

海洋沉积物基质多环芳烃标准参考物质的原料样品制备研究

付丹, 李娟, 彭模, 蔡瑞, 周超凡, 郑江鹏
(江苏省环境监测中心, 江苏 南京 210019)

摘要:海洋沉积物基质多环芳烃(PAHs)标准参考物质是海洋环境沉积物监测分析中质量控制和质量保证的重要保障。由于缺少对相关原料样筛选研究,目前我国尚未有自主制备的海洋沉积物基质PAHs标准参考物质。通过海洋沉积物原始数据调研、定点筛查、实验室间验证等手段,对江苏近岸海域海洋沉积物原料样进行筛选研究。结果表明,连云港赣榆某入海口点位的海洋沉积物样品 Σ PAHs的质量分数为413 $\mu\text{g}/\text{kg}$,该样品各粒径中的PAHs质量分数分布均匀,精密度能够满足我国海洋沉积物环境监测质量控制需求,可以为进一步制备海洋沉积物PAHs标准参考物质提供技术支持。

关键词:海洋沉积物;多环芳烃;标准参考物质;原料样

中图分类号:X834

文献标志码:B

文章编号:1674-6732(2022)06-0038-05

Study on Preparation of Raw Material Samples of PAHs Standard Reference Materials in Marine Sediments

FU Dan, LI Juan, PENG Mo, CAI Rui, ZHOU Chao-fan, ZHENG Jiang-peng
(Jiangsu Provincial Environmental Monitoring Center, Nanjing, Jiangsu 210019, China)

Abstract: Standard reference materials of PAHs in marine sediments are indispensable for quality control and quality assurance in marine environmental sediment monitoring and analysis. Nevertheless, the lack of selection on relevant raw sediment materials constrains the preparation of standard reference materials of PAHs in China. In this research, the raw marine sediment data accumulation, fixed-point screening and inter-laboratory validation were used to screen the raw materials sampled from Jiangsu inshore sediment. The results showed that the marine sediment sample in Lianyungang Ganyu had a Σ PAHs concentration value of 413 $\mu\text{g}/\text{kg}$. The results of sample homogeneity analysis showed that the concentration of PAHs in each particle size of the sample was uniformly distributed. Different laboratories all validated that the sample precision level meets the demand for quality control of marine sediments environmental monitoring of marine sediments in China. It provides support for the further preparation of standard reference materials of marine sediments.

Key words: Marine sediments; PAHs; Standard reference materials; Raw material sample

0 前言

多环芳烃(PAHs)是指分子中含有2个或2个以上苯环的碳氢化合物,在常温下大多是固态,不溶于水,易溶于苯类等芳香性溶剂中,具有较强的稳定性、致癌性和致突变性^[1-3],已经发现的致癌性PAHs及其衍生物达400种以上^[4]。工业革命之后,化石能源得到普遍应用,致使PAHs在全球环境中发生扩散和沉降,目前,国内外环境监测部

门已对16种优先控制的PAHs进行常规环境监测^[5-7],并对其进行环境健康危害评价。

海洋沉积物是PAHs的主要环境归宿之一,通过河流径流、大气沉降等地球化学循环形成。欧美国家由于较早地开始大规模使用化石能源,其海洋沉积物中积累了较高质量分数的PAHs, $\omega(\Sigma\text{PAHs}) > 100 \text{ mg}/\text{kg}$ (以干含量计,下同)的海域较多,如Narragansett海湾表层沉积物中

收稿日期:2021-11-05;修订日期:2022-03-14

基金项目:国家环境保护污染物计量和标准样品研究重点实验室开放课题(KF202001)

作者简介:付丹(1991—),男,工程师,硕士,主要从事有机污染物分析工作。

$\omega(\sum \text{PAHs})$ 高达 $0.57 \sim 216 \text{ mg/kg}$, 马尔马拉海的 Izmit 海洋表层沉积物中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 高达 $30.0 \sim 1\,670 \text{ mg/kg}$, 是迄今为止所见报道中 PAHs 质量分数最高的海域之一, 韩国的 Ulsan 港沉积物中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 $0.02 \sim 3.1 \text{ mg/kg}$, 希腊的爱琴海沉积物中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 $45 \sim 148 \text{ mg/kg}$, 意大利的 Adriatic 海沉积物中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 $24.1 \sim 501 \text{ mg/kg}$ ^[8-11]。经比对发现, $\omega(\sum \text{PAHs})$ 较高的港口或入海口均为较长时间运输化石燃料的海域。我国由于工业起步比欧美国家晚, PAHs 在海洋沉积物中富集时间短, 污染程度普遍低于国外同类海域。例如, 东海沉积物中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 $105.3 \sim 60\,000 \text{ }\mu\text{g/kg}$, 南海沉积物中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 $82 \sim 49\,066 \text{ }\mu\text{g/kg}$, 渤海表层沉积物中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 $21.9 \sim 586 \text{ }\mu\text{g/kg}$, 渤海龙口湾表层沉积物中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 $460 \sim 2\,448 \text{ }\mu\text{g/kg}$, 黄海沉积物中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 $222 \sim 776 \text{ }\mu\text{g/kg}$ ^[12-15]。PAHs 质量分数较高的点位分布较少, 普遍为 $\mu\text{g/kg}$ 量级。

目前, 我国的海洋沉积物 PAHs 标准参考物质主要依赖国外进口^[16]。现有的海洋沉积物介质 PAHs 标准样品主要有美国国家标准与技术研究院 (NIST) 的 SRM-1941b 和 SRM-1944, 其 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 (5.12 ± 0.53) 和 $(53.4 \pm 2.83) \text{ mg/kg}$, 为 mg/kg 量级, 可以作为海洋沉积物中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为同样量级的样品质控物质^[17], 但其 PAHs 质量分数水平和我国海洋环境监测需求存在一定差异。而我国目前采用的淡水基质 PAHs 标准参考物质, 因与海水基质存在差异, 也难以满足海洋沉积物分析的质量控制要求。

现根据我国海洋环境监测中对低质量分数 PAHs 的质量控制需求, 筛选出满足方法标准测定下限的 $\mu\text{g/kg}$ 量级海洋沉积物 PAHs 标准参考物质的原料样品, 填补此类原料样品的空白, 为进一步制备海洋沉积物 PAHs 标准参考物质提供技术支持。

1 实验部分

1.1 仪器与试剂

仪器: 5977B/8890C 安捷伦气质联用仪 (GC-MS) (美国安捷伦公司); B-811 索氏提取仪 (瑞士 BUCHI 公司); TURBOVAP 氮吹仪 (瑞典 BIOTAGE 公司); 赛多利斯万分之一天平 (德国 Sartorius 公司)。

试剂: 16 种 PAHs (Z-014G)、PAHs 替代物 (M-8270-SS) 和 4-三联苯-d14 (CLP-BNS-3-2X) (美国 AccuStandard 公司); 正己烷和二氯甲烷 (GC-MS 级, 德国 Merck 公司); 铜粉 (优级纯, 200 目, 国药集团); 佛罗里硅土 SPE 柱 (Oasis 500 mg/6 mL, 美国 Waters 公司); 无水硫化钠 (分析纯, 国药集团)。

1.2 样品采集与制备

样品采集: 按照《海洋监测规范 第3部分: 样品采集、贮存及运输》(GB 17378.3—2007) 要求, 使用船载静力式采泥器采集海洋沉积物样品, 样品待海水自然流尽后封装于 1 L 棕色广口玻璃瓶中, 在阴凉处避光保存。

样品制备: 对沉积物样品使用自然风干和冻干进行干样制备, 砾石和颗粒较大的动植物残骸, 使用金属筛网分别筛出 < 80 目、 $80 \sim 120$ 目、 $120 \sim 180$ 目、 > 180 目的样品, 保存于带聚四氟乙烯密封垫的棕色样品瓶中, 待测。

1.3 样品前处理及分析

根据《海洋监测技术规程 第2部分: 沉积物》(HY/T 147.2—2013), 称取 5.0 g 沉积物样品和 2.0 g 经 $550 \text{ }^\circ\text{C}$ 灼烧 8 h 的无水硫酸钠, 使用二氯甲烷和正己烷溶剂 ($V:V=1:1$), 采用索氏提取法提取样品中的 PAHs, 使用活化的铜粉除硫, 手填层析柱净化后浓缩, 使用气相色谱-质谱联用法的单离子检测扫描模式分析沉积物中 PAHs 的质量分数。在 2 家实验室对筛选的原料样品进行比对分析, 确保分析结果准确可靠, 符合进一步制备标准参考物质的需求。

2 结果与讨论

2.1 海洋沉积物 PAHs 原料样广泛筛查

海洋沉积物中 PAHs 的分析主要依据《HY/T 147.2—2013》, 其中气相色谱-质谱联用法、气相色谱法和高效液相色谱法关于 PAHs 的测定下限分别为 19.2 , 110 和 $252 \text{ }\mu\text{g/kg}$ 。船舶在海上准确定位的难度较大, 在进行海洋沉积物采样时, 难以重复采集到相同的样品, 因此需要经过广泛筛查、目标海域确定、精确点位验证、大批量样品采集等步骤, 重复筛查直至筛选出 $1 \times 10^1 \sim 1 \times 10^2 \text{ }\mu\text{g/kg}$ 量级且满足方法测定下限的原料样品。

对 2007—2018 年江苏省邻近海域 10 个批次 118 个点位海洋沉积物留样中 PAHs 的质量分数进

行广泛筛选,分别为 2007—2013 年国控点位及省控点位中盐城邻近海域共 4 个批次 33 个点位样品,2012—2013 年南通某入海口 1 个批次 18 个点位样品,2012—2013 年连云港灌云邻近海域 1 个批次 20 个点位样品,2016—2018 年国控点位的入海口和邻近海域中连云港赣榆某入海口共 4 个批次 47 个点位样品。筛查结果表明,所有批次离岸较远海域的沉积物样品中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 均为未检出 $\sim 20.8 \mu\text{g}/\text{kg}$, 检出结果低于或接近方法测定下

限,难以满足海洋环境监测质控要求。河流入海口及离岸较近海域的沉积物样品中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 较大,最高可达 $3\,321 \mu\text{g}/\text{kg}$,与欧美国家的港口或入海口 PAHs 质量分数在同一量级^[8-11]。除入海口及离岸较近海域的海洋沉积物中 PAHs 质量分数出现高值,江苏省邻近海域海洋沉积物中 PAHs 质量分数普遍仍处于 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 量级。江苏近岸海域不同区域海洋沉积物 PAHs 质量分数较高的原料样筛查结果见表 1。

表 1 江苏近岸海域海洋沉积物中 PAHs 质量分数较高的原料样筛查结果^①

PAHs	盐城邻近海域		南通某入海口		连云港灌云邻近海域		连云港赣榆某入海口	
	样品 1	样品 2	样品 3	样品 4	样品 5	样品 6	样品 7	样品 8
萘	19.1	17.1	17.2	26.4	21.4	15.8	103	98
苊烯	6.11	6.04	5.97	6.59	6.28	—	82.7	77.0
苊	2.43	2.48	2.46	3.14	2.95	2.71	84.1	79.5
芴	19.0	19.0	21.9	36.3	20.7	19.8	97.7	95.4
菲	99.3	116	148	413	99.1	141	262	370
蒽	10.9	11.4	13.6	26.4	13.7	13.3	174	174
荧蒽	69.4	77.1	179	274	50.6	95.1	278	373
芘	59.0	58.8	113	225	46.9	74.5	265	306
苯并(a)蒽	32.3	36.4	37.0	57.7	42.3	38.5	391	391
蒾	2.80	4.66	5.54	22.9	13.6	4.77	113	111
苯并(b)荧蒽	14.6	23.5	23.7	81.0	53.9	27.4	297	290
苯并(k)荧蒽	18.2	23.9	23.8	66.4	43.1	26.4	189	182
苯并(a)芘	0.61	5.36	4.79	37.7	16.9	7.13	408	388
茚并(1,2,3-cd)芘	—	12.4	12.5	24.7	20.4	12.8	146	149
二苯并[a,h]蒽	—	—	—	17.4	17.4	14.7	136	134
苯并[ghi]芘	1.84	3.20	3.01	14.8	10.5	3.07	105	103
$\sum \text{PAHs}$	356	417	611	1 333	480	497	3 132	3 321

①“—”为未检出。

初步确定 PAHs 质量分数最高的样品 4、样品 7 和样品 8 符合原料样品筛选要求,这 3 个样品的采集点位均靠近主要河流入海口及其邻近海域,该结论与国内外相关研究^[8-15]及 NIST 的 SRM 系列标准品原料样品来源相一致。因此,确定筛选海洋沉积物 PAHs 样品的主要采样点位为河流入海口及其邻近海域。

2.2 海洋沉积物 PAHs 原料样目标海域确定

根据广泛筛查确定的海域,采集南通某入海口的 24 个海洋沉积物样品,连云港赣榆某入海口的 6 个海洋沉积物样品(分别采集自 6 个不同点位),在 2 家实验室进行分析测定。结果显示:(1)南通 24 个海洋沉积物样品中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 $5.10 \sim 32.9 \mu\text{g}/\text{kg}$,平均值为 $19.7 \mu\text{g}/\text{kg}$ 。该海域采样点位距离入海口 3 海里,海底地形为辐射

沙脊,沉积物以砂质为主, $\omega(\sum \text{PAHs})$ 低于《HY/T 147.2—2013》的测定下限,难以满足海洋沉积物 PAHs 原料样的筛选要求。(2)连云港赣榆某入海口海洋沉积物原料样筛查结果见表 2。由表 2 可见,6 个海洋沉积物样品中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 为 $165 \sim 1\,227 \mu\text{g}/\text{kg}$,平均值为 $471 \mu\text{g}/\text{kg}$,其中 2 个样品中 $\omega(\sum \text{PAHs})$ 分别为 615 和 $1\,227 \mu\text{g}/\text{kg}$,能够满足海洋沉积物 PAHs 原料样的筛选要求,因此确定将这 2 个样品的采集点位作为沉积物 PAHs 原料样的目标海域。

2.3 海洋沉积物 PAHs 原料样精确点位确定

在连云港赣榆某入海口采集样品 4 和样品 5 的目标海域再布设 4 个精确点位,再次采集表层沉积物样品,进行 PAHs 双实验室平行分析。

表 2 连云港赣榆某入海口海洋沉积物中 PAHs 质量分数筛查结果^① $\mu\text{g}/\text{kg}$

PAHs	样品 1	样品 2	样品 3	样品 4	样品 5	样品 6
萘	11.59	10.48	9.39	20.17	18.24	18.98
萘烯	—	—	—	—	—	—
萘	—	—	—	—	—	—
芴	21.0	7.86	7.89	15.6	18.6	11.6
菲	148	62.97	84.3	244	559	121
蒽	7.38	1.60	1.29	6.83	12.4	5.07
荧蒽	27.5	10.6	13.6	123	343	28.5
芘	17.8	6.91	8.77	87.2	169	17.1
苯并(a)蒽	8.96	4.96	5.37	11.0	9.87	7.96
蒽	8.23	3.55	4.08	10.7	9.63	6.68
苯并(b)荧蒽	19.0	9.75	9.83	24.5	21.1	18.5
苯并(k)荧蒽	10.4	7.44	7.42	12.0	11.3	9.87
苯并(a)芘	9.78	7.20	7.56	11.3	10.4	9.10
茚并(1,2,3-cd)芘	17.2	12.7	12.8	20.1	17.6	16.5
二苯并[a,h]蒽	13.9	12.5	13.2	14.0	13.9	13.2
苯并[ghi]芘	11.2	6.34	6.78	14.6	12.6	10.4
Σ PAHs	332	165	192	615	1 227	294

①“—”为未检出。

海洋沉积物 PAHs 原料样精确点位样品测定结果见表 3。由表 3 可见,这 4 个精确点位样品的 $\omega(\Sigma \text{PAHs})$ 分别为 173, 167, 394 和 600 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 根据筛选原则及目的,点位 3 和点位 4 可作为海洋沉积物 PAHs 原料样品最终筛选点位。

表 3 海洋沉积物 PAHs 原料样精确点位样品测定结果^① $\mu\text{g}/\text{kg}$

PAHs	点位 1	点位 2	点位 3	点位 4
萘	43.4	58.5	67.8	21.8
萘烯	—	—	—	—
萘	0.80	—	0.08	—
芴	1.55	2.34	3.57	—
菲	19.6	22.1	42.1	57.2
蒽	—	—	—	—
荧蒽	13.4	14.7	45.8	85.6
芘	9.06	9.03	39.3	72.3
苯并(a)蒽	2.49	2.02	23.7	42.0
蒽	4.43	4.32	20.1	32.9
苯并(b)荧蒽	7.74	16.4	46.4	80.0
苯并(k)荧蒽	1.45	7.85	31.3	57.6
苯并(a)芘	1.45	7.85	31.3	57.6
茚并(1,2,3-cd)芘	23.3	15.1	24.5	51.6
二苯并[a,h]蒽	25.8	—	2.26	8.06
苯并[ghi]芘	19.0	6.48	15.6	32.9
Σ PAHs	173	167	394	600

①“—”为未检出。

2.4 海洋沉积物 PAHs 原料样平行性和均匀性验证

在连云港赣榆某入海口的点位 3 和点位 4 采集沉积物 ($>10 \text{ kg}$), 用于标准参考物质原料样的制备, 并进行海洋沉积物 PAHs 双实验室平行分析。结果显示, 点位 3 和点位 4 的沉积物 $\omega(\Sigma \text{PAHs})$ 最终复测结果分别为 136 和 413 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 分析原因可能是由于海洋沉积物采样无法精准定位及海洋沉积物处于相对稳定状态导致采样前后均一性难以保证。

对点位 4 海域的沉积物样品进行粒度分析, 并筛选不同粒径样品, 分析 PAHs 质量分数。结果表明, 该样品为黏土质粉砂沉积物, 其中砂占 4.50%, 黏土占 31.7%, 粉砂占 63.8%, 平均粒径较小。粒径 <80 目的样品, $\omega(\Sigma \text{PAHs})$ 为 437 $\mu\text{g}/\text{kg}$; 粒径为 80 ~ 120 目的样品, $\omega(\Sigma \text{PAHs})$ 为 426 $\mu\text{g}/\text{kg}$; 粒径为 120 ~ 180 目的样品, $\omega(\Sigma \text{PAHs})$ 为 449 $\mu\text{g}/\text{kg}$; 粒径 >180 目的样品, $\omega(\Sigma \text{PAHs})$ 为 362 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。各粒径样品中的 PAHs 质量浓度分布均匀。根据海洋沉积物样品制备要求, 且同时保证样品的均匀性, 初步将样品制备粒径定为 100 目。此批次海洋沉积物原料样中 PAHs 均有不同质量分数的检出, 实验室间和实验室内测定精密密度分别为 9.4% 和 4.1%, 能够较好地满足不同组分 PAHs 的质量控制要求。

相较于现有海洋沉积物基质的标准参考物质 SRM-1941b 和 SRM-1944, 本研究选取的原料样品 $\omega(\Sigma \text{PAHs})$ 为 413 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 能够满足我国海洋沉积物 PAHs 的分析和质量控制要求。最终确定将连云港赣榆某入海口的点位 4 的海洋沉积物作为原料样, 后续可以此原料样制备标准参考物质。

3 结语

对海洋沉积物 PAHs 标准参考物质的原料样品的筛选结果表明, 连云港赣榆某入海口点位 4 的海洋沉积物样品 $\omega(\Sigma \text{PAHs})$ 为 413 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。样品均匀性分析结果显示, 该样品各粒径中的 PAHs 质量分数分布均匀, 样品精密密度能够满足我国海洋环境监测中对低质量分数 PAHs 的质量控制需求, 可以作为原料样制备海洋沉积物基质 PAHs 标准参考物质。

[参考文献]

- [1] 国文, 薛文平, 姚文君, 等. 渤海表层沉积物中多环芳烃赋存特征及来源分析[J]. 海洋环境科学, 2015, 34(3): 330-336.
- [2] 邹艳梅, 李沅蔚, 纪灵, 等. 渤海龙口湾沉积物中烃类物质的分布特征, 来源解析及风险评价[J]. 环境科学研究, 2020, 33(9): 2138-2147.
- [3] 李鹏辉, 林嫣, 柯宏伟. 舟山海域沉积物中多环芳烃的分布及来源[J]. 厦门大学学报(自然科学版), 2020, 59(S1): 130-133.
- [4] 朱金财, 马玉欣, 蔡明红. 海洋环境 PAHs 研究进展: 来源、分布及生物地球化学过程[J]. 海洋环境科学, 2021, 40(3): 146-154.
- [5] 刘强, 高建华, 石勇, 等. 北黄海北部表层沉积物中多环芳烃的分布特征及控制因素分析[J]. 海洋环境科学, 2020, 39(1): 55-60.
- [6] 杨梦蓉, 代小蓉, 肖航. 象山港海水和沉积物中多环芳烃分布特征和来源研究[J]. 海洋环境科学, 2020, 39(4): 606-613.
- [7] 孟书锋. 海洋沉积物多环芳烃标准物质研制[D]. 大连: 大连海洋大学, 2018.
- [8] HARTMANN P, QUINN J, CAIRNS R, et al. Depositional history of organic contaminants in Narragansett Bay, Rhode Island, USA[J]. Marine Pollution Bulletin, 2005, 50(4): 388-395.
- [9] WITT G, TROST E. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in sediments of the Baltic Sea and of the German coastal waters[J]. Chemosphere, 1999, 38(7): 1603-1614.
- [10] TELLI-KARAKO F, TOLUN L, HENKELMANN B, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) distributions in the Bay of Marmara sea; Izmit Bay[J]. Environmental Pollution, 2002, 119(3): 383-397.
- [11] KOH C, KIM G, MARUYA K. Induction of the P450 reporter gene system bioassay by polycyclic aromatic hydrocarbons in Ulsan Bay (South Korea) sediments[J]. Environmental Pollution, 2001, 111(3): 437-445.
- [12] 张祖麟, 王新红, 哈里德, 等. 厦门西港表层沉积物中多环芳烃(PAHs)的含量分布特征及其污染源[J]. 海洋通报, 2001, 20(1): 35-35.
- [13] 罗孝俊, 陈社军, 麦碧娴, 等. 珠江及南海北部海域表层沉积物中多环芳烃分布及来源[J]. 环境科学, 2005, 26(4): 129-134.
- [14] 李斌, 吴莹, 张经. 北黄海表层沉积物中多环芳烃的分布及其来源[J]. 中国环境科学, 2002, 22(5): 429-432.
- [15] 江锦花, 董官真. 海洋环境中多环芳烃的污染状况及源解析[J]. 水资源保护, 2008, 24(5): 48-54.
- [16] 房丽萍, 吴忠祥, 王伟, 等. 河流沉积物多环芳烃标准参考物质的制备与定值[J]. 岩矿测试, 2013, 32(5): 767-774.
- [17] WISE S, POSTER D, SCHANTZ M, et al. Two new marine sediment standard reference materials (SRMs) for the determination of organic contaminants[J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2004, 378: 1251-1264.
- [24] TIAN Y Z, WANG J, PENG X, et al. Estimation of the direct and indirect impacts of fireworks on the physicochemical characteristics of atmospheric PM₁₀ and PM_{2.5}[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014, 14(18): 9469-9479.
- [25] LI W, SHI Z, YAN C, et al. Individual metal-bearing particles in a regional haze caused by firecracker and firework emissions[J]. Science of the Total Environment, 2013, 443: 464-469.
- [26] 郝天依, 韩素芹, 蔡子颖, 等. 天津春节期间烟花爆竹燃放对空气质量的影响[J]. 环境科学研究, 2019, 32(4): 573-583.
- [27] 张红, 王建, 汪水兵, 等. 安徽省近10年大气污染扩散能力变化研究[Z]. 国家科技成果, 2013.
- [28] RAVINDRA K, MOR S, KAUSHIK C P. Short-term variation in air quality associated with firework events: A case study[J]. Journal of Environmental Monitoring, 2003, 5(2): 260-264.
- [29] 王哲, 王自发, 郑海涛. 一种评估烟花爆竹燃放对大气PM_{2.5}影响的新方法[J]. 中国环境监测, 2014, 30(3): 31-36.
- [30] 石春娥, 张浩, 弓中强, 等. 2013—2015年合肥市PM_{2.5}重污
- 染特征研究[J]. 气象学报, 2017, 75(4): 632-644.
- [31] 赵旭辉, 童欢欢, 王含月, 等. 江淮地区秋季一次典型污染过程分析[J]. 中国环境监测, 2020, 36(1): 34-44.
- [32] 谢文晶, 徐文帅, 洗爱丹. 烟花爆竹燃放对三亚市空气质量的影响分析[J]. 环境化学, 2021, 40(11): 3491-3500.
- [33] PERRY K D. Effects of outdoor pyrotechnic displays on the regional air quality of western Washington State[J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 1999, 49(2): 146-155.
- [34] HAO Y, MENG X, YU X, et al. Chemical characteristics and health risks of trace metals in PM_{2.5} from firework/firecracker burning during the Spring Festival in North China[J]. IOP Conference Series Earth and Environmental Science, 2020, 489(1): 1-6.
- [35] WANG G, ZHANG R, GOMEZ M E, et al. Persistent sulfate formation from London Fog to Chinese haze[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2016, 113(48): 13630-13635.

(上接第31页)