

汾渭平原典型城乡PM_{2.5}中多环芳烃特征与健康风险

蔡瑞婷¹, 肖 舜¹, 董治宝¹, 曹军骥², 张宁宁², 刘随心²,
沈振兴³, 徐红梅³, 陶 燕⁴, 李星敏⁵, 王 鑫¹, 王雨萌¹

(1. 陕西师范大学地理科学与旅游学院, 西安 710119; 2. 中国科学院地球环境研究所, 西安 710061;
3. 西安交通大学能源与动力学院, 西安 710049; 4. 兰州大学资源环境学院, 兰州 730000;
5. 陕西省气象科学研究所, 西安 710014)

摘要: 为查明汾渭平原典型城乡地区重度污染天气PM_{2.5}中多环芳烃(PAHs)污染特征及其人群健康效应, 本文于2018—2019年冬季分别选取西安和陇县作为城乡对比参照点, 采集了重度污染天气PM_{2.5}颗粒态气溶胶样品。利用气相色谱—质谱联用仪(GC-MS)检测样品中具有“三致效应”的15种PAHs含量及组分特征, 使用特征比值法及主成分法进行PAHs源解析, 并分析了气象因素对PAHs质量浓度的可能影响, 通过对苯并芘(BaP)等效毒性浓度和终生超额致癌风险度(ILCR)的计算, 对人群健康风险进行评估。结果表明: 西安与陇县在重度污染天气条件下PM_{2.5}中15种PAHs总平均质量浓度分别为243.78 ng/m³、609.39 ng/m³, 其中4~6环PAHs占比最高; 且PAHs浓度与气温、气压及风速呈显著负相关, 与相对湿度则无明显相关性。西安PAHs污染主要来自燃烧源与交通排放源, 而煤炭及生物质燃烧是造成陇县PAHs质量浓度偏高的主要原因。健康风险评估结果显示, 重污染天气下陇县人群通过呼吸引发的致癌风险要高于西安, 女性致癌风险高于男性, 成人致癌风险高于儿童, 且两地区成人ILCR值均超过风险阈值, 存在潜在致癌风险, 儿童则无明显致癌风险。

关键词: PM_{2.5}; 多环芳烃; 重污染天气; 污染特征; 健康风险; 汾渭平原
DOI: 10.11821/dlxb202103017

1 引言

大气污染对人体健康与气候变化的影响已经成为不争的事实^[1-2]。世界卫生组织(WHO)将“室外大气污染”列入1类致癌物清单, 并视其为普遍和主要的环境致癌物。据2019年联合国国家规划署(UNEP)最新报道, 全世界每年约700万人因空气污染过早死亡, 其中有60万儿童死于由污染空气诱发的急性下呼吸道感染, 1/3的脑卒中、慢性阻塞性肺病和心脏病由大气污染引起^[3-5]。众所周知, PM_{2.5}是大气霾污染的主要成分, 其空气动力学等效粒径 $\leq 2.5 \mu\text{m}$, 颗粒表面形态结构复杂且比表面积大^[6], 利于富集环境空气中毒害组分进而穿透肺部参与全身血液循环引发一系列心脑血管疾病。有研究表明高浓度PM_{2.5}暴露会引发人体血压上升、心律失常, 产生中风、急性心梗、动脉粥

收稿日期: 2020-01-03; 修订日期: 2020-12-20

基金项目: 国家自然科学基金项目(41771220); 中央高校基本科研业务费自由探索项目(GK201803054) [Foundation: National Natural Science Foundation of China, No.41771220; Free Exploration Project of the Fundamental Research Funds for the Central Universities, No.Gk201803054]

作者简介: 蔡瑞婷(1994-), 女, 陕西宝鸡人, 硕士, 研究方向为大气污染与环境健康。E-mail: 1215933628@qq.com

通讯作者: 肖舜(1981-), 男, 陕西西安人, 副教授, 硕士生导师, 主要从事环境气象与健康地理方面教学和研究工作。
E-mail: sxiao@snnu.edu.cn

样硬化等症状,且暴露时间越长,心血管疾病患者死亡率越高^[7-9]。多环芳烃(PAHs)是富集于PM_{2.5}中一类由两个或两个以上苯环连接而成的持久性有机污染物,半衰期较长,可随颗粒物在大气环境中长距离迁移扩散造成大范围持续性污染^[10]。有学者发现南北极和青藏高原等偏远清洁地区颗粒态气溶胶污染与大气环流形势密切相关^[11-13],Wang等^[14]通过对鲁朗高原观测站点持续监测发现受印度季风系统及南支西风带影响,南亚地区大气粉尘跨境传输是造成青藏高原东南缘大气PAHs浓度水平呈现夏季低冬季高的主要原因。此外PAHs对人体健康影响也不容忽视,国内外大量的流行病学统计研究显示^[15-17],PAHs吸入性暴露是大气污染诱发肺癌的主要因素,长期接触PAHs还会导致免疫力低下、DNA和肝脏损伤及白内障等症状,孕妇接触PAHs可能造成早产、胎儿畸形及发育迟缓等严重后果。迄今为止发现的PAHs有200多种,其中以苯并芘(BaP)为首的16种PAHs因具有致畸、致癌、致突变性的“三致效应”而被美国环保署(US EPA)列入优控名单^[18]。

有关空气污染及其具有显著致癌作用的大气有机化学成分研究目前已经成为国内外大气污染与环境健康领域关注的热点问题,针对大气环境中PAHs的研究主要集中在污染物形态、迁移转化及归趋、人群环境健康暴露风险等多个方面^[19-21]。研究表明全球PAHs三大主要来源为住宅区生物质燃烧、野外生物质燃烧及机动车尾气排放,其中亚洲地区年均贡献量最大,占据全球PAHs总排放量50%以上^[22]。通过对欧洲与亚洲地区学校环境暴露研究发现亚洲儿童学校环境PAHs暴露程度高于欧洲儿童,且居住于工业区的儿童其体内PAHs代谢产物含量远高于郊区等其他功能区生活的儿童^[23]。中国城市与农村大气污染问题由来已久,受到了政府和公众的广泛关注,数据显示^[24-25],96%的中国人口PM_{2.5}暴露程度超过世界卫生组织规定的年均浓度限值(35 μg/m³),每年约120万人因大气污染过早死亡。随着城市化步入快速发展阶段,中国大气污染已由单纯煤烟型污染转化为复合型污染^[26],国内学者针对大气PAHs不同区域、季节差异及人群健康等特征开展了卓有成效的研究工作。有学者对北京雾霾期不同功能区大气PAHs研究表明农村及郊区人群PAHs暴露水平高于市区,且城郊两区人群均存在BaP致癌风险^[27];而通过对上海地区PM_{2.5}中PAHs污染特征研究发现机动车尾气排放及煤燃烧是上海市大气环境中PAHs主要来源,且冬季PAHs浓度与温度、相对湿度呈负相关而在其他季节则无明显相关性^[28];对成都地区2009—2016年连续7年PM₁₀中PAHs污染状况分析表明工业源是丰水期PAHs呈现高浓度的主要因素,而燃烧源对于旱期PAHs有较大贡献,且控制汽车尾气尤其是柴油车尾气排放对降低PAHs致癌风险有显著作用^[29]。

汾渭平原地处黄土高原东南缘,大气细颗粒黄土背景粉尘浓度偏高,由于受到东亚冬季风和西风环流的共同影响,该区域霾污染天气的产生与大气环流背景密切相关^[30]。近年来全国大气污染水平总体减缓,但由于汾渭平原是中国焦炭及原煤主产区,重工业、焦化等高耗能高污染行业占主要地位,煤炭在能源消费中占比近90%,结合不利于污染物扩散的盆地地形配置,导致汾渭平原大气污染居高不下。2018年汾渭平原平均大气质量优良天数仅占全年54.6%,远低于79.3%的全国平均优良天数占比,汾渭平原11个城市在全国空气质量排名末位20城市中所占数量由2015年的0个增至6个,成为仅次于京津冀的第二大污染区,同年被列入国家大气污染防治三大重点区域之一^[31]。目前国内大气PAHs研究报道较多集中在京津冀、长三角、珠三角等东部经济发达地区,对新增重污染区汾渭平原的研究报道较少,故本文以汾渭平原典型城乡地区为研究区分析PM_{2.5}中多环芳烃污染特征及人体健康风险,以期为该地区大气污染治理提供科学依据。

2 材料与方法

2.1 研究区域及样品采集

西安作为汾渭平原的核心城市,是唯一布局在中国西北地区的国际化大都市和国家中心城市,截至2018年年底西安市常住人口达到1000.37万,机动车保有量达330万^[32],随着城市化及工业化的快速发展,大气污染已成为西安市首要环境问题,故本文选取西安作为汾渭平原城市研究区域。农村采样点位于汾渭平原最西部的宝鸡市陇县,该地区冬季采暖方式主要以燃煤及生物质秸秆燃烧为主,是中国典型的以固体燃料为主要能源结构的北方农村,可有效代表汾渭平原农村地区大气现状。

城市采样点位于陕西师范大学长安校区格物楼6层楼顶(距地面高度为20 m),农村采样点位于陕西省宝鸡市陇县某村(距地面高度为5 m)(图1)。为分析重污染天气PM_{2.5}中PAHs污染特征及其健康风险,本文按照中国《环境空气质量指数(AQI)技术规范(试行)》(HJ633-2012)规定^[33],当 $200 \leq \text{AQI} \leq 300$,视为重度污染天气,选取典型重污染时段共采集大气样品14份,其中西安样品10份,采样日期为2018年12月20日、2019年1月4—5日、11—14日、24日,2月18日、20日;陇县样品4份,采样日期为2019年2月11—13日、19日。

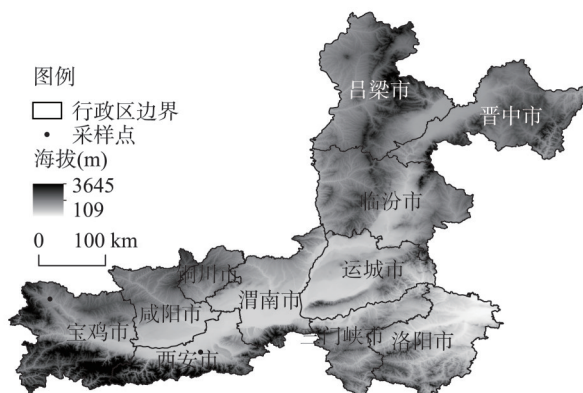


图1 采样点位置图

Fig. 1 Location of the sampling sites

西安与陇县PM_{2.5}样品均使用美国Airmetrics MiniVol便携式空气采样器采集,额定流速为5 L/min,采样时长控制在23~24 h范围内。选用Whatman 47 mm石英纤维滤膜,滤膜在采样前需在马弗炉内450 ℃下烧灼5 h,经恒温恒湿方可称重,采样后样品用铝箔纸密封保存,保存温度低于4 ℃。同时为确保周边视野开阔且无污染物排放源干扰,将仪器架高至距楼顶地面1.5 m以上。

2.2 实验方法

本文使用中国科学院地球环境研究所气溶胶化学与物理重点实验室Sartorius百万分之一分析天平,使用国际通用的重量法计算PM_{2.5}质量浓度。采用超声萃取法进行预处理,具体步骤为:将1/4滤膜置于装有20 mL二氯甲烷—正己烷混合液(体积比为1:1)的样品瓶进行常温超声萃取30 min,共萃取3次;待萃取完成后,将萃取液转移到梨形瓶中使用旋转蒸发仪浓缩至0.5 mL左右;将浓缩后的少量样品提取液转移至经混合液洗脱后的Silica固相柱进行净化;最后将样品氮吹浓缩转至进样瓶,定容至1 mL,放于冰箱4 ℃以下冷藏保存待测。

预处理后的样品采用气相色谱—质谱联用仪(GC-MS, Agilent)进行测样,色谱柱为DB-5MS (30 m×0.25 mm×0.25 μm),以高纯度氮气作为载气(≥99.999%),不分流进样1 μL,恒流流速为1 mL/min,质谱为全扫描模式。仪器运行条件为进样口温度为280 ℃,传输线温度为280 ℃,离子源温度为230 ℃。色谱柱升温程序为:进样口初始温度为70 ℃,保持3 min后以25 ℃/min的速度立即升温至150 ℃,再以3 ℃/min的速度升

温至280℃保持5 min,最后升温至300℃保持10 min。16种优控PAHs分别为:萘(NaP)、蒎烯(Acy)、蒎(Ace)、芴(Fl)、菲(Phe)、蒽(Ant)、荧蒽(Flu)、芘(Pyr)、苯并[a]蒽(BaA)、屈(Chr)、苯并[b]荧蒽(BbF)、苯并[k]荧蒽(BkF)、苯并[a]芘(BaP)、二苯并[a, h]蒽(DBA)、苯并[g, h, i]芘(BghiP)、茚并[1, 2, 3-c, d]芘(IcdP)。

通过色谱保留时间与特征离子进行PAHs定性分析,使用外标法对目标化合物进行定量分析:将16种PAHs标准混合液配制浓度梯度为10 μg/mL、20 μg/mL、50 μg/mL、80 μg/mL、100 μg/mL的标准系列溶液,各取1 mL转移至进样瓶上机测样并绘制目标化合物标准曲线,其相关系数均大于0.99。

2.3 质量控制和质量保证

样品采集与分析过程中,所使用到的玻璃器皿均用无水乙醇冲洗3次;采样前后滤膜恒温恒湿称量至误差小于0.015 mg;5%的样品进行平行样测定分析,确保误差小于20%;每5个样品做一个空白加标,除NaP以外15种PAHs回收率均在75%~125%之间。故本文对NaP值不予讨论,15种PAHs方法检出限(MDL)为0.01~0.74 ng/m³。

2.4 健康风险评价

健康风险评价将污染物与人体健康相联系,以风险度作为评价指标定量描述人群长期暴露在不利环境中所造成的健康危害^[34]。人体暴露主要有饮食摄入、皮肤吸收、呼吸3个途径,本文核心为PM_{2.5}中PAHs,故只考虑呼吸途径产生的健康风险。采用EPA推荐的BaP毒性当量法及终生致癌风险模型(ILCR)来评估西安与陇县PM_{2.5}中PAHs对人体造成的健康危害。其中,毒性当量法是以BaP浓度作为参考值来表征其他PAHs组分的毒性,通过致癌等效系数计算出混合物的BaP等效毒性质量浓度(TEQ),计算公式为^[35]:

$$TEQ = \sum C_i \times TEF_i \quad (1)$$

式中: C_i 为各单体PAHs浓度(ng/m³); TEF_i 为各组分毒性等效因子; TEQ 为毒性等效浓度(ng/m³)。

污染物通过呼吸途径引起的致癌风险采用ILCR模型来计算,公式为^[36]:

$$R = C_i \times IR \times EF \times ED \times ET \times CSF / (BW \times AT) \quad (2)$$

式中: R 为人群终身致癌超额危险度(无量纲); C_i 为毒性等效浓度(ng/m³); IR 为呼吸速率(m³/h); EF 为暴露频率(d/a); ET 为暴露时间(h/d); ED 为暴露持续时长(a); CSF 为吸入BaP致癌强度系数(mg/(kg d)); BW 为体重(kg); AT 为平均暴露时间(d)。

3 结果与讨论

3.1 污染特征

3.1.1 PM_{2.5}与PAHs污染水平 采样期间以西安为代表的城市地区及以陇县为代表的西部农村地区PM_{2.5}日均质量浓度如图2a所示,平均质量浓度为235.72 μg/m³,质量浓度变化范围为123.89~362.87 μg/m³,且采样期日均浓度均超出《环境空气质量标准》(GB3095-2012)二级浓度限值(75 μg/m³)^[37],超标率为100%。重污染天气下西安PM_{2.5}平均质量浓度为214.67 μg/m³,是标准限值的2.9倍,与国内其他城市相比较,该值高于北京市^[38]重污染天气PM_{2.5}质量浓度(141.3 μg/m³),略低于济南城区^[39]重污染天气PM_{2.5}平均浓度(260 μg/m³)。而陇县在重污染天气下PM_{2.5}平均质量浓度达到288.34 μg/m³,稍高于西安样品浓度,超出标准限值近4倍。

城市与农村地区重污染天气PM_{2.5}中PAHs平均质量浓度为348.24 ng/m³,范围在

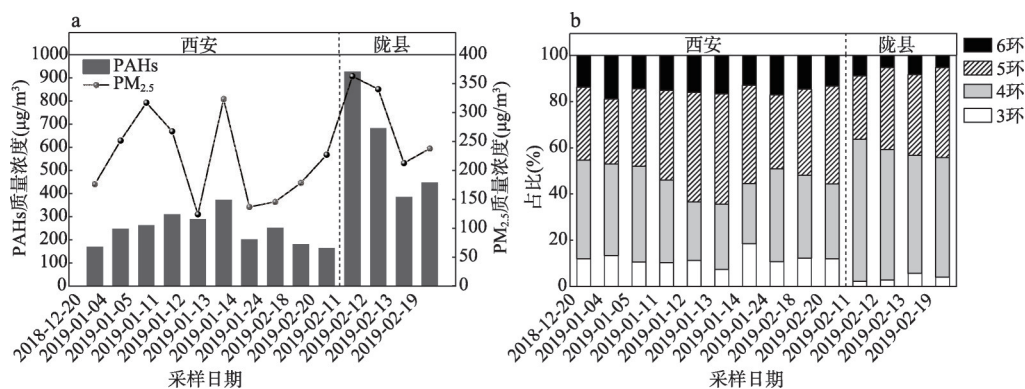


图2 重污染期间PM_{2.5}、PAHs质量浓度及不同环数PAHs占比

Fig. 2 Concentrations of PM_{2.5}, PAHs and percentage of different rings PAHs during heavy polluted weather

162.92~926.06 ng/m³之间。其中西安PAHs质量浓度平均值为243.78 ng/m³，该值高于广州市区^[40]重污染期PM_{2.5}中PAHs平均浓度(59.82 ng/m³)，但低于北京市(423.9 ng/m³)及南京市^[41](307.79 ng/m³)重霾期研究结果。陇县PAHs在重污染期均处于较高污染水平，平均质量浓度为609.39 ng/m³，是西安PAHs浓度含量的2.5倍。

由图2a可见采样期间西安2019年1月11—14日为研究时段持续时间较长的典型连续重污染过程，该时间段及2019年1月4—5日的重污染过程中PM_{2.5}浓度表现出与PAHs基本一致的变化趋势($R^2 = 0.68$)。在持续时间较短的2018年12月20日、2019年1月24日、2月18日、20日等非连续重污染时段，PM_{2.5}与PAHs浓度相关性水平则较低，这可能是由于城市地区污染源相对复杂，在不同时间段污染源类型及排放强度会发生变化，且在连续发生的重污染过程中污染物浓度较多受制于气象条件影响^[42]。而陇县冬季污染物以供暖燃烧固体燃料排放为主，来源相对稳定^[43]，因此在2019年2月11—13日、19日重污染期PM_{2.5}与PAHs浓度变化趋势一致，两者相关性系数高达0.92。此外，西安在2019年1月13日达到重污染期PM_{2.5}和PAHs最高值，是由于当天为周末，市区人群活动量与机动车出行量均高于工作日；而陇县PM_{2.5}与PAHs质量浓度最高值出现在2月11日，该日为阴历正月初七，处于当地春节社火民俗活动高峰期，大量烟花爆竹在当天燃放，人群活动丰富频繁。以上日期最高值也表明人为活动对于大气污染影响显著，是造成当地空气污染的主要因素。

3.1.2 PAHs组成特征 重污染天气下西安与陇县PM_{2.5}中的低环(LMW, 2~3环)、中环(MMW, 4环)、高环(HMW, 5~6环)PAHs分别为占总PAHs质量浓度的11%、34%、55%及4%、55%、41%(图2b)。其中西安PAHs以5~6环为主，4环次之，3环含量最低；而陇县则以4环为主，5~6环次之，同样3环占比最低。但西安3环及6环PAHs含量明显高于陇县，而4环PAHs低于陇县。环数占比的差异性除了与城乡地区污染源的不同有关外，也是由于随着PAHs苯环数及结构式复杂程度的增加，其化学性质愈加稳定，在大气中固—气相分配系数增大，使得中高环PAHs较多富集于细颗粒物上；另外，受冬季环境温度低，大气层稳定等多种气象因素影响，强挥发性的低环PAHs固相富集量降低，从而导致中高环PAHs含量在两地区均高于低环PAHs^[44]。

西安各单体PAHs中含量最高的是BkF，平均质量浓度为35.20 ng/m³，Flu、BbF、Chr次之，而Ant含量最低，平均质量浓度为1.87 ng/m³(图3)。Flu为陇县重污染天气含量最高的PAHs单体，平均质量浓度为92.93 ng/m³，该值超出西安市重污染期Flu均值3

倍多,有研究表明,高Flu值是煤炭燃烧源的象征^[45],说明陇县煤炭使用率高是影响PM_{2.5}中PAHs含量的重要因素。除Flu外,陇县Chr、Pyr、BbF含量也相对较高,分别占总PAHs的15%、14%、13%、13%,Acy和Ant含量较低,均仅占2%,而Acy、Ant是石油源及自然成岩的标志物,表明采样区石油源及自然源排放的PAHs极少。

重污染期间西安与陇县PM_{2.5}中PAHs各单体含量比较发现(图3),低环PAHs中,除Ant、Fl的城市平均含量略低于农村地区外,Acy、Ace、Phe质量浓度均表现为陇县高于西安。而中高环PAHs中,除BkF、DBA外,其余单体PAHs则表现为陇县平均质量浓度远高于西安,其中BaA含量差异最为显著。特别需要说明的是,BaP是唯一列入中国环境空气质量标准的PAHs,日均限值为2.5 ng/m³,而重污染天气下西安和陇县PM_{2.5}中BaP日均浓度分别为18.39 ng/m³、40.32 ng/m³,各超出标准限值的7.3倍和16.1倍,远高于人群可接受水平。

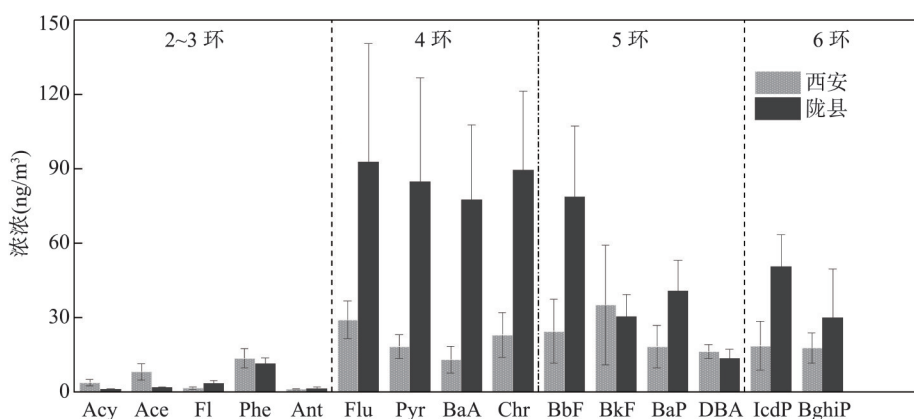


图3 重污染天气下PM_{2.5}中各单体PAHs平均浓度水平

Fig. 3 Concentrations of single- PAHs in PM_{2.5} during heavy polluted weather

3.2 PAHs与气象要素相关性分析

大气污染除了受区域特殊地形配置条件、社会经济发展水平以及能源结构等因素影响外,还与污染天气过程期间气象条件变化密切相关^[46]。图4为采样期间西安及陇县PAHs浓度与气象参数之间的关系图,为进一步探究PAHs污染与气象条件之间的相关性,对重污染期PM_{2.5}中PAHs质量浓度与气象要素(气温、气压、相对湿度、风速)进行相关性分析(表1)。采样期间PM_{2.5}中PAHs与气温、气压及风速均呈显著负相关性,其Pearson相关系数分别为-0.624、-0.760、-0.690,以上相关系数均通过 $\alpha = 0.01$ 双尾显著性水平检验,同时结果表明,采样期间PAHs浓度与相对湿度无明显相关。以上结果与Zhang^[47]研究武汉地区冬季PAHs污染与气象要素相关性的结果基本一致。

重污染期间研究区域气温波动范围为-5.1~2.5℃,平均温度为-0.9℃,平均气压为955 hPa,平均风速为2.7 m/s,且东北风为主导风向,温度及风速值均整体偏小。相关性分析结果表明重污染期间PM_{2.5}中PAHs质量浓度与气温、气压及风速呈显著负相关,即当该气象因子值较低时,PAHs浓度呈升高趋势,尤其是农村地区,气温、气压及风速值远小于城市地区,而PAHs浓度却呈现较高水平。西安与陇县均地处汾渭平原西部,三面环山且山区气温偏低,复杂的地形条件结合不利的气象因素,不利于低环PAHs的挥发与富集,也抑制了中环PAHs的半挥发性。另外当冬季近地面温度及气压较低且风速较小时,易形成近地面稳定大气层结,出现逆温层而减缓空气对流,不利于大气污染物的水

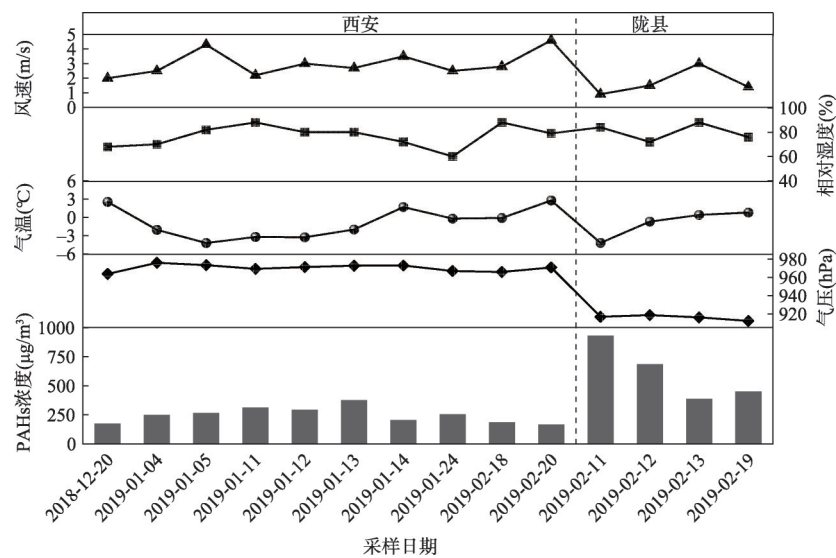


图4 重污染期间PM_{2.5}中PAHs浓度与气象要素变化特征

Fig. 4 Variation characteristics of PAHs and meteorology parameters during heavy polluted weather

平和垂直扩散，造成汾渭平原西部近地面大气细颗粒物的累积及PAHs的富集。

3.3 PAHs源解析

3.3.1 特征比值法 特征比值法是PAHs源解析最经典方法之一，主要依据相同分子量PAHs的同分异构体化合物浓度比值来判断其环境来源^[48]。通常利用 Ant/(Ant+Phe)、Flu/(Flu+Pyr)、BaA/(BaA+Chr)、IcdP/(IcdP+BghiP)等的特征比值作为源解析判断依据^[49]，当 Ant/(Ant+Phe)小于0.1时，PAHs判断为石油源排放，大于0.1时则是燃烧源；当 Flu/(Flu+Pyr)大于0.5时，则认为是煤炭及生物质的燃烧，该值介于0.4~0.5时，则视为化石燃料燃烧排放；当 BaA/(BaA+Chr)大于0.35，可能是煤炭及生物质燃烧源，介于0.2~0.35时，则是石油、燃烧的混合源；当 IcdP/(IcdP+BghiP) < 0.2时，为石油源，介于0.2~0.5之间，表示PAHs为化石燃料燃烧源，大于0.5则为煤炭或生物质燃烧源。

重污染期间西安与陇县特征比值结果如图5所示，Ant/(Ant+Phe)比值均介于0.1~0.2，表明西安与陇县PAHs均以燃烧源为主；西安Flu/(Flu+Pyr)值介于0.4~0.8，表明可能来源有油类燃烧、煤炭及生物质燃烧，陇县Flu/(Flu+Pyr)值介于0.5~0.6，表明煤炭及生物质燃烧是该农村地区PAHs主要来源。西安BaA/(BaA+Chr)范围为0.2~0.5，IcdP/(IcdP+BghiP)范围为0.3~0.72，表明PAHs由交通源及燃烧源共同作用产生，陇县两比值范围分别为0.4~0.5、0.5~0.8，表明生物质及煤炭燃烧为主要排放源。

故特征比值法分析结果表明，煤炭、生物质的燃烧及机动车尾气混合排放的混合源是西安PM_{2.5}中高浓度PAHs的主要因素；而煤炭和生物质燃烧是陇县PM_{2.5}中PAHs的主要来源。

表1 重污染期间PM_{2.5}中PAHs与气象要素 Pearson 相关性

Tab. 1 Pearson correlation of PAHs and meteorology parameters during heavy polluted weather

各参数	PAHs	气温	气压	风速	相对湿度
PAHs	1				
气温	-0.624**	1			
气压	-0.760**	0.197	1		
风速	-0.690**	0.306	0.620**	1	
相对湿度	0.227	-0.193	-0.172	-0.278	1

注：“*”指在0.01级别(双尾),相关性显著。

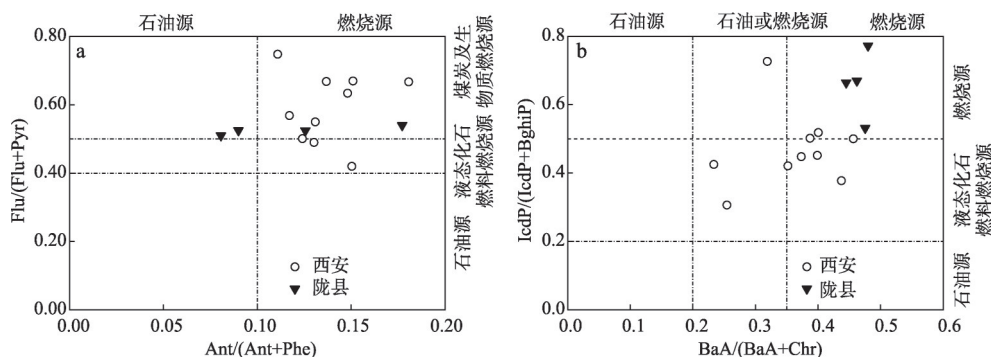


图5 重污染期间PAHs特征比值法源解析

Fig. 5 Source of PAHs in PM_{2.5} by diagnostic ratios during heavy polluted weather

3.3.2 主成分分析法(PCA) 除特征比值法外, 主成分分析法也是解析PAHs来源的重要手段。

对西安与陇县重污染天气PM_{2.5}中PAHs单体进行主成分分析, 最大方差法旋转后的因子荷载结果如图6所示。从解析结果看, 共提取出3个特征值大于1的因子, 累计贡献率为82.23%。其中因子1解释了52.7%的来源, 负载系数较大的单体为BaA、Chr、Pyr、Flu, 研究表明Pyr及Chr是生物质燃烧的标志物成分, 而BaA、Flu代表燃煤排放^[50], 因此因子1可归因为煤炭及生物质燃烧源。因子2共解释了15.89%的来源, 在Phe及BkF上荷载较高, Phe被视为重油及柴油燃烧产生的PAHs, 而BkF是柴油燃烧标志物^[51], 因此因子2可判断为是柴油车尾气排放源。因子3解释了13.68%的来源, 在BghiP上有较大的荷载, 而BghiP是汽油车排放物的标志物^[52], 表明因子3代表汽油类机动车尾气排放源。以上结果表明汾渭平原西部地区重污染天气下PM_{2.5}中PAHs最主要来源为煤炭及生物质燃烧, 机动车尾气排放源次之, 这也说明中国城市及农村地区冬季取暖方式对大气PAHs污染的影响至关重要。

3.4 健康风险分析

BaP是16种优控PAHs中致癌致畸性最强, 且唯一列入中国环境质量的PAHs。EPA推荐以BaP浓度为背景值, 由式(1)计算基于BaP的等效毒性浓度TEQ(表2)。中国《环境空气质量标准》(GB3095-2012)规定二类区BaP日均浓度限值为2.5 ng/m³, 重污染期间西安PM_{2.5}中PAHs的TEQ平均质量浓度为44.37 ng/m³, 陇县为79.72 ng/m³, 分别超出规定限值的17.7倍和31.9倍, 表明在重污染天气下汾渭平原西部地区大气PAHs污染已远超人群可接受水平, 对人体健康造成威胁。

EPA将ILCR值分为3类, 最低风险阈值为10⁻⁶, 当风险计算值小于10⁻⁶时, 表明无风险; 当计算值高于10⁻⁶且低于10⁻⁴, 有潜在致癌风险; 当该值大于10⁻⁴时, 有较高致癌风险, 且值越大, 风险程度越高, 此时应当引起高度重视^[53]。本文参考EPA《暴露参数手

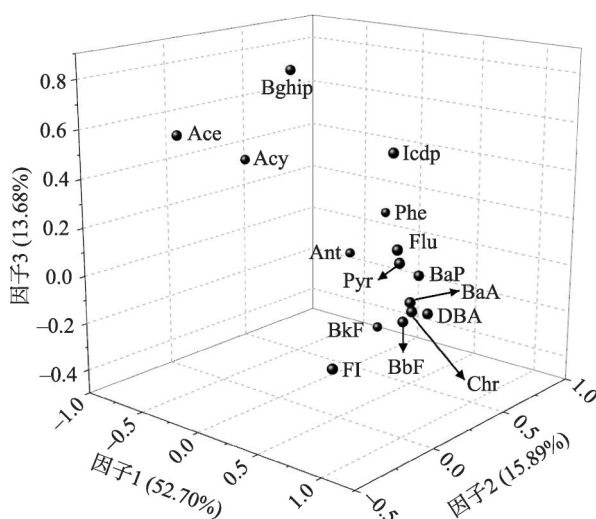


图6 重污染期间PAHs主成分分析法源解析结果

Fig. 6 Source of PAHs in PM_{2.5} by PCA method during heavy polluted weather

表2 重污染天气下PM_{2.5}中PAHs的TEQ均值(μg/m³)
Tab. 2 Average TEQ of PAHs in PM_{2.5} in heavy polluted weather (μg/m³)

单体 PAHs	TEF _i	西安 TEQ	陇县 TEQ	单体 PAHs	TEF _i	西安 TEQ	陇县 TEQ
Acy	0.001	0.00383	0.00123	Chr	0.01	0.23066	0.89568
Ace	0.001	0.00818	0.00178	BbF	0.10	2.45329	7.87647
Fl	0.001	0.00157	0.00365	BkF	0.10	3.51998	3.05048
Phe	0.001	0.01240	0.00909	BaP	1.00	18.39103	40.82083
Ant	0.010	0.01870	0.01310	IcdP	0.10	1.86381	5.06751
Flu	0.001	0.02908	0.09293	DBA	1.00	16.31994	13.74001
Pyr	0.001	0.01833	0.08488	BghiP	0.01	0.19340	0.30031
BaA	0.100	1.30446	7.76588				
Σ TEQ		44.36863	79.72385				

册》^[54]《中国人群暴露参数手册（成人卷）》^[55]及《中国人群暴露参数手册（儿童卷）概要》^[56]确定相关参数，根据式（2）计算出西安与陇县在重污染天气条件下通过呼吸暴露的儿童及成人致癌风险值（表3）。西安男性、女性的成人及儿童ILCR值分别为 3.552×10^{-6} 、 3.874×10^{-6} 、 0.468×10^{-6} 、 0.493×10^{-6} ，陇县该值分别为 0.88×10^{-6} 、 0.921×10^{-6} 、 9.895×10^{-6} 、 10.405×10^{-6} 。

两地区PAHs暴露风险均以成人女性值为最高，成人男性次之、儿童风险值较低。陇县不同人群ILCR值普遍要高于西安，其中成人与儿童致癌风险分别是西安的近3倍和2倍。另外，不同年龄组、不同性别致癌风险也有所不同，主要表现为成人致癌风险普遍高于儿童、女性高于男性的特征，与中国深圳及武汉地区^[57]的研究结果基本一致，这是由于不同性别及年龄段的人群呼吸速率、体重及室外暴露时间具有差异性，如相对于成人，儿童具有较短的室外暴露时间及较低的呼吸速率，而相对于男性，女性则体重较轻。与国内其他地区相比较，本文城市与农村成人致癌风险值均高于天津^[58]市区（ 2.18×10^{-6} ）及郊区（ 6.67×10^{-6} ）重污染天气下研究结果，但西安市成人致癌风险值低于南京市重霾期研究结果（ 6.7×10^{-6} ），儿童风险值低于北京市^[59]儿童大气PAHs呼吸暴露风险值（ 1.3×10^{-6} ）。整体而言，西安与陇县在重污染天气下成人致癌风险值均超过 10^{-6} ，存在潜在致癌风险；儿童致癌风险值均低于 10^{-6} ，无明显致癌风险。

表3 不同年龄段人群各项暴露参数取值及ILCR值
Tab. 3 Exposure parameters and ILCR value of different age groups

参数	西安				陇县			
	儿童		成人		儿童		成人	
	男	女	男	女	男	女	男	女
IR(m ³ /h)	0.36	0.36	0.75	0.75	0.34	0.34	0.73	0.73
ET(h/d)	2.2	2.2	3.08	2.87	2.4	2.2	4.60	4.30
ED(a)	6	6	52	52	6	6	52	52
EF(d/a)	365	365	365	365	365	365	365	365
CSF(mg/(kg d))	3.1	3.1	3.1	3.1	3.1	3.1	3.1	3.1
BW(kg)	20.2	19.2	67.3	57.5	19.9	19.0	63.1	56.1
AT(d)	25500	25500	25500	25500	25500	25500	25500	25500
ILCR($\times 10^{-6}$)	0.468	0.493	3.552	3.874	0.880	0.921	9.895	10.405

4 结论

(1) 重度污染天气下汾渭平原典型城市与农村地区PM_{2.5}及PM_{2.5}中PAHs平均质量浓度分别为214.67 μg/m³、288.34 μg/m³、243.78 ng/m³、609.39 ng/m³, PM_{2.5}及PM_{2.5}中PAHs均表现为陇县污染水平高于西安, PAHs组成中西安以5~6环为主, 而陇县以4环为主, 3环PAHs占比均为最低;

(2) PM_{2.5}中PAHs与气象因素相关性分析结果表明: 重污染期间PAHs质量浓度与气温、气压及风速呈负相关, 且相关性显著, 与相对湿度则无明显相关性;

(3) 使用特征比值法及主成分分析法解析西安与陇县重污染期间PM_{2.5}中PAHs来源, 结果表明煤炭及生物质燃烧源是陇县PAHs的主要来源, 而燃烧排放与机动车尾气排放的混合源是西安市呈现高浓度PAHs的主要因素;

(4) 健康风险评价结果表明汾渭平原以陇县为代表的西部农村地区在重污染天气下PAHs人群致癌风险远高于以西安为代表的城市地区。不同人群呈现出成人致癌风险高于儿童, 女性致癌风险高于男性的特征, 总体表现为两地区成人致癌风险均超过风险阈值, 存在潜在致癌风险, 儿童则无明显致癌风险。

参考文献(References)

- [1] Kalnay E, Cai M. Impact of urbanization and land-use change on climate. *Nature*, 2003, 423(6939): 528-531.
- [2] Kan H D, Chen R J, Tong S L. Ambient air pollution, climate change, and population health in China. *Environment International*, 2012, 42: 10-19.
- [3] Loomis D, Grosse Y, Lauby-Secretan B, et al. The carcinogenicity of outdoor air pollution. *The Lancet Oncology*, 2013, 14(13): 1262-1263.
- [4] Forouzanfar M H, Afshin A, Alexander L T, et al. Global, regional, and national comparative risk assessment of 79 behavioural, environmental and occupational, and metabolic risks or clusters of risks, 1990-2015: A systematic analysis for the Global Burden of Disease Study 2015. *The Lancet*, 2016, 388(10053): 1659-1724.
- [5] United Nations Environment Programme(UNEP). Air Pollution in Asia and the Pacific: Science-based Solutions. Nairobi: United Nations Environment Programme, 2019: 18-24.
- [6] He K B, Yang F M, Ma Y L, et al. The characteristics of PM_{2.5} in Beijing, China. *Atmospheric Environment*, 2001, 35(29): 4959-4970.
- [7] Zhou Liang, Zhou Chenghu, Yang Fan, et al. Spatio-temporal evolution and the influencing factors of PM_{2.5} in China between 2000 and 2011. *Acta Geographica Sinica*, 2017, 72(11): 2079-2092. [周亮, 周成虎, 杨帆, 等. 2000—2011年中国PM_{2.5}时空演化特征及驱动因素解析. *地理学报*, 2017, 72(11): 2079-2092.]
- [8] Fann N, Lamson A D, Anenberg S C, et al. Estimating the national public health burden associated with exposure to ambient PM_{2.5} and ozone. *Risk Analysis*, 2012, 32(1): 81-95.
- [9] Pui D Y H, Chen S C, Zuo Z L. PM_{2.5} in China: Measurements, sources, visibility and health effects, and mitigation. *Particuology*, 2014, 13: 1-26.
- [10] Ravindra K, Sokhi R, van Grieken R V. Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons: Source attribution, emission factors and regulation. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(13): 2895-2921.
- [11] Becker S, Halsall C J, Tych W, et al. Resolving the long-term trends of polycyclic aromatic hydrocarbons in the Canadian arctic atmosphere. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40(10): 3217-3222.
- [12] Kang Shichang, Cong Zhiyuan, Wang Xiaoping, et al. The transboundary transport of air pollutants and their environmental impacts on Tibetan Plateau. *Chinese Science Bulletin*, 2019, 64(27): 2876-2884. [康世昌, 丛志远, 王小萍, 等. 大气污染物跨境传输及其对青藏高原环境影响. *科学通报*, 2019, 64(27): 2876-2884.]
- [13] Ding X, Wang X M, Xie Z Q, et al. Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons observed over the North Pacific Ocean and the Arctic area: Spatial distribution and source identification. *Atmospheric Environment*, 2007, 41(10): 2061-2072.
- [14] Wang X P, Gong P, Sheng J J, et al. Long-range atmospheric transport of particulate polycyclic aromatic hydrocarbons

- and the incursion of aerosols to the southeast Tibetan Plateau. *Atmospheric Environment*, 2015, 115: 124-131.
- [15] Kim K H, Jahan S A, Kabir E, et al. A review of airborne polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and their human health effects. *Environment International*, 2013, 60: 71-80.
- [16] Petry T, Schmid P, Schlatter C. The use of toxic equivalency factors in assessing occupational and environmental health risk associated with exposure to airborne mixtures of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). *Chemosphere*, 1996, 32 (4): 639-648.
- [17] Bolden A L, Rochester J R, Schultz K, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons and female reproductive health: A scoping review. *Reproductive Toxicology*, 2017, 73: 61-74.
- [18] Srogi K. Monitoring of environmental exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons: A review. *Environmental Chemistry Letters*, 2007, 5(4): 169-195.
- [19] Yan D H, Wu S H, Zhou S L, et al. Characteristics, sources and health risk assessment of airborne particulate PAHs in Chinese cities: A review. *Environmental Pollution*, 2019, 248: 804-814.
- [20] Abdel-Shafy H I, Mansour M S M. A review on polycyclic aromatic hydrocarbons: Source, environmental impact, effect on human health and remediation. *Egyptian Journal of Petroleum*, 2016, 25(1): 107-123.
- [21] Etchie T O, Sivanesan S, Etchie A T, et al. The burden of disease attributable to ambient PM_{2.5}-bound PAHs exposure in Nagpur, India. *Chemosphere*, 2018, 204: 277-289.
- [22] Balmer J E, Hung H, Yu Y, et al. Sources and environmental fate of pyrogenic polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the Arctic. *Emerging Contaminants*, 2019, 5: 128-142.
- [23] Oliveira M, Slezakova K, Delerue-Matos C, et al. Children environmental exposure to particulate matter and polycyclic aromatic hydrocarbons and biomonitoring in school environments: A review on indoor and outdoor exposure levels, major sources and health impacts. *Environment International*, 2019, 124: 180-204.
- [24] Song C B, He J J, Wu L, et al. Health burden attributable to ambient PM_{2.5} in China. *Environmental Pollution*, 2017, 223: 575-586.
- [25] World Health Organization. WHO Air quality guidelines for particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide: Global update 2005: Summary of risk assessment. Geneva: World Health Organization, 2006.
- [26] Qin Tianbao. New The Air Pollution Prevention and Control Law: Moving forward in twists and turns. *Environmental Protection*, 2015, 43(18): 47-50. [秦天宝. 新《大气污染防治法》: 曲折中前行. *环境保护*, 2015, 43(18): 47-50.]
- [27] Gao Y, Guo X Y, Ji H B, et al. Potential threat of heavy metals and PAHs in PM_{2.5} in different urban functional areas of Beijing. *Atmospheric Research*, 2016, 178: 6-16.
- [28] Liu Y K, Yu Y P, Liu M, et al. Characterization and source identification of PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in different seasons from Shanghai, China. *Science of the Total Environment*, 2018, 644: 725-735.
- [29] Xue Q Q, Jiang Z, Wang X, et al. Comparative study of PM₁₀-bound heavy metals and PAHs during six years in a Chinese megacity: Compositions, sources, and source-specific risks. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, 186: 109740. DOI: 10.1016/j.ecoenv.2019.109740.
- [30] Wu Ping, Ding Yihui, Liu Yanju, et al. Influence of the East Asian winter monsoon and atmospheric humidity on the wintertime haze frequency over central-eastern China. *Acta Meteorologica Sinica*, 2016, 74(3): 352-366. [吴萍, 丁一汇, 柳艳菊, 等. 中国中东部冬季霾日的形成与东亚冬季风和大气湿度的关系. *气象学报*, 2016, 74(3): 352-366.]
- [31] Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. State of the Environment Bulletin of China 2018. 2019. [中华人民共和国环境保护部. 2018中国环境状况公报. 2019.]
- [32] Xi'an Statistical Bureau. Statistical bulletin of the national economic and social development of Xi'an in 2018. www.tjj.xa.gov.cn/, 2019-03-18. [西安市统计局. 西安市2018年国民经济和社会发展统计公报. www.tjj.xa.gov.cn/, 2019-03-18.]
- [33] Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. HJ633-2012, Technical Regulation on Ambient Air Quality Index (on trial). Beijing: China Environmental Science Press, 2012. [国家环境保护部. HJ633-2012, 环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行). 北京: 中国环境科学出版社, 2012.]
- [34] Scheier M F, Carver C S. Optimism, coping, and health: Assessment and implications of generalized outcome expectancies. *Health Psychology*, 1985, 4(3): 219-247.
- [35] Jung K H, Yan B Z, Chillrud S N, et al. Assessment of benzo(a) pyrene-equivalent carcinogenicity and mutagenicity of residential indoor versus outdoor polycyclic aromatic hydrocarbons exposing young children in New York city. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2010, 7(5): 1889-1900.
- [36] United States Environmental Protection Agency (U.S. EPA). Supplemental guidance for developing soil screening

- levels for superfund sites. Washington, DC: Office of Emergency and Remedial Response, 2002.
- [37] Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. GB3095-2012, Ambient Air Quality Standards (on trial). Beijing: China Environmental Science Press, 2012. [国家环境保护部. GB3095-2012, 环境空气质量标准(试行). 北京: 中国环境科学出版社, 2012.]
- [38] Li L J, Ho S S H, Feng B H, et al. Characterization of particulate-bound polycyclic aromatic compounds (PACs) and their oxidations in heavy polluted atmosphere: A case study in urban Beijing, China during haze events. *Science of the Total Environment*, 2019, 660: 1392-1402.
- [39] Liu Yingying, Yin Baohui, Wang Jing, et al. Characteristics of airborne particles compositions during winter heavy pollution days in Jinan. *Environmental Chemistry*, 2018, 37(12): 2749-2757. [刘盈盈, 殷宝辉, 王静, 等. 济南冬季大气重污染过程颗粒物组分变化特征. *环境化学*, 2018, 37(12): 2749-2757.]
- [40] Liu J J, Man R L, Ma S X, et al. Atmospheric levels and health risk of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) bound to PM_{2.5} in Guangzhou, China. *Marine Pollution Bulletin*, 2015, 100(1): 134-143.
- [41] Meng Q Z, Fan S X, He J B, et al. Particle size distribution and characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons during a heavy haze episode in Nanjing, China. *Particuology*, 2015, 18: 127-134.
- [42] Zhang Y P, Chen J, Yang H N, et al. Seasonal variation and potential source regions of PM_{2.5}-bound PAHs in the megacity Beijing, China: Impact of regional transport. *Environmental Pollution*, 2017, 231: 329-338.
- [43] Shen G F, Wei S Y, Zhang Y Y, et al. Emission and size distribution of particle-bound polycyclic aromatic hydrocarbons from residential wood combustion in rural China. *Biomass & Bioenergy*, 2013, 55: 141-147.
- [44] Lee J Y, Lane D A, Heo J B, et al. Quantification and seasonal pattern of atmospheric reaction products of gas phase PAHs in PM_{2.5}. *Atmospheric Environment*, 2012, 55: 17-25.
- [45] Zheng M, Fang M, Wang F, et al. Characterization of the solvent extractable organic compounds in PM_{2.5} aerosols in Hong Kong. *Atmospheric Environment*, 2000, 34(17): 2691-2702.
- [46] Hien P D, Bac V T, Tham H C, et al. Influence of meteorological conditions on PM_{2.5} and PM_{2.5-10} concentrations during the monsoon season in Hanoi, Vietnam. *Atmospheric Environment*, 2002, 36(21): 3473-3484.
- [47] Zhang Y, Zheng H, Zhang L, et al. Fine particle-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) at an urban site of Wuhan, central China: Characteristics, potential sources and cancer risks apportionment. *Environmental Pollution*, 2019, 246: 319-327.
- [48] Galarneau E. Source specificity and atmospheric processing of airborne PAHs: Implications for source apportionment. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(35): 8139-8149.
- [49] 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. *Organic Geochemistry*, 2002, 33(4): 489-515.
- [50] Simcik M F, Eisenreich S J, Lioy P J. Source apportionment and source/sink relationships of PAHs in the coastal atmosphere of Chicago and Lake Michigan. *Atmospheric Environment*, 1999, 33(30): 5071-5079.
- [51] Khan M F, Latif M T, Lim C H, et al. Seasonal effect and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5}. *Atmospheric Environment*, 2015, 106: 178-190.
- [52] Kavouras I G, Koutrakis P, Tsapakis M, et al. Source apportionment of urban particulate aliphatic and polynuclear aromatic hydrocarbons (PAHs) using multivariate methods. *Environmental Science & Technology*, 2001, 35(11): 2288-2294.
- [53] United States Environmental Protection Agency. Risk Assessment Guidance for Superfund. Volume I: Human Health Evaluation Manual (Part A). EPA/540/1-89/002. Saúde Pública: 1989: 35-52.
- [54] United States Environmental Protection Agency. Exposure Factors Handbook. Washington DC: United States Environmental Protection Agency, 1997.
- [55] Zhao Xiuge, Duan Xiaoli. Manual on Population Exposure Parameters in China (Adult Volume). Beijing: China Environment Press, 2014. [赵秀阁, 段小丽. 中国人群暴露参数手册(成人卷). 北京: 中国环境出版社, 2014.]
- [56] Duan Xiaoli. Outline of Parameters Manual of Chinese Population Exposure (Children Volume). Beijing: China Environment Press, 2016. [段小丽. 中国人群暴露参数手册(儿童卷)概要. 北京: 中国环境出版社, 2016.]
- [57] Jin Yinlong, Li Yonghong, Chang Junrui, et al. Atmospheric PAHs levels and health risk assessment in five cities of China. *Journal of Environment and Health*, 2011, 28(9): 758-761. [金银龙, 李永红, 常君瑞, 等. 我国五城市大气多环芳烃污染水平与健康风险评价. *环境与健康杂志*, 2011, 28(9): 758-761.]
- [58] Feng Lihong, Cui Sheng, Chen Yang, et al. Analysis of health risk and life expectancy loss of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in PM_{2.5} under heavy polluted weather. *Journal of Public Health and Preventive Medicine*, 2019,

- 30(4): 16-20. [冯利红, 崔生, 陈阳, 等. 重污染天气PM_{2.5}中多环芳烃健康风险及预期寿命损失分析. 公共卫生与预防医学, 2019, 30(4): 16-20.]
- [59] Zhang L L, Morisaki H, Wei Y J, et al. PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons and nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons inside and outside a primary school classroom in Beijing: Concentration, composition, and inhalation cancer risk. *Science of the Total Environment*, 2020, 705: 135840. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2019.135840.

Characteristics and health risk of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} in the typical urban and rural areas of the Fenwei Plain

CAI Ruiting¹, XIAO Shun¹, DONG Zhibao¹, CAO Junji², ZHANG Ningning², LIU Suixin², SHEN Zhenxing³, XU Hongmei³, TAO Yan⁴, LI Xingmin⁵, WANG Xin¹, WANG Yumeng¹

(1. School of Geography and Tourism, Shaanxi Normal University, Xi'an 710119, China; 2. Institute of Earth Environment, CAS, Xi'an 710061, China; 3. School of Energy and Power Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China; 4. College of Earth and Environmental Sciences, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China; 5. Meteorological Institute of Shaanxi Province, Xi'an 710014, China)

Abstract: In order to investigate the pollution characteristics and human health risk of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in heavy polluted weather in the typical urban and rural areas of the Fenwei Plain, PM_{2.5} samples were collected from Xi'an and Longxian in the winter of 2018-2019. The mass concentrations of 15 PAHs characterized by carcinogenicity, mutagenicity and teratogenicity in the samples were determined using gas chromatograph-mass spectrometer (GC-MS). The source of PAHs was analyzed by the diagnostic ratio and principal component method and the possible relation between PAHs mass concentrations and meteorological parameters was elaborated. In addition, human health risk caused by PAHs in PM_{2.5} was assessed through the equivalent carcinogenic concentration of benzo(a)pyrene (BaP) and incremental lifetime cancer risk (ILCR). The results showed that the average mass concentrations of PAHs in PM_{2.5} in heavy polluted weather in Xi'an and Longxian were 243.78 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and 609.39 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively, and 4-6 rings of PAHs had the highest proportion of the total. Moreover, PAHs concentrations had a significant negative correlation with atmospheric temperature, atmospheric pressure and wind speed, but irrelevant with relative humidity. Combustion source and automobile exhaust emissions were the main factors contributing to the high concentration of PAHs in Xi'an, while coal and biomass burning were the main factors contributing most to PAHs of Longxian. Health risk assessment results revealed that the carcinogenic risk caused by breathing during heavy polluted weather was higher in Longxian than that in Xi'an and the cancer risk for females was higher than that for males, and the cancer risk for adults was higher than that for children. In addition, the ILCR value of adults in both urban and rural areas exceeded the risk threshold recommended by EPA and had potential carcinogenic risks, while there was no obvious carcinogenic risk for children.

Keywords: PM_{2.5}; PAHs; heavy polluted weather; pollution characteristics; health risk; the Fenwei Plain