藏东南大气中多环芳烃的污染特征及来源分析

罗汉[1,2,3] 张强[1,3] 岳平[3] 奚立宗[2] 刘琴[4] 尹春[5] 王元兵[1] 秦豪君[6] 王琦[2] 李宝梓[2]

1 南京信息工程大学大气科学学院，南京 210044

2 甘肃省人工影响天气办公室，兰州 730020

3 兰州干旱气象研究所，兰州 730020

4 兰州大学资源环境学院，兰州 730020

5 甘肃省气象服务中心，兰州 730020

6 兰州中心气象台，甘肃 兰州 730020

摘要 为探究青藏高原东南部大气中多环芳烃（polycyclic aromatic hydrocarbons，PAHs）的污染、源及输送特征，利用鲁朗地区（94.73 °E，29.77 °N）总悬浮颗粒物（total suspended particles，TSP）和大气中的 14 种 PAHs 含量，结合同期气象环境数据进行了综合分析。结果表明，该地区 TSP 中 PAHs 和气相的 PAHs 质量浓度变化范围分别为 0.22~5.05 ng·m^{-3} 和 0.83~63.75 ng·m^{-3}，平均值分别为 2.13 ng·m^{-3} 和 11.33 ng·m^{-3}。薪柴和柴油的燃烧是污染的主要方式，汽油燃烧等其他排放为次要方式。PAHs 来自本地污染和远距离传输（long range transmission，LRT）共同的影响。本地污染在四季各个源地均不相同。冬春季本地污染大，源在东南及正南方，夏秋季受本地和外来输送共同作用，本地源在东南方且占比小，LRT 占比大。LRT 受西北气流、西风气流和西南气流三支气流影响，污染严重时西南气流占主导，西风气流次之，污染较轻时西风气流或西北气流占主导，西北气流所传输的污染最少。该研究结果加深了对藏东南区域 PAHs 变化、输送特征的认识，为该区域大气污染治理提供了理论依据。

关键词 鲁朗；多环芳烃；特征；源分析；传输

文章编号 **中图分类号** X511 文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2100.20000

Pollution Characteristics and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the atmosphere of Southeast Tibet

LUO Han[1,2,3], ZHANG Qiang[1,3], YUE Ping[3], XI LiZong[2], LIU Qin[4], Yin Chun[5], WANG YuanBing[1], QIN HaoJun[6], WANG Qi[2], and LI BaoZi[2]

1 *College of Atmospheric Science, Nanjing University of Information Science & Technology*, *Nanjing* 210044

收稿日期 2022-08-23；**网络预出版日期**

作者简介 罗汉，主要从事大气物理与大气环境相关研究。E-mail: luohan552200@126.com

通讯作者 张强，主要从事陆气相互作用研究。E-mail: zhangqiang@cma.gov.cn

资助项目 第二次青藏高原综合科学考察项目 2019QZKK0104，国家自然科学基金重点项目 42230611，甘肃省自然科学基金青年基金 22JR5RA754，甘肃省气象局科研项目 Ms2022-21

Funded by The Second Tibetan Plateau Comprehensive Scientific Expedition (Grant 2019QZKK0104), Key Program of National Natural Science Foundation of China(Grant 42230611), Youth Fund of Natural Science Foundation of Gansu Province (Grant 22JR5RA754), and Scientific research project of Gansu Meteorological Bureau(Grant Ms2022-21)

2 *GanSu Weather Modification Office*, *Lanzhou* 730020

3 *Lanzhou Institute of Arid Meteorology*, *Lanzhou* 730020

4 *College of Earth and Environmental Sciences, Lanzhou University*, *Lanzhou* 730000

5 *Gansu Meteorological Service Centre*, *Lanzhou* 730020

6 *Lanzhou Central Meteorological Observatory*, *Lanzhou* 730020

Abstract In order to explore the pollution, source and transport characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the atmosphere of the southeast of Qinghai Tibet Plateau， a comprehensive analysis was carried out by using the 14 kinds of PAHs from the total suspended particulate matter (TSP) and the atmospheric gaseous state in Lulang area（94.73 °E, 29.77 °N）, and combined with the meteorological environment data of the same period. The results show that the variation ranges of PAHs mass concentration in TSP and in gas phase are 0.22~5.05 ng·m^{-3} and 0.83~63.75 ng·m^{-3}, respectively, and the average values are 2.13 ng·m^{-3} and 11.33 ng·m^{-3}, respectively. The combustion of firewood and diesel is the main mode of pollution, while other emissions such as combustion of gasoline are secondary. PAHs come from local pollution and long range transmission（LRT）. Local pollution varies from source to source in four seasons. In winter and spring, local pollution is serious, and the source is in the southeast and due south. In summer and autumn, pollution mainly includes local and LRT. The local source is mainly in the southeast, but LRT is dominant. The LRT is affected by the northwest air flow, the westerly air flow and the southwest air flow. When the pollution is serious, the dominant air flow is the southwest air flow, and the secondary dominant air flow is the westerly air flow. When the pollution is light, the dominant air flow is the westerly air flow or the northwest air flow, and the pollution transmitted by the northwest air flow is the least. The results of this study have deepened the understanding of the changes and transport characteristics of PAHs in Southeast Tibet, and provide a theoretical basis for the control of air pollution in this region and the improvement of plateau air quality.

Keywords Lulang；PAHs；Characteristics；Source analysis；Transportation

1 引 言

青藏高原通常被喻为地球的第三极，具有重要的气候和环境影响（姜大膀等，2004；吴国雄等，2005；黄荣辉等，2006；丁一汇和张莉，2008），因海拔较高而所受外界影响小，大气环境相对洁净，但周边区域大气污染物可通过远距离输送（LRT）进入青藏高原，对脆弱的生态环境带来影响(康世昌等，2019，2020)，PAHs 就是主要的污染物之一(Sheng et al., 2013；Wang et al., 2015)。

PAHs 是一类广泛存在于大气环境中的持久性有机污染物，主要通过化石和生物质的不完全燃烧释放到大气中（Ravindra et al., 2015），并以气相和固相的形式共同存在于环境中(Harner and Bidleman，1998)。

虽然其在环境中微量存在，但由于特殊且稳定的化学结构，使其在大气环境中不断累积，具有强烈的致畸、致癌和致突变作用(Menzie et al., 1992；Kim et al., 2013)，其与大气氧化剂反应形成毒化衍生物等（Clergéal., 2019），对人体危害更大(Grote et al., 2005)。

有机污染物的空间分布主要受三个因素的影响。其一，与较高水平的本地源排放密切相关，主要出现在城市和农业场所等(Harner et al., 2004；Ding et al., 2022)；其二，污染物通过大气环流进行远距离输送，导致本地源排放少的区域也出现污染(Aulagnier and Poissant，2005；von et al., 2010；Wu et al., 2023)；其三，在全球变暖的气候背景下，沉积在冰川、冻土等环境中的污染物可能重新挥发到大气中，成为污染的二次来源 (Lohmann et al., 2007； Ma et al., 2011)。喜马拉雅山脉平均海拔达到 7000 m 以上，污染物可利用山区对流、锋面或地形抬升等方式（Liang et al., 2004；Ding et al., 2015），跨越喜马拉雅山脉到达西藏地区（Zhang et al., 2017；Gong and Wang，2021）。研究表明，高原中南部土壤中的浓度主要受本地污染源的影响，多环芳烃的浓度随着距污染源距离的增加呈对数下降（Tao et al., 2011；Yuan et al., 2015），特别是拉萨地区，本地的交通排放和烧香是拉萨多环芳烃的主要来源（Gong et al., 2011）。而藏东南位于印度季风的下风处（Lu et al., 2019），其土壤中多环芳烃含量明显高于西风区控制的高原中部和西部（Wang et al. 2014）。通过研究珠穆朗玛峰冰芯中多环芳烃浓度的变化，发现其与印度历史上的经济发展密切相关，当印度进入快速工业化时期时，在珠穆朗玛峰冰芯中发现多环芳烃急剧增加，这暗示了多环芳烃向藏东南地区大气输送的可能机制是印度、尼泊尔等排放多环芳烃和其他污染物通过季风输送而来（Wang et al., 2008），而污染物以气溶胶为介质通过大气环流进行远距离运输(Cong et al., 2007)。由于温度随着海拔的升高而降低，在海拔越高的地方，低温环境导致多环芳烃的沉积越多，被称为“高山冷阱”效应(Lin et al., 2017)，挥发性较大的低环多环芳烃通常以气相形式存在，更容易通过远距离输送传播到偏远地区，喜马拉雅山通过“高山冷阱”效应，将低环多环芳烃“捕捉”在土壤中，因此挥发性较强的三环多环芳烃的丰度与海拔高度呈正相关，而挥发性较弱的多环芳烃与海拔高度无关（四环）或呈负相关（五环和六环）（He et al., 2015；Bi et al., 2016），在山区土壤中相对大量的低环多环芳烃的积累也是污染通过大气远距离传输的证据（Zhu et al., 2014），西藏周边地区包括印度、尼泊尔等发展中国家粗放工业多、宗教烧香活动盛行，多环芳烃排放大（Agarwal,2009；Pokhrel et al., 2018），这些排放对西藏地区特别是藏东南地区有何影响，藏东南地区多环芳烃属于本地排放还是远距离传输而来，准确回答该问题这对我们研究高原地区污染物的源、汇特征以及评估该地区的污染物变化和传输模式非常重要。

鲁朗地区处于青藏高原东南部，对该区域的 PAHs 污染特征、源解析以及传输路径的分析还较少。本文针对该地区固相和气相 PAHs 分布和演变规律进行研究，并对来源和传输路径等进行解析，有利于更全面地认识 PAHs 的变化特征，准确定位其来源，揭示控制持久性有机污染物时间趋势的可能因素，对该区域大气污染治理提供理论依据。

2 材料与方法

2.1 采样点

采样点位于中科院藏东南高山环境综合观测研究站（94.73 °E，29.77 °N，海拔 3326 m），该站位于西藏自治区鲁朗镇北 5 km 处，采样仪器架设在站内空地，周边无人为活动影响。

2.2 样品采集

采样时间为 2008 年 11 月—2011 年 9 月，一个样品收集周期为 14 天并隔天采样。采样器流量约 100L·min^{-1}，每个样品采集的大气体积为 500-700m^3，Thermo 公司生产的 GPS-1 大气主动采样器进行大气采样。采样头由两个模块串联组成，其中上面部分用于放置玻璃纤维滤膜的铁丝网架，下面部分为放置聚氨酯泡沫的玻璃杯。玻璃纤维滤膜（Whatman 公司生产）用于采集大气总悬浮颗粒物，直径 94mm，厚度 1.6mm，孔径 0.4 μm。聚氨酯泡沫用于采集气态有机物，直径 6cm，高度 7.5cm，密度为 0.02g·m^{-3}。采样前，为了消除采样介质污染，玻璃纤维滤膜在 450°C 灼烧 5 h 后包裹在同样被灼烧过的铝箔内；聚氨酯泡沫用二氯甲烷索氏抽提 24 h，并经真空干燥后用铝箔包裹置于锡铁罐中密封。采样后，玻璃纤维滤膜和聚氨酯泡沫同样用预先处理过的铝箔包裹，封于锡铁罐中寄回实验室，保存于-20 °C 的环境中待分析。共收集固相样品 56 个和气相样品 62 个。

2.3 样品处理与分析

大气总悬浮颗粒物浓度使用重量法进行测定。PAHs 样品分析使用气相色谱-质谱仪，进样口温度为 310 °C。传输线温度为 300 °C。色谱升温程序为：50 °C 保持 2 min，之后以 20 °C·min^{-1} 升温至 180 °C，以 3 °C·min^{-1} 升温至 250 °C，以 2 °C·min^{-1} 升温至 300 °C 并保持 10 min，以 10 °C·min^{-1} 升温至 310 °C 并保持 5 min。载气为氦气，流量为 1 ml·min^{-1}。质谱离子源：电子轰击源（EI）。质量分离器为离子阱。颗粒物样品预处理方法和 PAHs 分析方法详见文献(Liu et al., 2013；Sheng et al., 2013；Wang et al., 2015)。由于煤或生物质的燃烧将主要排放 2~4 环分子量的多环芳烃，而 5~6 环多环芳烃主要与交通相关的排放有关（Liu et al., 2012；Shen et al., 2012），并且 2~3 环多环芳烃易于挥发，5~6 环多环芳烃易于沉积（Hong et al., 2020），因此本文定义 2、3 环为低分子环、4 环为中分子环、5、6 环为高分子环进行讨论。

2.4 质量控制

每批样品添加膜空白或过程空白一个，样品在超声前都加入氘代 PAHs：芘-D10 和苝-D12 作回收率指示物，加标空白的回收率芘-D10 为 65-105%之间，苝-D12 为 85-120%之间。样品在上机前都加入一定量的六甲基苯做最后定量分析（Wang et al., 2015）。

2.5 气象资料

研究采用的气象资料来源于观测站内的气象观测数据，数据时间为 2008 年 11 月—2011 年 9 月，包含的气象要素为温度、湿度、降水、风向、风速等。

2.6 后向轨迹频率

为探索多环芳烃的潜在来源，使用气团轨迹的后向外推。选取地点(94.73°E，29.77°N)为轨迹起点。使用美国国家海洋和大气管理局（National Oceanic and Atmospheric Administration，NOAA）开发的 HYSPLIT 模型以及 GDAS 全球再分析资料计算了从轨迹起点地面以上 500 米开始的 12 天后向轨迹频

率，物理意义和模型使用详见文献（Stein et al., 2015；Rolph et al., 2017）。

3 结果和讨论

3.1 PAHs 浓度的季节分布特征

从 TSP 中 PAHs 质量浓度（表 1）可以看到，PAHs 质量变化范围为 0.22~5.05 ng·m^{-3}，平均值 2.13 ng·m^{-3}，略高于鲁朗 2008 年 7 月—2009 年 7 月 PAHs 含量（0.06~2.53 ng·m^{-3}）（Chen et al., 2014）和祁连山区（0.06~1.7ng·m^{-3}）（Wu et al., 2023），但低于拉萨（6.9~21.1 ng·m^{-3}）（Ma et al., 2013）。其中，2 环的质量浓度非常低（四季均小于 1%），3 环 Phe 的占比最高（16.73~27.25%），且夏秋季质量分数要高于春冬季，而 5~6 环正好相反，夏秋季质量分数低于春冬季。固相 PAHs 在传输过程中，高分子环随着雨水冲刷等作用沉积在土壤中，而挥发性较大的低分子 PAHs 通常可以由固相转为气相形式存在，更容易通过远距离输送到达较远地区（Zhu et al., 2014），3 环主要是由薪柴、秸秆和畜粪等燃烧生产，夏季本地取暖需求低于冬季，而夏秋季印度季风强，暗示了 3 环由印度季风远距离输送而来，导致了 3 环夏高冬低。

表 1　TSP 中 PAHs 质量浓度

Table 1　Mass concentration of PAHs in TSP

多环芳烃	PAHs	春/pg·m^{-3}	质量分数/%	夏/pg·m^{-3}	质量分数/%	秋/pg·m^{-3}	质量分数/%	冬/pg·m^{-3}	质量分数/%
苊烯	Acel	4.12	0.19	3	0.22	6.18	0.22	4.46	0.19
苊	Ace	8.33	0.38	4.94	0.37	12.02	0.43	9.99	0.43
菲	Phe	419.24	19	367.47	27.25	701.82	25.05	391.57	16.73
蒽	Ant	106.59	4.83	64.4	4.78	124.09	4.43	64.79	2.77
荧蒽	Fla	164.53	7.46	151.67	11.25	320.73	11.45	199.57	8.53
芘	Pyr	254.59	11.54	180.93	13.41	399.82	14.27	298.14	12.74
苯并(a)蒽	BaA	111.35	5.05	64.87	4.81	150.55	5.37	122.57	5.24
䓛	Chr	261.29	11.85	180.07	13.35	455	16.24	360.5	15.41
苯并(b)荧蒽	BbF	166.88	7.57	69	5.12	119.45	4.2	139.72	5.97
苯并(k)荧蒽	BkF	207.56	9.41	82.93	6.15	153.45	5.48	221.71	9.47
苯并(a)芘	BaP	160.25	7.26	53.2	3.95	121	4.32	186.64	7.98
茚并(1,2,3-cd)芘	IcdP	130.25	5.9	49.07	3.64	75.55	2.7	108.79	4.65
二苯并(a,h)蒽	DahA	19.88	0.9	7.33	0.54	13.82	0.49	15.43	0.66
苯并(ghi)苝	BghiP	191	8.66	69.53	5.16	148	5.28	216.14	9.24
∑PAHs		2205.85	100	1348.4	100	2801.47	100	2340.03	100

从气相 PAHs 质量浓度（表 2）可以看到，变化范围为 0.83~63.75 ng·m^{-3}，平均值为 11.33 ng·m^{-3}，高于祁连山区（0.49~2.38ng·m^{-3}）（Wu et al., 2023），低于拉萨（37~86.5ng·m^{-3}）（Ma et al., 2013）。气相 PAHs 为 TSP 中 PAHs 的 5.3 倍，按季节变化，夏秋季气相是固相的 5.3 和 5.8 倍，高于冬春季的 1.7 和 2.2 倍。2 环的质量浓度都同固相一样非常低（最高为冬季 1.5%），3 环 Phe 的占比最高（48.57~64.17%），且夏秋季质量（62.65%）分数要远高于春冬季（50.42%），而 5~6 环正好相反，夏秋季质量分数（0.3%）低于春冬季（1.0%）。四季气相 3 环总浓度是固相的 10.3 倍，而夏秋季气相 3 环浓度是固相的 14.1 倍。造成夏秋季气相浓度高于固相的原因推测有三方面因素，第一，夏季高温有利于土壤、冰川中沉积的 PAHs 释放，造成气相 PAHs 特别是低分子环的增多；第二，高温有利于 TSP 中的固相 PAHs 转化为气相；第三，夏季印度季风的远距离输送，使得低分子环的显著增多。

表 2　气相 PAHs 质量浓度

Table 2　Mass concentration of gaseous PAHs

多环芳烃	PAHs	春/pg·m^{-3}	质量分数/%	夏/pg·m^{-3}	质量分数/%	秋/pg·m^{-3}	质量分数/%	冬/pg·m^{-3}	质量分数/%
苊烯	Acel	8.45	0.18	2.36	0.03	15.36	0.1	53.62	1.39
苊	Ace	3.87	0.08	1.65	0.02	7	0.04	4.28	0.11
菲	Phe	2343	48.57	4404.33	61.13	10329.23	64.17	2019.06	52.26
蒽	Ant	607.44	12.59	958.73	13.31	2011.62	12.5	318.28	8.24
荧蒽	Fla	869.25	18.02	964.27	13.38	1913.69	11.89	647.06	16.75
芘	Pyr	686.25	14.23	688.53	9.56	1414.31	8.79	591.22	15.3
苯并(a)蒽	BaA	51.88	1.08	36.11	0.5	63.92	0.4	34	0.88
䓛	Chr	210.5	4.36	127.2	1.77	294.46	1.83	153	3.96
苯并(b)荧蒽	BbF	7.63	0.16	3.12	0.04	4.75	0.03	3.13	0.08
苯并(k)荧蒽	BkF	12.13	0.25	9.4	0.13	15.97	0.1	10.94	0.28
苯并(a)芘	BaP	11.56	0.24	4.33	0.06	10.99	0.07	12.78	0.33
茚并(1,2,3-cd)芘	IcdP	2.75	0.06	1	0.01	7.6	0.05	8.2	0.21
二苯并(a,h)蒽	DahA	-	0	-	0	-	0	-	0
苯并(ghi)苝	BghiP	9	0.19	3.62	0.05	7.57	0.05	7.94	0.21
∑PAHs		4823.71	100	7204.66	100	16096.47	100	3863.5	100

固相和气相PAHs总浓度平均5.19 ng·m^{-3}，主要由3环和4环组成，分别贡献61.87%和30.81%，优势单体为Phe(51.44%)。固相PAHs四季均明显低于气相，尤其固相低分子环质量明显低于气相，而固相中高分子环质量明显大于气相，低分子环不稳定而易以气态形式存在，中分子环为半挥发，多以气固两种形态存在，且易于长距离输送，高分子环因分子量大而多以固态形式吸附在其它颗粒物上，在长距离传输过程中具有较大的沉降潜能(唐志刚等，2022)。因此，可用（4环）/(高分子环)进行地理溯源（Halsall et al., 2001），比值越高，污染距排放源越远，越趋于外来输送，远距离输送比值可达9. 5～28. 7（曹蓉等，2019）。本研究中，固相和气相的比值分别为1.3和64.3，表明污染来自本地排放和长距离输送共同作用。

3.2　两相PAHs的环数分布

由颗粒物中环数分布(图 1)看出，无论冬季还是夏季，2 环的比例(质量分数)最低，均小于 1%，4 环的比例最高，达到 42.8%和 41.9%。高分子环冬季明显高于夏季，鲁朗地区夏季平均气温为 12.5 °C，冬季平均气温为-2.7 °C，因此冬季大气稳定度较夏季低，污染的扩散条件本身弱于夏季；高分子环主要属于机动车尾气排放(Harrison et al., 1996)，冬季机动车低温驱动较容易导致燃烧不充分而产生高分子环PAHs，并且冬季燃烧取暖需求更大；因此推测这两方面原因共同导致了冬季高分子环的占比增多。

由气相的环数分布(图2)可以看出，夏季气相PAHs基本由3环（74.48%）和4环（25.22%）构成，2、5和6环均占比少。冬季类似于夏季，3环（60.62%）和4环（36.96%）占比大，其他很少。

整体来看，TSP中高分子环的占比要远大于气相，且冬季大于夏季，说明不论环境温度高低，高分子环均附着于TSP中，不易转变为气相；TSP中4环大于3环，而气相中3环大于4环，说明不论环境温度高低，气相的3、4环也不易附着于TSP中。根据之前所述，气相形式更容易通过远距离输送到达较远地区，固相形式更倾向于本地污染，夏秋季气相3环浓度是固相的14.1倍，冬春季气相3环浓度是固相的5.4倍，因此判断夏秋季LRT的贡献要远大于本地排放。

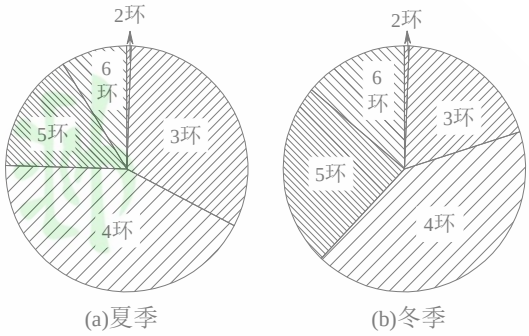


图 1　冬夏季颗粒物中环数

Fig.1　Ring number of PAHs in particular phase in winter and summer

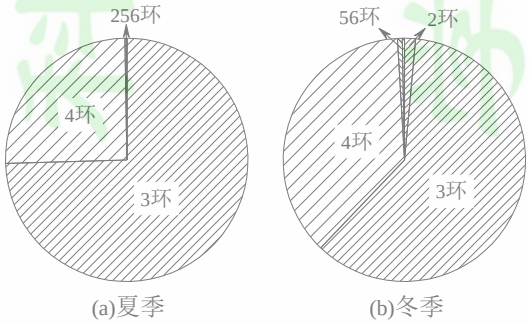
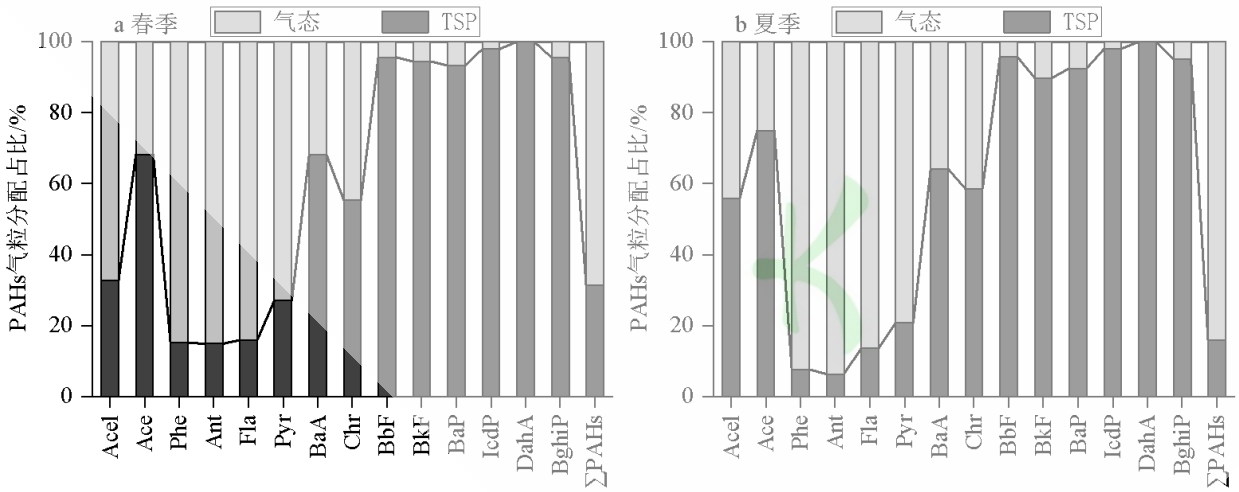


图 2　冬夏季气相环数

Fig.2　Ring number of gaseous-phase PAHs in winter and summer

3.3　气粒占比

为探究不同季节大气中气粒形态PAHs的族谱特征差异成因，对不同季节PAHs不同组分的气粒分配（图3）进行比较，结果表明，四季气相PAHs整体的占比大于TSP相；冬春季采暖期TSP相的占比大于夏秋季， 3环在冬春季的TSP相占比较夏秋季大，可能是冬季供暖木材、薪柴、畜粪等生物质燃烧增加，低分子环排放增加导致，另一方面冬季温度低，3环相对稳定，易于在空中滞留。此外与冬季相比，夏季温度高致使低分子环不稳定(Harner et al., 2013)，易从TSP相转为气相，可能是气相中低环PAHs浓度占比增加的一个原因。



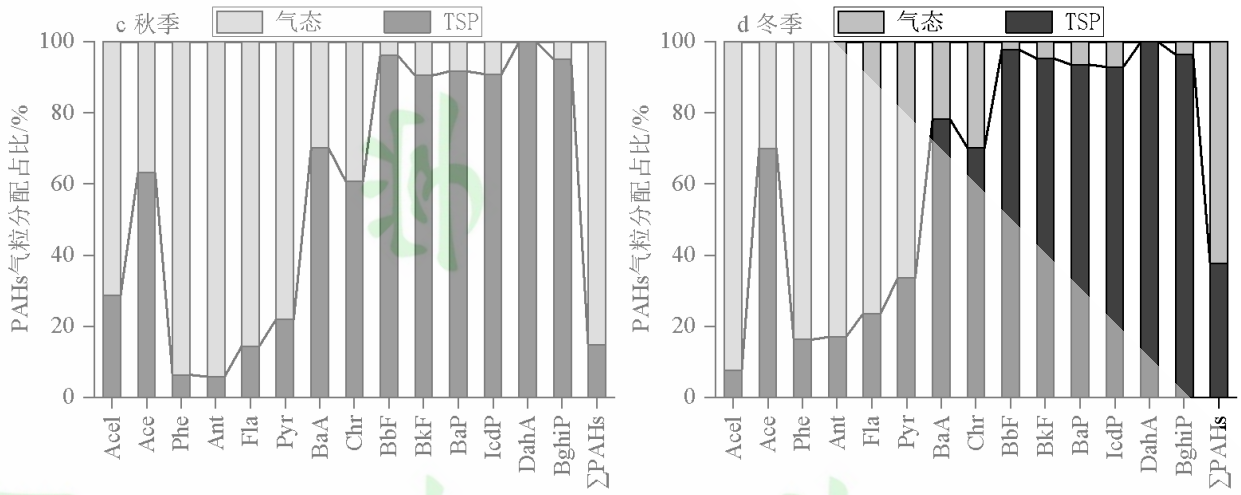


图3　四季大气各PAH组分气粒分配

Fig.3　The ratios of gaseous to particular phase PAHs in four seasons

3.4　污染源解析

不同污染源所产生的多环芳烃单体的值不同，因此可利用各单体之间的比值规律定性判断 PAHs 来源（Guillon et al., 2013）。本文根据已有研究，利用 Ant/(Ant + Phe)、BaA/(BaA + Chr)、IcdP/(IcdP + BghiP)、BaP/BghiP、BaP/ IcdP、BaA/Chr、BbF/BkF 等比值判断污染来源，各比值结果所代表污染来源见表 3。

表3　特征比及源

Table 3　Characteristic ratio and sources

源	Ant/(Ant + Phe)	BaA/(BaA + Chr)	IcdP/(IcdP + BghiP)	BaP/BghiP	BaP/ IcdP	BaA/Chr	BbF/BkF
木材	0.11~0.25(李英红等，2015)	0.41~0.57(李英红等，2015)					
秸秆	0.12~0.24(李英红等，2015)	0.38~0.52(李英红等，2015)					
焦化厂		0.42~0.62(李英红等，2015)					
柴油燃烧			0.23~0.63(李英红等，2015)	0.3~0.4 (Bourotte et al., 2005)	~1.0(Menichini et al., 1999)	0.2~0.4(Simcik et al., 1999)	>0.5(Park et al., 2002)
汽油燃烧			~0.18(Kavouras et al., 2001)	0.5~0.6(Bourotte et al., 2008)	~0.4(Menichini et al., 1999)	0.3~1.2(Simcik et al., 1999)	1.1~1.5(Dickhut et al., 2000)
冶炼				0.9~6.6(Akyüz and Çabuk，2008)		1.0~1.2(Gschwend and Hites，1981)	3.5~3.9(Masclet et al.,1987)
煤炭						0.5~0.7(Gschwend and Hites，1981)	2.5~2.9(Masclet et al.,1987)

为方便讨论，将夏秋季定义为暖季，将冬春季定义为冷季。计算得到 TSP 相冷季、TSP 相暖季、气相冷季、气相暖季共四种的比值数值在表 4 中给出。可以看出，Ant/(Ant + Phe)值为 0.15~0.17，因此判断木材和秸秆燃烧在冷暖季均出现，这是因为燃烧畜粪、秸秆和木材是藏区较为常用的取暖方式，而林芝地区的木材产量很大，是较为常见的取暖工具；而通过 IcdP/(IcdP + BghiP)值为 0.36~0.51 判断柴油燃烧同样在冷暖季出现，柴油燃烧可能是藏区海拔高含氧量低，导致柴油不完全燃烧造成污染。通过

BaA/(BaA + Chr)值为 0.19~0.27、BaA/Chr 值为 0.24~0.37 和 BbF/BkF 值为 0.31~0.77 知道焦化厂和煤炭均不在四种类型中，西藏自身煤炭蕴藏量少，且质量差，运输线长，从内地运煤炭运费占的比重太大，无论直接或加工转换后作民用燃料在经济上都不合算，因此在西藏煤炭工业很少。而 BaA/Chr 值看出汽油燃烧在 TSP 相冷暖季出现，说明地区还是有一定的交通污染。气相冷暖季 BaP/BghiP 比值为 1.34~1.45 在冶炼污染范围内，但根据之前的分析，没有焦化厂和煤炭燃烧，因此推测冶炼污染可能是 LRT 导致。高原东南侧区域全年均有偏南风存在(王同美等，2008)，推断 LRT 来自高原西部或南部。

表 4　鲁朗地区冷暖季特征比

Table 4　Diagnostic rations during cold and warm season in Lulang

	Ant/(Ant + Phe)	BaA/(BaA + Chr)	IcdP/(IcdP + BghiP)	BaP/BghiP	BaP/ IcdP	BaA/Chr	BbF/BkF
TSP相冷季	0.16	0.27	0.37	0.85	1.44	0.37	0.72
TSP相暖季	0.15	0.25	0.36	0.81	1.36	0.34	0.77
气相冷季	0.17	0.19	0.4	1.45	2.11	0.24	0.5
气相暖季	0.17	0.19	0.51	1.34	1.30	0.24	0.31

3.5　浓度与风速风向关系

图 4 和图 5 分别是固相和气相 PAHs 浓度与风速风向关系图。可以看出，鲁朗地区主导风向为东南偏南（120~180°）。对春季来说，固相和气相的污染源不同，固相在风速较小时浓度低于风速大时的浓度，说明固相的污染源在东南方向偏远的地方，而气相浓度最大值在风速适中时，气相污染源在东南方向偏近的地方。对于夏季，固相和气相浓度最大值均在 130 度左右，且风速越大浓度越大，推测此时的污染源包括了本地和 LRT 共同造成的污染，夏季没有取暖需求，但此时印度洋夏季风最强，而上节推测冶炼污染可能是 LRT 导致，因此判断夏季的污染主要包括了本地、印度半岛和孟加拉湾区域的工业污染，LRT 由印度洋夏季风和西风共同作用进行输送。对于秋季来说，TSP 相和气相污染源截然相反，TSP 相的源在正南偏近和东南偏远，而气相在正南偏远和东南偏近的位置，两相的浓度相比其余三季都是最大的，尤以气相最大，说明秋季的污染同样受本地和 LRT 共同影响。冬季两相污染源都在正南方。

一般地，夏秋季温度较秋冬季高，相应对流边界层也高，污染易扩散稀释，夏秋季太阳辐射的增加也可加速 PAHs 与大气中的羟基、硝基等活性自由基发生反应被降解（Nadal et al., 2006；Ali-Taleshi et al., 2021），两者共同作用可导致 PAHs 浓度降低（Hong et al., 2021）。但本研究中正好相反，夏秋季两相 PAHs 是冬春季的 2.2 倍。这与印度洋夏季风强度对应，印度洋夏季风夏秋季强，冬春季弱，因此，鲁朗地区的污染由本地和 LRT 共同影响。距离高原最近的尼泊尔土壤中 Σ_{15}PAHs 的值达到了 17.1~6219 $ng \cdot g^{-1}$(Pokhrel et al., 2018)，远高于藏东南色季拉山区域 Σ_{16}PAHs 的 99.3~1984 $ng \cdot g^{-1}$(罗东霞等，2016)，从侧面印证了 LRT 的结果。LRT 由印度洋季风和西风共同作用，输送强度夏秋季强，冬春季弱，远距离污染源可能是印度或孟加拉湾区域的排放污染。

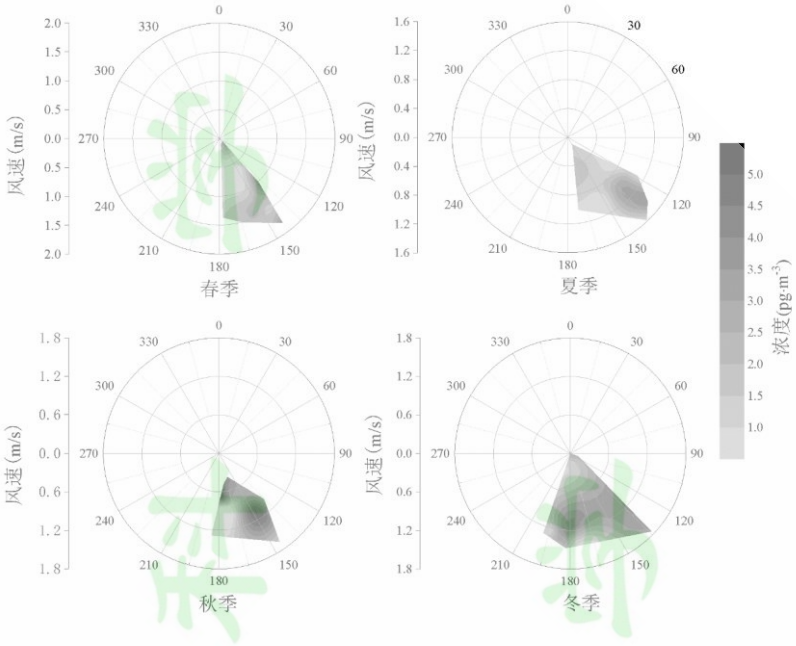


图 4　TSP 相 PAHs 浓度与风速风向关系图

Fig.4　The relation diagrams of the concentration of PAHs in TSP with wind speed and direction during spring, summer, autumn and winter

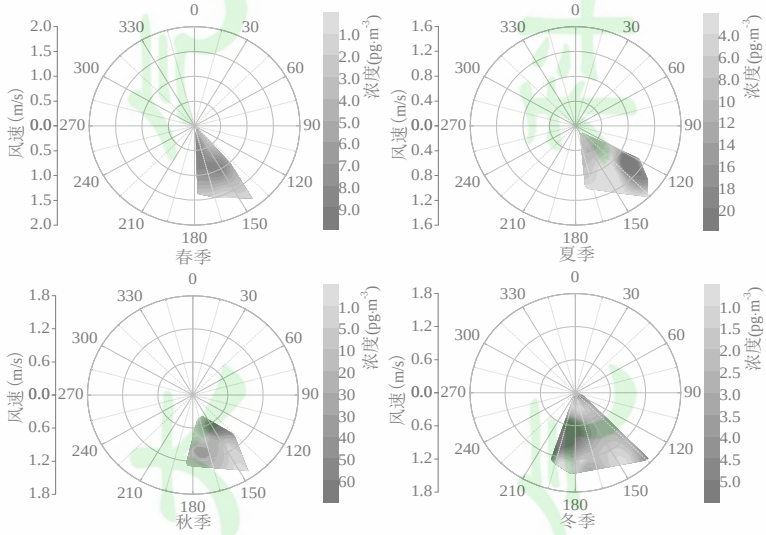


图 5 气相 PAHs 浓度与风速风向关系图

Fig.5　The relation diagrams of the concentration of PAHs in gaseous with wind speed and direction during spring, summer, autumn and winter

3.6　后向轨迹频率分析

为确认 PAHs 的 LRT 源，挑选固相最大（2009 年 10 月 26 日）和最小（2009 年 8 月 17 日）以及气相最大（2010 年 9 月 13 日）和最小（2009 年 1 月 15 日）四个日期，做 13 天（每个样品的采样周期在 2 周左右）后向轨迹和频率图（分别为 6a、b、c 和 d）。总体看来，不论污染大小，其源包括本地和 LRT，本地源基本都在观测点南部或偏南部的位置，这与之前的研究结果完全吻合，但 LRT 的源却差别很大。由图 6(a)知，固相最大时其源最远在印度半岛中西部，通过西风气流（频率小）和西南气流（频率大）

共同作用，穿越尼泊尔东南部、不丹后，到达鲁朗。由图 6(b)知，固相最小时其源主要分为四个部分，第一部分最远在昆仑山中部；第二部分为拉萨和日喀则地区；第三部分为印度最东部区域；第四部分为四川甘孜经过云南北部和缅甸北部最终到达鲁朗。由图 6(c)知，气相最大时其源主要分为两支，一支受西风气流影响，穿越日喀则、拉萨而来，占比小；另一支由西南气流主导，由孟加拉国东北部，穿过印度东部、不丹西部到达鲁朗，占比大。由图 6(d)知，气相最小时主要以西风气流主导，其源有三支，第一支为阿里地区而来，占比小；第二支由印度中北部，经过尼泊尔西北部，后翻越喜马拉雅山后与第一支汇合，占比较第一支大；第三支由巴基斯坦南部发源，经过印度中北部，经过尼泊尔中部后，穿越日喀则、拉萨和不丹等地，到达鲁朗，占比最大。

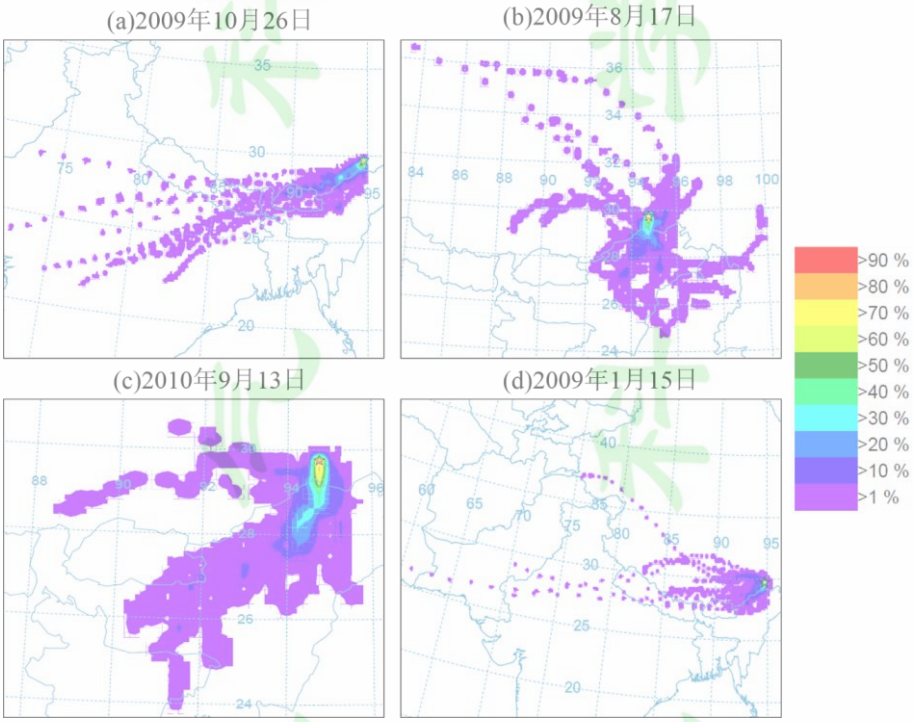


图 6　后向轨迹频率

Fig.6　The Backward of trajectory frequency

总的来说，鲁朗地区的污染包括了本地排放和 LRT 两者共同作用，当污染严重时，主导气流为西南气流，次主导气流为西风气流，源最远为印度，包含了印度中部和北部大片地区；当污染较轻时，其主导气流为西风气流或西北气流，污染源只包含印度中部较少的地区；西北气流所传输的污染最小；最后，不论污染大小，近源为鲁朗本地，远源基本都包含了日喀则、拉萨等地区，因此，污染主要是鲁朗本地和 LRT 所致，而日喀则、拉萨等西藏其他地区传输少。

4　结 论

本文利用 3 年鲁朗地区固相和气相的 14 种 PAHs 含量，并结合同期气象环境数据进行综合分析，探究了青藏高原东南部大气中多环芳烃（PAHs）的污染特征及来源，结果表明：鲁朗地区固相和气相 PAHs 质量变化范围分别为 0.22~5.05 ng·m^{-3} 和 0.83~63.75 ng·m^{-3}，两相 PAHs 总浓度平均为 5.19 ng·m^{-3}，主要

由 3 环和 4 环组成。本地污染源中，薪柴、畜粪及柴油燃烧为主要方式，交通等为次要方式。PAHs 来自本地污染源和 LRT 共同的影响。

本地污染源各个季节均不相同。冬春季本地污染大，源在东南及正南方，夏秋季受本地和外来输送共同作用，本地源在东南方，占比小，LRT 占比大。LRT 受到西北气流、西风气流和西南气流三支气流影响，当污染严重时，主导气流为西南气流，次主导气流为西风气流，当污染较轻时，其主导气流为西风气流或西北气流，西北气流所传输的污染最小。本文首次对藏东南区域本地污染和 LRT 进行精确分类，研究结果加深了对藏东南区域 PAHs 变化、输送特征的认识，为该区域大气污染治理、改善高原空气质量提供理论依据。在全球变暖的气候背景下，沉积在冰川、冻土等环境中的 PAHs 可能重新挥发到大气中，成为污染的二次来源，而温度、湿度与辐射的对 PAHs 的影响以及 PAHs 的气—固转化等也增加了对 PAHs 研究的难度，后续我们将研究藏东南地区土壤中 PAHs 的特点，聚焦于 PAHs 的地气交换以及 PAHs 的光解反应等，更深入地分析青藏高原 PAHs 污染特征和规律。

致谢 感谢两位审稿专家以及编辑老师为本文工作提供了建设性的建议和帮助，本文 PAHs 数据（联系人：王小萍）和气象资料来源于“国家青藏高原科学数据中心”(http://data.tpdc.ac.cn[2022-07-01])，在此一并致以诚挚的感谢！

参考文献（References）

Agarwal T. 2009. Concentration level, pattern and toxic potential of PAHs in traffic soil of Delhi, India[J]. Journal of Hazardous Materials, 171(1-3): 894-900. doi:10.1016/j.jhazmat.2009.06.081

Akyüz M, Çabuk H. 2008. Particle-associated polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmospheric environment of Zonguldak, Turkey[J]. Science of the Total Environment, 405(1-3): 62-70. doi:10.1016/j.scitotenv.2008.07.026

Ali-Taleshi M S, Moeinaddini M, Bakhtiari A R, et al. 2021. A one-year monitoring of spatiotemporal variations of PM2. 5-bound PAHs in Tehran, Iran: source apportionment, local and regional sources origins and source-specific cancer risk assessment[J]. Environmental Pollution, 274: 115883. doi:10.1016/j.envpol.2020.115883.

Aulagnier F, Poissant L. 2005. Some pesticides occurrence in air and precipitation in Québec, Canada[J]. Environmental science & technology, 39(9): 2960-2967. doi:10.1021/es048361s

Bi X, Luo W, Gao J, et al. 2016. Polycyclic aromatic hydrocarbons in soils from the Central-Himalaya region: Distribution, sources, and risks to humans and wildlife[J]. Science of the Total Environment, 556: 12-22. doi:10.1016/j.scitotenv.2016.03.006

Bourotte C, Forti M C, Taniguchi S, et al. 2005. A wintertime study of PAHs in fine and coarse aerosols in São Paulo city, Brazil[J]. Atmospheric Environment, 39(21): 3799-3811. doi:10.1016/j.atmosenv.2005.02.054

曹蓉, 张海军, 耿柠波, 等. 2019. 雾霾期北京大气中多环芳烃污染特征及暴露风险评估[J]. 生态毒理学报, 14(5): 114-122. Cao Rong, Zhang HaiJun, Geng NingBo, et al. 2019. Haze influenced the concentration, profile and human exposure

effects of atmospheric PAHs in urban area of Beijing[J]. Asian Joumal of Ecotoxicology (in Chinese), 14(5): 114-122. doi:10.7524/AJE.1673-5897.20180601001

Chen Y, Cao J, Zhao J, et al. n-Alkanes and polycyclic aromatic hydrocarbons in total suspended particulates from the southeastern Tibetan Plateau: concentrations, seasonal variations, and sources[J]. Science of the total environment, 2014, 470: 9-18. doi:10.1016/j.scitotenv.2013.09.033

Clergé A, Le Goff J, Lopez C, et al. 2019. Oxy-PAHs: occurrence in the environment and potential genotoxic/mutagenic risk assessment for human health[J]. Critical reviews in toxicology, 49(4): 302-328. doi: 10.1080/10408444.2019.1605333

Cong Z, Kang S, Liu X, et al. 2007. Elemental composition of aerosol in the Nam Co region, Tibetan Plateau, during summer monsoon season[J]. Atmospheric Environment, 41(6): 1180-1187. doi:10.1016/j.atmosenv.2006.09.046

Dickhut R M, Canuel E A, Gustafson K E, et al. 2000. Automotive sources of carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbons associated with particulate matter in the Chesapeake Bay region[J]. Environmental science & technology, 34(21): 4635-4640. doi:10.1021/es000971e

Ding K, Liu J, Ding A, et al. 2015. Uplifting of carbon monoxide from biomass burning and anthropogenic sources to the free troposphere in East Asia[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 15(5): 2843-2866. doi:10.5194/acp-15-2843-2015

Ding Y, Huang H, Chen W, et al. 2022. Background levels of OCPs, PCBs, and PAHs in soils from the eastern Pamirs, China, an alpine region influenced by westerly atmospheric transport[J]. Journal of Environmental Sciences, 115: 453-464. doi:10.1016/j.jes.2020.11.022

丁一汇, 张莉. 2008. 青藏高原与中国其他地区气候突变时间的比较[J]. 大气科学, 32(4): 794-805. DING Yihui, ZHANG Li. 2008. Intercomparison of the Time for Climate Abrupt Change between the Tibetan Plateau and Other Regions in China[J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 32(4): 794-805. doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2008.04.08

Grote M, Schüürmann G, Altenburger R. 2005. Modeling photoinduced algal toxicity of polycyclic aromatic hydrocarbons[J]. Environmental science & technology, 39(11): 4141-4149. doi:10.1021/es048310v

Gong P, Wang X, Yao T. 2011. Ambient distribution of particulate-and gas-phase n-alkanes and polycyclic aromatic hydrocarbons in the Tibetan Plateau[J]. Environmental earth sciences, 64(7): 1703-1711. doi:10.1021/es048310v

Gong P, Wang X. 2021. Forest Fires Enhance the Emission and Transport of Persistent Organic Pollutants and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons from the Central Himalaya to the Tibetan Plateau[J]. Environmental Science & Technology Letters, 8(7): 498-503. doi:10.1021/acs.estlett.1c00221

Gschwend P M, Hites R A. 1981. Fluxes of polycyclic aromatic hydrocarbons to marine and lacustrine sediments in the northeastern United States[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 45(12): 2359-2367. doi:10.1016/0016-7037(81)90089-2

Guillon A, Le Ménach K, Flaud P M, et al. 2013. Chemical characterization and stable carbon isotopic composition of particulate Polycyclic Aromatic Hydrocarbons issued from combustion of 10 Mediterranean woods[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 13(5): 2703-2719. doi:10.5194/acp-13-2703-2013

Halsall C J, Sweetman A J, Barrie L A, et al. 2001. Modelling the behaviour of PAHs during atmospheric transport from the UK

to the Arctic[J]. Atmospheric environment, 35(2): 255-267. doi:10.1016/S1352-2310(00)00195-3

Harner T, Bidleman T F. 1998. Octanol− air partition coefficient for describing particle/gas partitioning of aromatic compounds in urban air[J]. Environmental Science & Technology, 32(10): 1494-1502. doi:10.1021/es970890r

Harner T, Shoeib M, Diamond M, et al. 2004., Using passive air samplers to assess urban− rural trends for persistent organic pollutants. 1. Polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides[J]. Environmental Science & Technology, 38(17): 4474-4483. doi:10.1021/es040302r

Harrison R M, Smith D J T, Luhana L. 1996. Source apportionment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons collected from an urban location in Birmingham, UK[J]. Environmental science & technology, 30(3): 825-832. doi:10.1021/es950252d

He Q, Zhang G, Yan Y, et al. 2015. Effect of input pathways and altitudes on spatial distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in background soils, the Tibetan Plateau[J]. Environmental Science and Pollution Research, 22(14): 10890-10901. doi:10.1007/s11356-015-4283-3

Hong W J, Li Y F, Li W L, et al. 2020. Soil concentrations and soil-air exchange of polycyclic aromatic hydrocarbons in five Asian countries[J]. Science of the Total Environment, 711: 135223. doi:10.1016/j.scitotenv.2019.135223.

Hong Y, Xu X, Liao D, et al. 2021. Air pollution increases human health risks of PM2. 5-bound PAHs and nitro-PAHs in the Yangtze River Delta, China[J]. Science of the Total Environment, 770: 145402. doi:10.1016/j.scitotenv.2021.145402

黄荣辉，蔡榕硕，陈际龙等. 2006. 我国旱涝气候灾害的年代际变化及其与东亚气候系统变化的关系[J]. 大气科学, 30(5): 730-743. HUANG Rong-Hui, CAI Rong-Shuo, CHEN Ji-Long et al. 2006. Interdecaldal Variations of Drought and Flooding Disasters in China and Their Association with the East Asian Climate System[J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 30(5): 730-743. doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2006.05.02

姜大膀，王会军，郎咸梅. 2004. 关于末次盛冰期青藏高原大范围冰盖存在可能性的再研究[J]. 大气科学, 28(1): 1-6. JIANG Da-Bang, WANG Hui-Jun, LANG Xian-Mei. 2004. On the Possibility of Ice Sheet over the Tibetan Plateau at the Last Glacial Maximum[J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 28(1): 1-6. doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2004.01.01

康世昌，丛志远，王小萍，等. 2019. 大气污染物跨境传输及其对青藏高原环境影响[J]. 科学通报, 64(27): 2876. Kang ShiChang, Cong ZhiYuan, Wang XiaoPing, et al. The transboundary transport of air pollutants and their environmental impacts on Tibetan Plateau. Chin Sci Bull (in Chinese), 2019, 64: 2876–2884. doi: 10.1360/TB-2019-0135

康世昌，张玉兰，张强弓. 2020. 探索地球之巅：60 年来珠峰气候环境变化[J].自然杂志, 42(05):355-363. Kang Shi Chang, Zhang YuLan, Zhang QiangGong, et al. 2020. To the top of the Earth: Climate and environmental changes in Mt. Qomolangma region during past 60 years. Chinese Journal of Nature (in Chinese), 42(05):355-363. doi:10.3969/j.issn.0253-9608.2020.05.001

Kavouras I G, Koutrakis P, Tsapakis M, et al. 2001. Source apportionment of urban particulate aliphatic and polynuclear aromatic hydrocarbons (PAHs) using multivariate methods[J]. Environmental science & technology, 35(11): 2288-2294. doi:10.1021/es001540z

Kim K H, Jahan S A, Kabir E, et al. 2013. A review of airborne polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and their human health

effects[J]. Environment international, 60: 71-80. doi:10.1016/j.envint.2013.07.019

李英红，谭吉华，段菁春，等. 中国主要排放源颗粒相多环芳烃的成分谱特征[J]. 环境科学与技术,2015,38(6):58-69. Li Yinghong，Tan Jihua，Duan Jingchun, et al. 2015. Characteristic of particle-PAHs source profile in China[J]. Environmental Science & Technology (in Chinese)， 38（6）：58-69. doi:10.3969/j.issn.1003-6504.2015.06.010.

Liang Q, Jaeglé L, Jaffe D A, et al. 2004. Long‐range transport of Asian pollution to the northeast Pacific: Seasonal variations and transport pathways of carbon monoxide[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 109(D23). doi:10.1029/2003JD004402

Lin H, Wang X, Gong P, et al. 2017. The influence of climate change on the accumulation of polycyclic aromatic hydrocarbons, black carbon and mercury in a shrinking remote lake of the southern Tibetan Plateau[J]. Science of the Total Environment, 601: 1814-1823. doi:10.1016/j.scitotenv.2017.06.038

Liu J, Li J, Lin T, et al. 2013. Diurnal and nocturnal variations of PAHs in the Lhasa atmosphere, Tibetan Plateau: Implication for local sources and the impact of atmospheric degradation processing[J]. Atmospheric Research, 124: 34-43. doi:10.1016/j.atmosres.2012.12.016

Liu L Y, Wang J Z, Wei G L, et al. 2012. Sediment records of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the continental shelf of China: implications for evolving anthropogenic impacts[J]. Environmental science & technology, 46(12): 6497-6504. doi:10.1021/es300474z

Lohmann R， Breivik K， Dachs J , et al. 2007. Global fate of POPs: Current and future research directions[J]. Environmental Pollution, 150(1):150-165. doi:10.1016/j.envpol.2007.06.051

Lu X, Liang E, Wang Y, et al. 2019. Past the climate optimum: Recruitment is declining at the world's highest juniper shrublines on the Tibetan Plateau[J]. Ecology, 100(2): e02557. doi:10.1002/ecy.2557

罗东霞，张淑娟，杨瑞强. 2016. 藏东南色季拉山土壤中有机氯农药和多环芳烃的浓度分布及来源解析[J]. 环境科学, (7): 2745-2755. Luo DongXia, Zhang ShuJuan, Yang RuiQiang. 2016. Distribution and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) and Organochlorine Pesticides (OCPs) in Soils from Shergyla Mountain,Southeast Tibetan Plateau[J]. Environmental Science (in Chinese), (7): 2745-2755. doi:10.13227/j.hjkx.2016.07.043.

Ma J, Hung H, Tian C, et al. 2011. Revolatilization of persistent organic pollutants in the Arctic induced by climate change[J]. Nature Climate Change, 1(5): 255-260. doi:10.1038/nclimate1167

Masclet P, Bresson M A, Mouvier G. 1987. Polycyclic aromatic hydrocarbons emitted by power stations, and influence of combustion conditions[J]. Fuel, 66(4): 556-562. doi:10.1016/0016-2361(87)90163-3

Menichini E, Monfredini F, Merli F. 1999. The temporal variability of the profile of carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbons in urban air: a study in a medium traffic area in Rome, 1993–1998[J]. Atmospheric Environment, 33(23): 3739-3750. doi:10.1016/S1352-2310(99)00114-4

Menzie C A, Potocki B B, Santodonato J. 1992. Exposure to carcinogenic PAHs in the environment[J]. Environmental science & technology, 26(7): 1278-1284. doi:10.1021/es00031a002

Ma W L, Qi H, Baidron S, et al. Implications for long-range atmospheric transport of polycyclic aromatic hydrocarbons in Lhasa, China[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2013, 20(8): 5525-5533. doi:10.1007/s11356-013-1577-1

Nadal M, Wargent J J, Jones K C, et al. 2006. Influence of UV-B radiation and temperature on photodegradation of PAHs: preliminary results[J]. Journal of Atmospheric Chemistry, 55(3): 241-252. doi:10.1007/s10874-006-9037-7

Park S S, Kim Y J, Kang C H. 2002. Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in Seoul, Korea[J]. Atmospheric Environment, 36(17): 2917-2924. doi:10.1016/S1352-2310(02)00206-6

Pokhrel B, Gong P, Wang X, et al. 2018. Distribution, sources, and air–soil exchange of OCPs, PCBs and PAHs in urban soils of Nepal[J]. Chemosphere, 200: 532-541. doi:10.1016/j.chemosphere.2018.01.119

Ravindra K, Sokhi R, Van Grieken R. 2008. Atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons: source attribution, emission factors and regulation[J]. Atmospheric environment, 42(13): 2895-2921. doi:10.1016/j.atmosenv.2007.12.010

Rolph G, Stein A, Stunder B. 2017. Real-time environmental applications and display system: READY[J]. Environmental Modelling & Software, 95: 210-228. doi:10.1016/j.envsoft.2017.06.025

Shen G, Tao S, Wei S, et al. 2012. Emissions of parent, nitro, and oxygenated polycyclic aromatic hydrocarbons from residential wood combustion in rural China[J]. Environmental science & technology, 46(15): 8123-8130. doi:10.1021/es301146v

Sheng J, Wang X, Gong P, et al. 2013. Monsoon-driven transport of organochlorine pesticides and polychlorinated biphenyls to the Tibetan Plateau: three year atmospheric monitoring study[J]. Environmental science & technology, 47(7): 3199-3208. doi:10.1021/es305201s

Simcik M F, Eisenreich S J, Lioy P J. 1999. Source apportionment and source/sink relationships of PAHs in the coastal atmosphere of Chicago and Lake Michigan[J]. Atmospheric Environment, 33(30): 5071-5079. doi:10.1016/S1352-2310(99)00233-2

Stein A F, Draxler R R, Rolph G D, et al. 2015. NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system[J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 96(12): 2059-2077. doi:10.1175/BAMS-D-14-00110.1

唐志刚, 刘喆,李 韵谱, 等. 2022. 2016年北京市某城区采暖季PM2.5中PAHs的污染特征及来源分析[J]. 环境卫生学杂志, 12(2):87-94. Tang ZhiGang，Liu Zhe，LI YunPu, et al. 2022. Pollution characteristics and sources of PM2.5-bound polycyclic aromatic hydrocarbons during heating season in a district of Beijing, China, 2016[J]. Journal of Environmental Hygiene (in Chinese), 12(2):87-94. doi:10.13421/j.cnki.hjwsxzz.2022.02.003.

Tao S, Wang W, Liu W, et al. 2011. Polycyclic aromatic hydrocarbons and organochlorine pesticides in surface soils from the Qinghai-Tibetan plateau[J]. Journal of Environmental Monitoring, 13(1): 175-181. doi:10.1039/c0em00298d

von Waldow H, MacLeod M, Jones K, et al. 2010. Remoteness from emission sources explains the fractionation pattern of polychlorinated biphenyls in the northern hemisphere[J]. Environmental science & technology, 44(16): 6183-6188. doi:10.1021/es101291q

Wang C, Wang X, Gong P, et al. 2014. Polycyclic aromatic hydrocarbons in surface soil across the Tibetan Plateau: Spatial distribution, source and air–soil exchange[J]. Environmental pollution, 184: 138-144. doi:10.1016/j.envpol.2013.08.029

王同美, 吴国雄, 万日金. 2008. 青藏高原的热力和动力作用对亚洲季风区环流的影响[J]. 高原气象, 27(1): 1-9. Wang

Tong mei, Wu Guoxiong, Wan RiJin. 2008. Influence of the Mechanical and Thermal Forcing of Tibetan Plateau on the Circulation of the Asian Summer Monsoon Area[J]. Plateau Meteorology (in Chinese). 27(1): 1-9

Wang X, Gong P, Sheng J, et al. 2015. Long-range atmospheric transport of particulate Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and the incursion of aerosols to the southeast Tibetan Plateau[J]. Atmospheric Environment, 115: 124-131. doi:10.1016/j.atmosenv.2015.04.050

Wang X, Xu B, Kang S, et al. 2008. The historical residue trends of DDT, hexachlorocyclohexanes and polycyclic aromatic hydrocarbons in an ice core from Mt. Everest, central Himalayas, China[J]. Atmospheric Environment, 42(27): 6699-6709. doi:10.1016/j.atmosenv.2008.04.035

吴国雄, 刘屹岷, 刘新, 等. 2005. 青藏高原加热如何影响亚洲夏季的气候格局[J]. 大气科学, 29(1): 47-56. WU Guo-Xiong, LI Yi-Min, LIU Xin, et al. 2005. How the Heating over the Tibetan Plateau Affects the Asian Climate in Summer[J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 29(1): 47-56. doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2005.01.06

Wu X, Sun W, Huai B, et al. 2023. Seasonal variation and sources of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons in a background site on the Tibetan Plateau[J]. Journal of Environmental Sciences, 125: 524-532. doi:10.1016/j.jes.2022.02.042

Yuan G L, Wu L J, Sun Y, et al. 2015. Polycyclic aromatic hydrocarbons in soils of the central Tibetan Plateau, China: distribution, sources, transport and contribution in global cycling[J]. Environmental pollution, 203: 137-144. doi:10.1016/j.envpol.2015.04.002

Zhang R, Wang Y, He Q, et al. 2017. Enhanced trans-Himalaya pollution transport to the Tibetan Plateau by cut-off low systems[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 17(4): 3083-3095. doi:10.5194/acp-17-3083-2017, 2017.

Zhu N, Schramm K W, Wang T, et al. 2014. Environmental fate and behavior of persistent organic pollutants in Shergyla Mountain, southeast of the Tibetan Plateau of China[J]. Environmental pollution, 191: 166-174. doi:10.1016/j.envpol.2014.04.031