Factors contributing to haze and fog in China [J]. Chinese Science Bulletin, 2013, 58(13): 1178-1187.

[6] Abdullahi K L, Delgado-Saborit J M, Harrison R M. Emissions and indoor concentrations of particulate matter and its specific chemical components from cooking: a review [J]. Atmospheric Environment, 2013, 71: 260-294.

[7] Allan J D, Williams P I, Morgan W T, et al. Contributions from transport, solid fuel burning and cooking to primary organic aerosols in two UK cities [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, 10(2): 647-668.

[8] Zhao Y L, Hu M, Slanina S, et al. Chemical compositions of fine particulate organic matter emitted from Chinese cooking [J]. Environmental Science & Technology, 2007, 41(1): 99-105.

[9] Zhao Y L, Hu M, Slanina S, et al. The molecular distribution of fine particulate organic matter emitted from Western-style fast food cooking [J]. Atmospheric Environment, 2007, 41(37): 8163-8171.

[10] He L Y, Hu M, Huang X F, et al. Measurement of emissions of fine particulate organic matter from Chinese cooking [J]. Atmospheric Environment, 2004, 38(38): 6557-6564.

[11] Pei B, Cui H Y, Liu H, et al. Chemical characteristics of fine particulate matter emitted from commercial cooking [J]. Frontiers of Environmental Science & Engineering, 2016, 10(3): 559-568.

[12] Wang L N, Xiang Z Y, Stevanovic S, et al. Role of Chinese cooking emissions on ambient air quality and human health [J]. Science of the Total Environment, 2017, 589: 173-181.

[13] Wei C, Bandowe B A M, Han Y M, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and their derivatives (alkyl-PAHs, oxygenated-PAHs, nitrated-PAHs and azaarenes) in urban road dusts from Xi'an, Central China [J]. Chemosphere, 2015, 134:

- 512-520.
- [14] Reyes-Villegas E, Bannan T, Le Breton M, *et al.* Online chemical characterization of food-cooking organic aerosols: implications for source apportionment[J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **52**(9): 5308-5318.
- [15] 李源遽, 吴爱华, 童梦雪, 等. 颗粒物有机源示踪物的筛选与应用综述[J]. *环境科学*, 2021, **42**(2): 1013-1022.
Li Y J, Wu A H, Tong M X, *et al.* Review of screening and applications of organic tracers in fine particulate matter [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(2): 1013-1022.
- [16] Robinson A L, Subramanian R, Donahue N M, *et al.* Source apportionment of molecular markers and organic aerosol- 1. Polycyclic aromatic hydrocarbons and methodology for data visualization[J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(24): 7803-7810.
- [17] 彼得斯 K E, 沃尔特斯 C C, 莫尔多万 J M. 生物标志化合物指南[M]. 张水昌, 李振西, 译. (第二版). 北京: 石油工业出版社, 2011.
- [18] Li Y J, Wu Y D, Xu J, *et al.* Chemical characterization of particulate organic matter from commercial restaurants: alkyl PAHs as new tracers for cooking [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, **770**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.145308.
- [19] Simoneit B R T, Bi X H, Oros D R, *et al.* Phenols and hydroxy-PAHs (arylphenols) as tracers for coal smoke particulate matter: source tests and ambient aerosol assessments[J]. *Environmental Science & Technology*, 2007, **41**(21): 7294-7302.
- [20] Li X, Dallmann T R, May A A, *et al.* Gas-particle partitioning of vehicle emitted primary organic aerosol measured in a traffic tunnel [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50**(22): 12146-12155.
- [21] Yunker M B, Macdonald R W, Vingarzan R, *et al.* PAHs in the Fraser River basin: a critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition [J]. *Organic Geochemistry*, 2002, **33**(4): 489-515.
- [22] Oros D R, Abas M R B, Omar N Y M J, *et al.* Identification and emission factors of molecular tracers in organic aerosols from biomass burning: part 3. Grasses [J]. *Applied Geochemistry*, 2006, **21**(6): 919-940.
- [23] Oros D R, Simoneit B R T. Identification and emission factors of molecular tracers in organic aerosols from biomass burning Part 1. Temperate climate conifers [J]. *Applied Geochemistry*, 2001, **16**(13): 1513-1544.
- [24] Gentner D R, Jathar S H, Gordon T D, *et al.* Review of urban secondary organic aerosol formation from gasoline and diesel motor vehicle emissions [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, **51**(3): 1074-1093.
- [25] Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, *et al.* Measurement of emissions from air pollution sources. 5. C₁ - C₃₂ organic compounds from gasoline-powered motor vehicles [J]. *Environmental Science & Technology*, 2002, **36**(6): 1169-1180.
- [26] Oros D R, Simoneit B R T. Identification and emission rates of molecular tracers in coal smoke particulate matter [J]. *Fuel*, 2000, **79**(5): 515-536.
- [27] 张玉凤, 宋永刚, 田金, 等. 辽东湾大气中多环芳烃的含量组成及气粒分配 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(4): 1527-1536.
Zhang Y F, Song Y G, Tian J, *et al.* Occurrence and gas-particle partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons in the air of Liaodong Bay [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(4): 1527-1536.
- [28] 袁晶晶, 笪春年, 王儒威, 等. 淮南燃煤电厂烟气中颗粒相和气相中多环芳烃的赋存特征 [J]. *环境化学*, 2018, **37**(6): 1382-1390.
Yuan J J, Da C N, Wang R W, *et al.* Occurrence of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM₁₀-and gaseous phases of flue gases emitted from Huainan coal-fired power plant [J]. *Environmental Chemistry*, 2018, **37**(6): 1382-1390.
- [29] 毕新慧, 盛国英, 谭吉华, 等. 多环芳烃(PAHs)在大气中的相分布 [J]. *环境科学学报*, 2004, **24**(1): 101-106.
Bi X H, Sheng G Y, Tan J H, *et al.* Phase partitioning of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the atmosphere [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2004, **24**(1): 101-106.
- [30] 朱青青, 张宪, 董姝君, 等. 大气中持久性有机污染物在气相和颗粒相中的分配特征研究进展 [J]. *环境化学*, 2014, **33**(10): 1629-1636.
Zhu Q Q, Zhang X, Dong S J, *et al.* Progress on the gas/particle partitioning of persistent organic pollutants in atmosphere [J]. *Environmental Chemistry*, 2014, **33**(10): 1629-1636.
- [31] 刘书臻. 环渤海西部地区大气中的 PAHs 污染 [D]. 北京: 北京大学, 2008.

CONTENTS

Analysis of Change and Driving Factors of PM _{2.5} Mass Concentration in Tianjin from 2000 to 2020	CAI Zi-ying, HAO Jian, HAN Su-qin, <i>et al.</i> (1129)
Characteristics and Sources of PM _{2.5} -O ₃ Compound Pollution in Tianjin	XIAO Zhi-mei, XU Hong, GAO Jing-yun, <i>et al.</i> (1140)
Source Analysis of Ambient PM _{2.5} in Wuhan City Based on Random Forest Model	ZHANG Zhi-hao, CHEN Nan, ZHU Bo, <i>et al.</i> (1151)
Chemical Characteristics and Sources of Atmospheric Aerosols in the Surrounding District of a Heavily Polluted City in the Southern Part of North China	REN Xiu-long, HU Wei, WU Chun-miao, <i>et al.</i> (1159)
Characteristics of Water-soluble Ions in an Autumn Haze Process in the Southern Sichuan Urban Agglomeration After the Implementation of China's Air Pollution Prevention and Control Action Plan	WU An-nan, HUANG Xiao-juan, HE Ren-jiang, <i>et al.</i> (1170)
Concentration, Source, and Health Risk Assessment of PM ₁ Heavy Metals in Typical Pollution Processes in Zhengzhou	ZHAI Shi-ting, WANG Shen-bo, ZHANG Dong, <i>et al.</i> (1180)
Geographical Detection of Spatial Heterogeneity and Drivers of PM _{2.5} in the Yangtze River Economic Belt	WANG Li-li, LIU Xiao-jie, LI Ding, <i>et al.</i> (1190)
Spatial Heterogeneity of PM _{2.5} Concentration in Response to Land Use/Cover Conversion in the Yangtze River Delta Region	ZHOU Li-xia, WU Tao, JIANG Guo-jun, <i>et al.</i> (1201)
Analysis of Pollution Characteristics, Meteorological Impact, and Forecast Retrospective During the Spring Festival and the Lantern Festival in "2+26" Cities	ZHU Yuan-yuan, WANG Xiao-fei, WANG Wei, <i>et al.</i> (1212)
Pollution Characteristics and Influencing Factors of PM _{2.5} in Shanxi Province Based on Wavelet Transform	ZHANG Ke-ke, HU Dong-mei, YAN Yu-long, <i>et al.</i> (1226)
Estimation of Surface Ozone Concentration and Health Impact Assessment in China	ZHAO Nan, LU Yi-min (1235)
Analysis of Ozone Pollution Spatio-temporal Evolution Characteristics and Identification of Its Long-term Variation Driving Factor over Hunan Province	LIU Yan-yan, YANG Lei-feng, XIE Dan-ping, <i>et al.</i> (1246)
Temporal and Spatial Variation in O ₃ Concentration Near the Surface of Shandong Peninsula and Analysis of Potential Source Areas	LI Le, LIU Min-xia, XIAO Shi-ni, <i>et al.</i> (1256)
Characteristics, Ozone Formation Potential, and Source Apportionment of VOCs During the COVID-19 Epidemic in Xiong'an	LIU Xin-jun, WANG Shu-juan, LIU Cheng, <i>et al.</i> (1268)
Characteristics and Source Analysis of VOCs Pollution During the Period of Ozone Exceeding the Standard in Zibo City	WANG Shuai, WANG Xiu-yan, YANG Wen, <i>et al.</i> (1277)
Comparison of VOCs Pollution Characteristics Between an Urban Site and a Background Site in Summer in Zibo	QIN Tao, XU Bo, WANG Xin-wu, <i>et al.</i> (1286)
Emission Characteristics and Inventory of Volatile Organic Compounds from Cooking in Sichuan Province	QIAN Jun, HAN Li, CHEN Jun-hui, <i>et al.</i> (1296)
Emission Characteristics of Gas-and Particle-Phase Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from Cooking	LI Yuan-ju, WU Ai-hua, TONG Meng-xue, <i>et al.</i> (1307)
Diversity and Community Structure of Airborne Fungi in Different Working Areas of Composting Plants	YU Ao-yuan, XING Li-jun, SUN Xing-bin, <i>et al.</i> (1315)
Main Problems and Refined Solutions of Urban Fugitive Dust Pollution in China	LI Ting-kun, FENG Yin-chang, BI Xiao-hui, <i>et al.</i> (1323)
Water Quality Assessment and Spatial-temporal Variation Analysis in Yellow River Basin	LIU Yan-long, ZHENG Yi-an (1332)
Spatial Distribution and Influential Factors of Nutrients in Rivers of a Typical Mountainous City: A Case Study of the Qingshuixi River in Chongqing	WANG Chao, YE Qiu, JIA Bo-yang, <i>et al.</i> (1346)
River-Lake States in the Tributary of the Three Gorges Reservoir Area and Their Effects on the Phosphorus Content of Different Forms in the Sediment	HUANG Wei, ZHANG Xing, LUO Xiao-jiao, <i>et al.</i> (1356)
Molecular Signatures of Dissolved Organic Matter in the Paihe River and Its Tributaries	ZHAN Ya, YIN Hao, FENG Jing-wei, <i>et al.</i> (1365)
Multiphase Spatial Distribution Characteristics of Cd Morphology in Typical Intertidal Zones in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area and Its Influencing Factors	CUI Xin-yue, MO Wu-qiu, LIAO Jian-bo (1375)
Occurrence Characteristics and Risk Assessment of Antibiotics in the Surface Water of Luoma Lake and Its Main Inflow Rivers	GONG Run-qiang, ZHAO Hua-jin, GAO Zhan-qi, <i>et al.</i> (1384)
Contamination Characteristics and Ecological Risk Assessment of Antibiotics in the Third Drain of Ningxia	LI Fu-juan, GAO Li, LI Ling-yun, <i>et al.</i> (1394)
Historical Changes and Responses to Human Activities of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Lake Sediments from Northern China During the Past 100 Years	GONG Xiong-hu, ZHAO Zhong-hua, DING Qi-qi, <i>et al.</i> (1404)
Characteristics of Bacterioplankton Community Between River and Lake/Reservoir in the Yangtze River Basin	HU Yu-xin, ZHANG Jing, HUANG Jie, <i>et al.</i> (1414)
Characteristics of Bacterial Community Structure in Wuliangs Lake During an Irrigation Interval in Hetao Plain	SHI Yu-jiao, LI Wen-bao, ZHANG Bo-yao, <i>et al.</i> (1424)
Effects of Landscape Structures on Bacterioplankton Communities at Multi-spatial Scales in the Yuanhe River	SHU Wang, WANG Peng, DING Ming-jun, <i>et al.</i> (1434)
Microbial Community Structure on Microplastic Surface in the <i>Grus leucogeranus</i> Reserve of Poyang Lake	LIU Shu-li, JIAN Min-fei, ZOU Long, <i>et al.</i> (1447)
Influence of Microplastics on the Development of <i>Proteus</i> Biofilm	TAO Hui, QI Yi-ting, YU Duo, <i>et al.</i> (1455)
Deposition Law of Low-Density Microplastics Aggregation in Wuliangs Lake	LIU Yu, SHI Xiao-hong, ZHANG Sheng, <i>et al.</i> (1463)
Adsorption of Fulvic Acid on Virgin and Aging Microplastics	SONG Ya-li, YU Ya, ZHENG Lei, <i>et al.</i> (1472)
Diffusive Fluxes and Controls of N ₂ O from Coastal Rivers in Tianjin City	TANG Meng-yao, HU Xiao-kang, WANG Hong-wei, <i>et al.</i> (1481)
Effects of Hematite and Biochar Addition on Wastewater Treatment Efficiency, Greenhouse Gas Emission, and Microbial Community in Subsurface Flow Constructed Wetland	CHEN Xin-tong, HAO Qing-ju, XIONG Yan-fang, <i>et al.</i> (1492)
Identification and Optimization Method of Rainfall-Runoff Pollution Risk Level	QI Xiao-tian, ZHANG Zhi-ming, ZHAO Xin, <i>et al.</i> (1500)
Factor Analysis of Disinfection Byproduct Formation in Drinking Water Distribution Systems Through the Bayesian Network	JIANG Shan-shan, WANG Zhen-yu, GAO Quan, <i>et al.</i> (1512)
Selective Adsorption of Au(Ⅲ) by Activated Carbon Supported Polythioamides and Adsorption Mechanism	ZHAO Wen-jin, ZHANG Shun, AN Xiao-qi, <i>et al.</i> (1521)
Impacts of F/M Ratio on Microbial Networks in Activated Sludge	ZHANG Bing, SUN Chen-xiang, WEN Xiang-hua (1529)
Geochemical Characteristics and Source Apportionment of Soil Elements in an Urban-rural Integration Area: A Case Study in the Qinglong Area of Tianfu New District	LIU Shu-huai, WANG De-wei, SHI Ze-ming, <i>et al.</i> (1535)
Ecological and Health Risk Assessments Based on the Total Amount and Speciation of Heavy Metals in Soils Around Mining Areas	WANG Rui, CHEN Nan, ZHANG Er-xi (1546)
Characteristics of Antimony Migration and Transformation and Pollution Evaluation in a Soil-Crop System Around a Tin Mine in Hunan Province	ZHANG Long, SONG Bo, HUANG Feng-yan, <i>et al.</i> (1558)
Effect of Controlling Heavy Metals in Soil of Rare Earth Mining Area by Biochar Supported Graphene Oxide	YANG Shi, LIU Zu-wen, LONG Bei, <i>et al.</i> (1567)
Enhanced Remediation of Cd Contaminated Soil by Cotton with DOM	MIN Tao, LUO Tong, CHEN Li-li, <i>et al.</i> (1577)
Novel Insight into the Adsorption Mechanism of Fe-Mn Oxide-Microbe Combined Biochar for Cd(Ⅱ) and As(Ⅲ)	LIAN Bin, WU Ji-zi, ZHAO Ke-li, <i>et al.</i> (1584)
Variations in Cadmium Accumulation and Transport and Ionic Traits Among Different Winter Wheat Varieties	LIU Chang, XU Ying-ming, HUANG Qing-qing, <i>et al.</i> (1596)
Cadmium Accumulation Characteristics of Different Heat Varieties Under Cadmium Stress	REN Chao, REN Yu-zhong, WANG Hao, <i>et al.</i> (1606)
Effect of Different Land Use Types on the Diversity of Soil Bacterial Community in the Coastal Zone of Jialing River	LIU Kun-he, XUE Yu-qin, ZHU Lan-ping, <i>et al.</i> (1620)
Effects of Earthworms/Biochar on Bacterial Diversity and Community in As-contaminated Red Soil	SU Qian-qian, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, <i>et al.</i> (1630)
Effects of DA-6 and EDDS on Growth and Cd Uptake by <i>Solanum nigrum</i> L. and on the Soil Bacterial Community Structure	LUO Yang, SUN Li, LIU Fang, <i>et al.</i> (1641)
Effects of Plastic Mulch Film on Soil Nutrients and Ecological Enzyme Stoichiometry in Farmland	HU Zhi-e, XIAO Mou-liang, WANG Shuang, <i>et al.</i> (1649)
Effects of Warming and Increased Precipitation on Soil Respiration of Abandoned Grassland in the Loess-Hilly Regions	WANG Xing, ZHONG Ze-kun, ZHU Yu-fan, <i>et al.</i> (1657)
Effect of Film Mulching, Straw Retention, and Nitrogen Fertilization on the N ₂ O and N ₂ Emission in a Winter Wheat Field	PENG Yi, LI Hui-tong, ZHANG Shao-wei, <i>et al.</i> (1668)
Effects of Straw Returning on Soil Ammonia Volatilization Under Different Production Conditions Based on Meta-analysis	ZHAO Zheng-xin, WANG Xiao-yun, TIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1678)
Impacts of Fertilization on Soil Antibiotic Resistance Genes Across Croplands: A Meta-Analysis	RAN Ji-wei, XIAO Qiong, HUANG Min, <i>et al.</i> (1688)