

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第9期

Vol.38 No.9

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

中国国道和省道机动车尾气排放特征	王人洁,王堃,张帆,高佳佳,李悦,岳涛(3553)
北偏西大风对北京冬季生物气溶胶的影响	闫威卓,王步英,Oscar Fajardo Montana,蒋靖坤,郝吉明(3561)
不同空气质量等级下环境空气颗粒物及其碳组分变化特征	方小珍,吴琳,张静,李怀瑞,毛洪钧,宋从波(3569)
大气颗粒物及降尘中重金属的分布特征与人体健康风险评价	王永晓,曹红英,邓雅佳,张倩(3575)
2014年6月南京大气复合污染观测	郝建奇,葛宝珠,王自发,张祥志,汤莉莉,徐丹卉(3585)
嘉兴市不同天气条件下大气污染物和气溶胶化学组分的分布特征	王红磊,沈利娟,唐倩,吕升,田旭东,李莉,张孝寒(3594)
应用扩散管测量霾污染期间大气氮硫化合物浓度的方法	田世丽,刘学军,潘月鹏,周焱博,许稳,王跃思(3605)
福建省地级市人为源活性氮排放及其特征分析	张千湖,高兵,黄蕙,颜晓妹,崔胜辉(3610)
珠三角某高校室内灰尘重金属含量水平、来源及其健康风险评价	蔡云梅,黄涵书,任露陆,张艳林(3620)
贵金属和助剂负载量对柴油公交车 CDPF 颗粒净化性能的影响	谭丕强,仲益梅,郑源飞,楼狄明,胡志远(3628)
东营市北部海域沉积物中重金属的分布、来源及生态风险评价	刘群群,孟范平,王菲菲,崔鸿武,王曰杰(3635)
基于 MERIS 影像的洪泽湖叶绿素 a 浓度时空变化规律分析	刘阁,李云梅,吕恒,牟蒙,雷少华,温爽,毕顺,丁潇蕾(3645)
太湖蠡河小流域水质的空间变化特征及污染源解析	连慧姝,刘宏斌,李旭东,宋挺,雷秋良,任天志,武淑霞,李影(3657)
黄河高村至利津河段水体和沉积物中不同形态磷的分布特征	赵瞰,贾雁翔,姜兵琦,梅翔宇,李敏(3666)
三峡澎溪河流域消落区与岸边土壤磷形态特征	黄俊杰,王超,方博,冯磊,方芳,李哲,郭劲松(3673)
网湖沉积物正构烷烃分布特征及其记录的环境变化	沈贝贝,吴敬禄,曾海鳌,张永东,金苗(3682)
高地下水位地区透水停车场的水文控制效果	金建荣,李田,王圣思,陈子隽,周佳雯(3689)
北方典型设施蔬菜种植区地下水水质特征	于静,虞敏达,蓝艳,何小松,李敏(3696)
垃圾填埋水溶性有机物组成、演化及络合重金属特征	肖骁,何小松,席北斗,高如泰,李丹,张慧,崔东宇,袁志业(3705)
潜流人工湿地基质结构与微生物群落特征的相关性	李振灵,丁彦礼,白少元,李雪芬,游少鸿,解庆林(3713)
滑石矿开采对着生藻群落结构和水环境的影响	臧小苗,张远,林佳宁,王书平,高欣,赵茜,王靖淇(3721)
高铵条件下绿狐尾藻的生理与氮磷吸收特征	刘少博,冉彬,曾冠军,李宝珍,朱红梅,刘锋,肖润林,吴金水(3731)
活性炭吸附对藻类有机物的去除及其消毒副产物的控制	苗雨,翟洪艳,于珊珊,张婧,史常香(3738)
石墨烯凝胶电极的制备及电吸附 Pb^{2+} 的性能	王瑶,吉庆华,李永峰,胡承志(3747)
电流密度对 BDD 电极电化学矿化吡啶的影响与机制	张佳维,王婷,郑彤,蒋欢,倪晋仁(3755)
黄铁矿光化学氧化降解微囊藻毒素-LR 的机制	周薇,方艳芬,张钰,吴春红,黄应平(3762)
双氧水协同生化法强化处理印染废水	岳秀,唐嘉丽,于广平,吉世明,刘竹寒(3769)
基于 ABR-MBR 组合工艺不同进水 C/N 比对反硝化除磷性能的影响机制	吴鹏,程朝阳,沈耀良,赵诗惠,吕亮(3781)
利用好氧颗粒污泥持续增殖启动高性能亚硝化反应器	高军军,钱飞跃,王建芳,陈希,沈耀良,张泽宇,闫俞廷(3787)
零价铁自养反硝化过程活性污泥矿化及解决措施	张宁博,李祥,黄勇,张文静(3793)
低氧污泥丝状菌膨胀的呼吸图谱特征分析	马智博,李志华,杨成建,贺春博,秋亮,张晶(3801)
市政污泥接种焦化废水好氧降解能力及微生物群落演替的响应分析	刘国新,吴海珍,孙胜利,胡肖怡,吴晓英,陈华勇,范一文,胡成生,韦朝海(3807)
高效反硝化细菌的快速培养及群落结构多样性分析	孟婷,杨宏(3816)
两座污水处理系统中细胞态和游离态抗生素抗性基因的丰度特征	张衍,陈吕军,谢辉,李奥林,代天娇(3823)
生物炭对土壤 CH_4 、 N_2O 排放的影响	周凤,许晨阳,王月玲,林云,王强,张彤彤,耿增超(3831)
江西省耕地土壤碳氮比空间变异特征及其影响因素	江叶枫,郭熙,孙凯,饶磊,李婕,王澜珂,叶英聪,李伟峰(3840)
碳酸钙与生物炭对酸化菜地土壤持氮能力的影响	俞映惊,杨林章,Alfred Oduor Odindo,薛利红,何世颖,段婧婧(3851)
黄土丘陵区小流域不同整地措施长期影响下的土壤水力学特性	冯天骄,卫伟,陈利顶,陈蝶,干洋,杨磊(3860)
有机碳含量对多环芳烃在土壤剖面残留及迁移的影响	费佳佳,张枝焕,万甜甜,何奉朋(3871)
酸雨区不同用地类型土壤有效态 Cd 含量季节变化及关键影响因子	刘孝利,曾昭霞,铁柏清,叶长城,周俊驰,雷鸣(3882)
陕西潼关冶金污染土壤的修复评价及应用潜力	王姣,肖然,李荣华,宁西翠,蒋顺成,李晓龙,张增强,沈锋(3888)
甘肃白银东大沟铅锌铜复合污染场地水泥固化稳定化原位修复	吕浩阳,费杨,王爱勤,阎秀兰,李发生,李春萍,杜延军,郑梓铭(3897)
设施栽培对土壤与蔬菜中 PAHs 污染特征及其健康风险评价	金晓佩,贾晋璞,毕春娟,王薛平,郭雪,陈振楼,仇新莲(3907)
镉-铅复合污染下 AM 真菌对玉米生长和镉、铅吸收的影响	常青,郭伟,潘亮,王起凡,周昕南,杨亮,李娥(3915)
秸秆还田对水稻镉积累及其亚细胞分布的影响	段桂兰,王芳,岑况,王伯勋,程旺大,刘跃川,张红梅(3927)
<i>Pantoea</i> sp. IMH 介导土壤中砷锑的形态转化	张林,卢金锁(3937)
生物炭对土壤中重金属铅和锌的吸附特性	王红,夏雯,卢平,布雨薇,杨浩(3944)
浒苔生物炭的特征及其对 Cr(VI) 的吸附特点和吸附机制	陈友媛,惠红霞,卢爽,王报英,王志婕,王楠(3953)
灼烧净水污泥对外源磷的吸附和固定作用	于胜楠,李勇,李大鹏,黄勇(3962)
污泥生物炭制备吸附陶粒	李杰,潘兰佳,余广炜,汪印,尤甫天,谢胜禹(3970)
石墨相氮化碳-碘氧化铋层状异质结的构建及其光催化杀菌性能	黄建辉,林文婷,谢丽燕,陈建琴(3979)
《环境科学》征稿简则(3859)	
《环境科学》征订启事(3952)	
信息(3644, 3688, 3768)	

大气颗粒物及降尘中重金属的分布特征与人体健康风险评估

王永晓^{1,2,3}, 曹红英^{1,2,*}, 邓雅佳^{1,2,3}, 张倩¹

(1. 中国科学院地理科学与资源研究所, 北京 100101; 2. 中国科学院陆地表层格局与模拟重点实验室, 北京 100101; 3. 中国科学院大学资源与环境学院, 北京 100049)

摘要: 为了解 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 和降尘中 Cu、Mn、Pb、Ti、V、Cd、Cr、Co、Mo、Ni 等 10 种重金属元素的分布特征及人体健康风险, 利用大流量颗粒物采样器采集了北京城区某地四季大气中 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 及降尘样品, 用 ICP-MS 测定了上述 10 种金属元素的质量浓度。结果表明, $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 的年均质量浓度分别为 $153.40 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $232.93 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 超出 GB 3095-2012 中二类环境功能区标准限值的 5 倍和 3 倍; $PM_{2.5}/PM_{10}$ 的均值为 0.74, 表明大气颗粒物中以粒径小于 $2.5 \mu\text{m}$ 的颗粒为主; 后向轨迹分析结果表明外源颗粒物的来向随季节变化而改变, 冬、春、夏、秋季主要来向为西北、北-东北、东南、东南-西北。 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中 10 种元素的年均质量浓度从高到低依次为 $\text{Ti} > \text{Mn} > \text{Pb} > \text{Cu} > \text{Cr} > \text{Ni} > \text{V} > \text{Cd} > \text{Mo} > \text{Co}$, 其中 Ti、Mn、Pb、Cu 和 Cr 这 5 种元素占 10 种目标元素总质量浓度的 91.93% 和 92.49%。除 PM_{10} 中 Cd 年均质量浓度 ($6.53 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$) 高于 GB 3095-2012 限定值 ($5.00 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$) 外, 其他元素的质量浓度均不超标。降尘中各元素的含量由高到低依次为 $\text{Ti} > \text{Mn} > \text{Pb} > \text{Cu} > \text{Ni} > \text{Cr} > \text{V} > \text{Co} > \text{Mo} > \text{Cd}$, Ti ($2561.48 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) 占有元素的质量分数为 72.57%, 地累积指数 (I_{geo}) 结果表明, Cd (4.03) 属重度污染, Pb (2.49) 介于中度污染和重度污染之间, Cu (1.33) 属中度污染, Ni (0.43) 属轻微污染。重金属的致癌健康风险 ($< 10^{-4}$) 和非致癌健康风险 (< 1), 均处于较低水平, 短期内不会对人体健康造成威胁, 但不能忽视长期处于此环境所带来的健康危害。

关键词: 大气颗粒物; 降尘; 重金属; 分布特征; 健康风险

中图分类号: X513; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)09-3575-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201702054

Distribution and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particulate Matter and Dust

WANG Yong-xiao^{1,2,3}, CAO Hong-ying^{1,2,*}, DENG Ya-jia^{1,2,3}, ZHANG Qian¹

(1. Institute of Geographic Sciences and Natural Resources Research, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China; 2. Key Laboratory of Land Surface Pattern and Simulation, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101, China; 3. College of Resources and Environment, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: In order to study the concentration, distribution characteristics, and health risk assessment of toxic heavy metals, Cu, Mn, Pb, Ti, V, Cd, Cr, Co, Mo, and Ni, in atmospheric particulate matter (PM) and dust, the PM and dust samples were collected in all four seasons in 2014 in Beijing using two high volume air samplers (Echo Tecora Inc., Italy) and a dust tank, respectively. Selected metals were quantified by ICP-MS. Annual average concentrations of $PM_{2.5}$ and PM_{10} were $153.40 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ and $232.93 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, which were five and three times higher than the Ambient Air Quality Standard values (GB 3095-2012), respectively. The average $PM_{2.5}/PM_{10}$ was 0.74, implying that $PM_{2.5}$ predominated the particulate matter concentrations. The results of backward trajectory analysis suggested that exogenous particles originated from the northwest, north-northeast, southeast, and southeast-northwest during winter, spring, summer, and autumn, respectively. The order of annual average concentrations of selected metals in $PM_{2.5}$ and PM_{10} was $\text{Ti} > \text{Mn} > \text{Pb} > \text{Cu} > \text{Cr} > \text{Ni} > \text{V} > \text{Cd} > \text{Mo} > \text{Co}$. The sum of the concentrations of Ti, Mn, Pb, Cu, and Cr accounted for 91.93% and 92.49% of the total concentration of target metals in $PM_{2.5}$ and PM_{10} , respectively. The metal content of dust followed the order of $\text{Ti} > \text{Mn} > \text{Pb} > \text{Cu} > \text{Ni} > \text{Cr} > \text{V} > \text{Co} > \text{Mo} > \text{Cd}$ and Ti ($2561.48 \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) accounted for 72.57% of the total metal content of dust. The geo-accumulation index (I_{geo}) of Cd, Pb, Cu, and Ni were 4.03, 2.49, 1.33, and 0.43, which represented the states of heavily to extremely contaminated, moderately to heavily contaminated, moderately contaminated and uncontaminated to moderately contaminated, respectively, indicating that dust in the target area included significant amounts of Cd, Pb, and Cu. The health risk assessment suggested that non-carcinogenic and carcinogenic risks of selected metals in PM_{10} and dust were within safe limits, but their long-term impact cannot be ignored.

收稿日期: 2017-02-13; 修订日期: 2017-03-29

基金项目: 国家自然科学基金项目 (41171373)

作者简介: 王永晓 (1990 ~), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为大气污染物行为过程及健康风险评估, E-mail: yxwang1990@163.com

* 通信作者, E-mail: caohy@igsnrr.ac.cn

Key words: particulate matter; dust; heavy metals; distribution characteristics; health risk assessment

大气颗粒物($PM_{2.5}$ 和 PM_{10} ,空气动力学直径分别小于等于 $2.5\ \mu m$ 和 $10\ \mu m$ 的颗粒物)具有粒径小、比表面积大等特性,可较长时间悬停在大气中并能进行远距离输送,因而更容易吸附一些金属离子和有机物等有害物质,从而影响大气环境质量和危害人体健康^[1].近年来,大气颗粒物及其对公众健康的危害引起了国内外研究者的广泛关注,流行病学研究表明, PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 对人体健康的影响显著^[2-6].国内外学者在颗粒物中重金属的污染水平、环境行为及人体健康风险等方面有了一定的积累,据报道^[7-12],发展中国家大气颗粒物中重金属质量浓度较高,而发达国家普遍处于较低水平,且70%以上的重金属分布在 PM_{10} 中,随着颗粒物粒径的减小,重金属含量升高.大气颗粒物中镉(Cd)、铬(Cr)、钴(Co)、锰(Mn)、铅(Pb)、镍(Ni)等列入美国环保署的危险空气污染物清单,国际癌症研究署也将As、Cd、Cr、Ni及他们的部分化合物列为致癌物.目前,大气颗粒物中重金属的健康风险评价的研究并不全面,多数研究仅停留在单一摄入方式的健康风险^[13-15],并不能代表暴露人群面临的全部健康风险.城市化速度逐渐加快,密集型的工业生产和人类活动已导致严重的城市大气重金属污染.北京市截至2015年年末,常住人口达到2 170.50万人,近年来空气质量状况不佳,颗粒物质量浓度曾几度爆表.本文旨在通过探究北京大气颗粒物($PM_{2.5}$ 和 PM_{10})及降尘中10种重金属元素的分布,评价它们经多种摄入方式带来的健康风险,以期北京今后大气中重金属的防治政策制定提供基础的数据支撑.

1 材料与方法

1.1 样品采集与分析

本研究利用大流量空气采样器(Echo Tecora Inc., Italy, $200\ L\cdot min^{-1}$, 24 h连续采样)和降尘罐(每月1次)采集了中国科学院天地科学园区内大气中 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 样品各40个和降尘样品12个,采样时间2014年1、4、7、10月,每个月份连续采集10 d.采样点设在办公楼楼顶,距离地面约30 m.采样前后将石英纤维滤膜(Munktell Inc. Sweden, $\varphi 102\ mm$)置于恒温恒湿($25\ ^\circ C \pm 2\ ^\circ C$, $52\% \pm 2\%$)的干燥器中平衡24 h,大气颗粒物质量浓度采用重量法^[16]测算.颗粒物及降

尘样品采用高氯酸-氢氟酸-硝酸-电热板体系^[17]进行前处理,定量样品体积至30 mL并转移到聚四氟乙烯样品瓶中,用电感耦合等离子质谱法(ICP-MS, Elan 9000, PerkinElmer Inc. USA)测定其中Cu、Mn、Pb、Ti、V、Cd、Cr、Co、Mo、Ni等10种金属元素含量.

1.2 健康风险评价模型

1.2.1 摄入量估算模型

根据美国环保署建立的评价方法(EPA/540/1-89/002; EPA 540-R-02-002),计算了人体经由呼吸(inhalation)、口入降尘(dust ingestion)和皮肤接触(dermal contact)这3种途径摄入Cd、Cr、Ni、Co、Cu、Mn、Mo、Pb、V的日摄入量,计算公式为式(1)~(3):

$$AD_{inh} = 10^{-6} \times C_{PMs} \times IR_{inh} \times ET \times EF \times ED / (BW \times AT) \quad (1)$$

$$AD_{ing} = C_{dust} \times IR_{ing} \times ET \times EF \times ED / (BW \times AT \times 2.4 \times 10^7) \quad (2)$$

$$AD_{dec} = C_{dust} \times SA \times AF \times ABS \times ET \times EF \times ED / (BW \times AT \times 2.4 \times 10^4) \quad (3)$$

式中, AD_{inh} 、 AD_{ing} 、 AD_{dec} 分别为呼吸、口入降尘、皮肤接触这3种摄入方式的日摄入量,单位为 $mg \cdot (kg \cdot d)^{-1}$, C_{PMs} 、 C_{dust} 分别为重金属元素在颗粒物($PM_{2.5}$ 和 PM_{10})中的质量浓度和在降尘中的含量,单位分别为 $ng \cdot m^{-3}$ 和 $\mu g \cdot g^{-1}$,公式中 10^{-6} 、 2.4×10^7 及 2.4×10^4 为单位统一系数,其他参数及意义列于表1.

1.2.2 健康风险评价模型

健康风险分为致癌健康风险和非致癌健康风险,非致癌健康风险以危害系数(hazard quotient, HQ)衡量,危害系数定义为某元素日均摄入量(AD)与日参考摄入量(reference doses, RfD)的比值,即:

$$HQ = AD / RfD \quad (4)$$

致癌风险(cancer risk, CR)为某元素日均摄入量(AD)与该元素致癌斜率因子(slope factor, SF)的乘积,即:

$$CR = AD \times SF \quad (5)$$

危害指数(hazard index, HI)为所有参评元素单一摄入方式的危害系数(HQ)之和,HI_s为3种摄入方式的危害指数之和,即:

$$HI = \sum_9 HQ \tag{6}$$

$$HIs = HI_{inh} + HI_{ing} + HI_{der} \tag{7}$$

对于非致癌健康风险,当 HI 或 HIs 值超过 1 时^[13],表明可能会产生非致癌健康风险,数值越大,

风险越高. 对于致癌健康风险,CR 的可接受水平^[13]为 $10^{-6} \sim 10^{-4}$,当 HIs 大于 10^{-4} 时,表示有极高的致癌健康风险,9 种参与健康风险评价的金属元素的 RfD 和 SF 值^[7-9]列于表 2.

表 1 重金属摄入量估算模型应用参数

Table 1 Parameters applied to estimate the intake doses in the heavy metals model					
参数	意义	单位	致癌参考值	非致癌参考值	文献
IR _{inh}	呼吸速率	m ³ ·h ⁻¹	0.98	0.98	[18]
IR _{ing}	口入降尘速率	mg·d ⁻¹	50	50	[18]
SA	暴露皮肤面积	m ² ·d ⁻¹	1.6	1.6	[18]
AF	皮肤黏附系数	g·m ⁻²	0.7	0.7	[18]
ABS	皮肤吸收因子	—	0.01	0.01	[19]
ET	日暴露时间	h·d ⁻¹	3	3	[18]
EF	年暴露频率	d·a ⁻¹	260	260	[18]
ED	持续暴露年限	a	50	40	[19]
AT	平均暴露时间	d	70×365	ED×365	[19]
BW	标准体重	kg	66.2	66.2	[18]

表 2 重金属元素的参考剂量和致癌斜率因子¹⁾

Table 2 Reference doses and slope factors of heavy metals				
元素	RfD _{inh} /mg·(kg·d) ⁻¹	RfD _{ing} /mg·(kg·d) ⁻¹	RfD _{der} /mg·(kg·d) ⁻¹	SF _{inh} /kg·d·mg ⁻¹
Cd	1.00×10 ⁻³	1.00×10 ⁻³	1.00×10 ⁻⁵	6.10×10 ⁰
Cr	2.86×10 ⁻⁵	3.00×10 ⁻³	6.00×10 ⁻⁵	4.10×10 ¹
Ni	2.06×10 ⁻²	2.00×10 ⁻²	5.40×10 ⁻³	8.40×10 ⁻¹
Co	5.71×10 ⁻⁶	3.00×10 ⁻⁴	1.60×10 ⁻²	9.80×10 ⁰
Cu	4.02×10 ⁻²	4.00×10 ⁻²	1.20×10 ⁻²	—
Mn	1.43×10 ⁻⁵	4.60×10 ⁻²	1.84×10 ⁻³	—
Mo	4.95×10 ⁻³	5.00×10 ⁻³	1.90×10 ⁻³	—
Pb	3.52×10 ⁻³	3.50×10 ⁻³	5.25×10 ⁻⁴	—
V	7.00×10 ⁻³	5.04×10 ⁻³	7.00×10 ⁻⁵	—

1) “—”表示没有相关数据

2 结果与讨论

2.1 颗粒物质量浓度与季节变化

北京大气中 PM_{2.5}和 PM₁₀的年均质量浓度分别为 153.40 μg·m⁻³ ± 84.71 μg·m⁻³ 和 232.93 μg·m⁻³ ± 154.54 μg·m⁻³,其值分别为国家《环境空气质量标准 GB 3095-2012》中环境空气二类环境功能区标准限值(PM_{2.5}和 PM₁₀的年均标准值分别为 35 μg·m⁻³和 70 μg·m⁻³)的 5 倍和 3 倍,不难看出,研究区域颗粒物年均质量浓度较高,而有研究表明高浓度的颗粒物及其中含有的污染物会产生较高的人体健康风险^[20-22],本结果与 Tan 等^[23]的研究结果基本一致. PM_{2.5}和 PM₁₀的季均质量浓度对比如图 1 所示,PM_{2.5}的季均质量浓度夏季最小,秋季最高;PM₁₀的季均质量浓度同样也是夏季最小,而冬季最高. PM_{2.5}的日均质量浓度与 PM₁₀的日均质量浓度比值,即 PM_{2.5}/PM₁₀的值介于 0.22 ~ 1.14 之

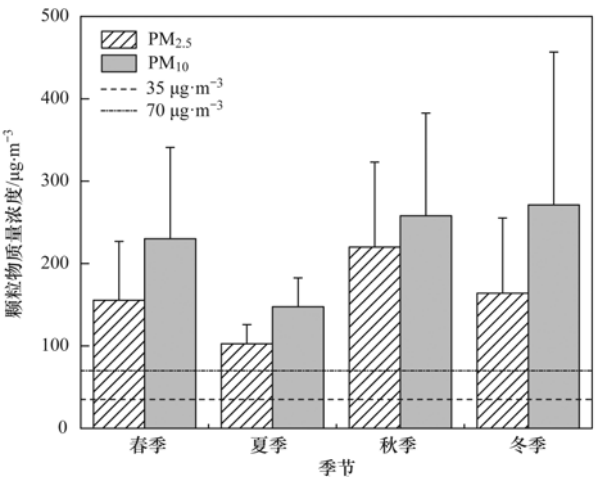


图 1 颗粒物季节质量浓度分布

Fig. 1 Seasonal concentration distribution of particulate matter

间,平均值为 0.74,PM_{2.5}/PM₁₀值秋季(0.91)平均最高,其次为夏季(0.74)、冬季(0.72),春季(0.53)平均最低,说明颗粒物污染源中秋季排放小

于 $2.5\text{ }\mu\text{m}$ 的颗粒物较多,春季排放 $2.5\sim 10\text{ }\mu\text{m}$ 的颗粒物较多,主要因为秋冬季节城市集中供暖逐渐开始,燃煤量加大,经观察采样点附近的枫林绿洲和南沙湾居民区为小区自燃煤集中供暖,污染源比较集中,且由于气候的原因易形成逆温天气不利于污染物的扩散;春季 $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ 的值较低可能是由于北京春季沙尘天气夹带大量的大颗粒^[24];同时,采样地周边奥林匹克森林公园有大量花卉植物,春季相继开放导致花粉等生物大粒子较多, PM_{10} 的质量浓度增加^[25].

2.2 颗粒物的外来输送源分析

HYSPLIT 模型中后向轨迹分析方法在许多颗粒物外来源解析的研究中得到了应用^[26~28],并且其分析结果与其他分析相吻合. 本研究使用 HYSPLIT 模型中后向轨迹方法分析了采样地上空外来颗粒物的来向,图2为2014年的1、4、7和10月期间研究区域上空30、250和500 m高空大气颗粒物148 h的后向轨迹分析(Back trajectories analysis)结果. 如图2所示,在冬季(1月为代表)采样点外来气团主要为俄罗斯南部的1 000~3 000 m高空的长途气团,

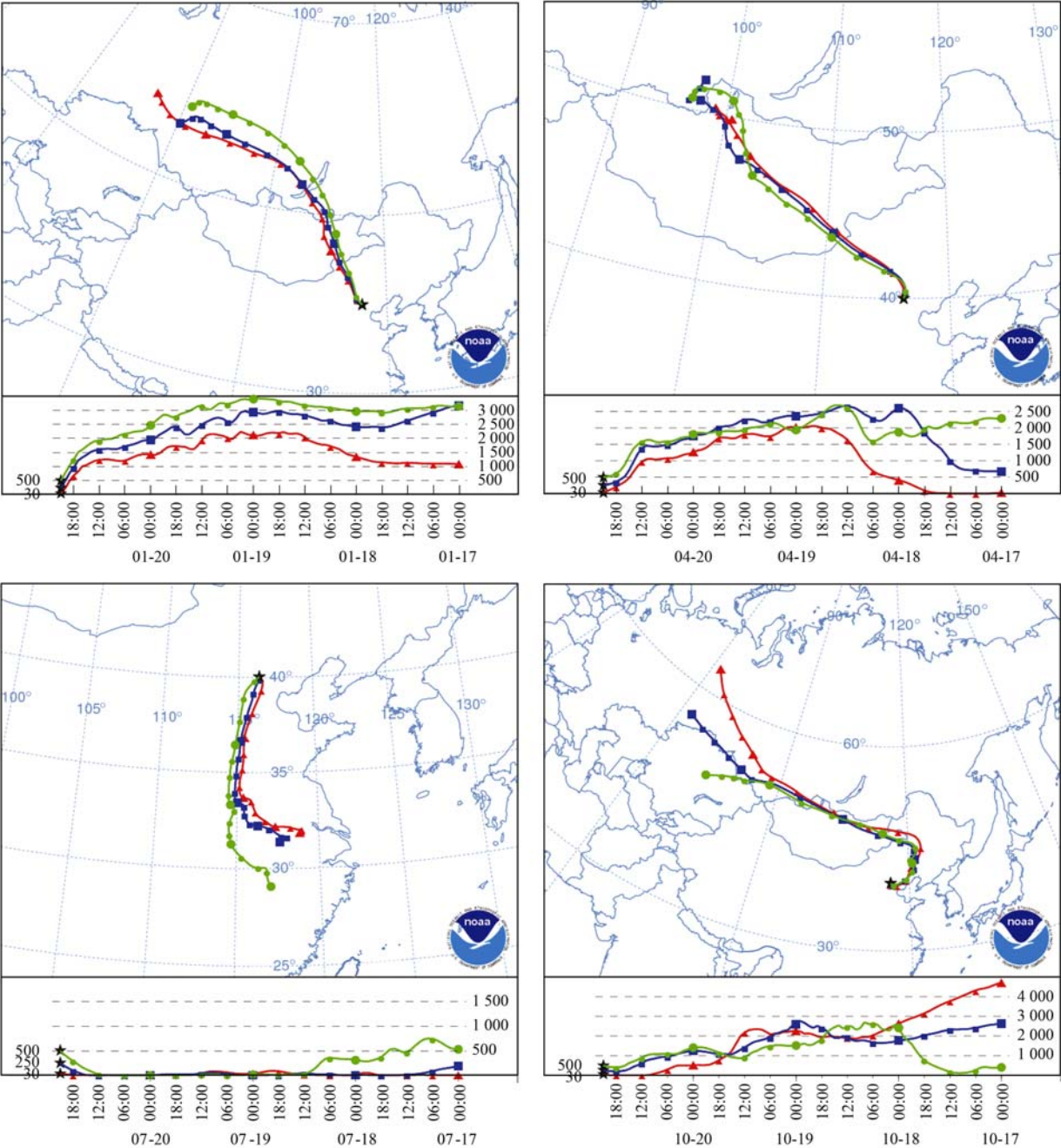


图2 北京颗粒物的后向轨迹分析
Fig. 2 Back trajectory analysis of particulate matter in Beijing

经过蒙古国、我国内蒙古地区,从西北方向抵达北京;春季(4 月为代表)主要为蒙古国1 000 m以下高空气团经过我国内蒙古地区到达北京,这与北京春季多风沙的天气相吻合;夏季(7 月为代表)主要为江苏、河南、山东及河北地区 500 m 高空下的短途气团;秋季(10 月为代表)外来气团由东南方向逐渐转向西北方向,主要为俄罗斯西南部、哈萨克斯坦4 000 m以上高空的气团途径蒙古国、我国内蒙古地区、后转向东北由环渤海方向抵达北京,秋季北京外来气团经过了较多的地方,可能带来了更为复杂的污染物,这也是北京秋冬季节颗粒物及金属元素质量浓度较高的原因之一。

综上可知,研究区域外源颗粒物的来向可归为 4 类,第一类为西北方向,最远可达蒙古、俄罗斯等地经我国内蒙、河北到达终点;第二类为北部方向,最远达欧亚大陆交界处,经我国东北地区到达终点;第三类为西南方向,主要来自我国河南、河北及山东的交汇处;第四类为东南方向的沿海地区,随着夏季风经过河北、天津等到达终点,本研究中 4 类外来源与孔珊珊等^[29]模拟 2015 年 9 月~2016 年 8 月的结果类似,同时与徐祥德等^[30]模拟 2003 年北京地区的结果相似,表明北京外来颗粒物源主要与气候相关,年际气候变化稳定的情况下,北京大气外来颗粒物源较为稳定。

2.3 颗粒物中重金属元素的质量浓度分布
颗粒物中目标元素的年均质量浓度(±标准偏

差)和粒径分布比值($PM_{2.5}/PM_{10}$)见表 3。10 种目标金属元素在 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中具有相似的分布规律,各元素的年均质量浓度从高到低依次为 $Ti > Mn > Pb > Cu > Cr > Ni > V > Cd > Mo > Co$ 。其中 Ti 、 Mn 、 Pb 、 Cu 、 Cr 这 5 种元素占 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中 10 种目标元素总质量浓度的 91.93% 和 92.49%。相比《环境空气质量标准 GB 3095-2012》中标准限值, Pb 的质量浓度低于标准限值($500\text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$),可能与我国自 2000 年 7 月起全面禁止使用含铅汽油且研究区域无显著铅污染源有关; $PM_{2.5}$ 中 Cd 的质量浓度低于标准限值($5.00\text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$),但 PM_{10} 中 Cd 的质量浓度超过标准限值。

从各元素的 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 值的大小可得,55% 以上的重金属元素分布于 $PM_{2.5}$ 中,仅有 Cd 、 Cu 、 Mo 、 V 和 Mn 这 5 种元素在 $PM_{2.5-10}$ 中的占比相对较高($>30\%$), Ti 、 Cr 、 Pb 和 Ni 这 4 种元素 70% 以上分布在 $PM_{2.5}$ 中,与 Tan 等^[23]的研究结论一致。本研究结果与其他研究相比偏低或相近,Tan 等^[23]测定了北京冬季大气颗粒物及重金属元素的质量浓度, $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 的质量浓度($142.3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $193.4\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)略低于本研究,但 Tan 等的研究中 Pb 的质量浓度($281.40\text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)最高,其次是 Ti ($195.10\text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$)和 Mn ($164.00\text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$),其余 7 种元素的质量浓度高低顺序与本研究一致,元素质量浓度高低顺序的差异与季节和采样点周边污染源有关。

表 3 颗粒物及降尘中 10 种金属元素年均含量¹⁾

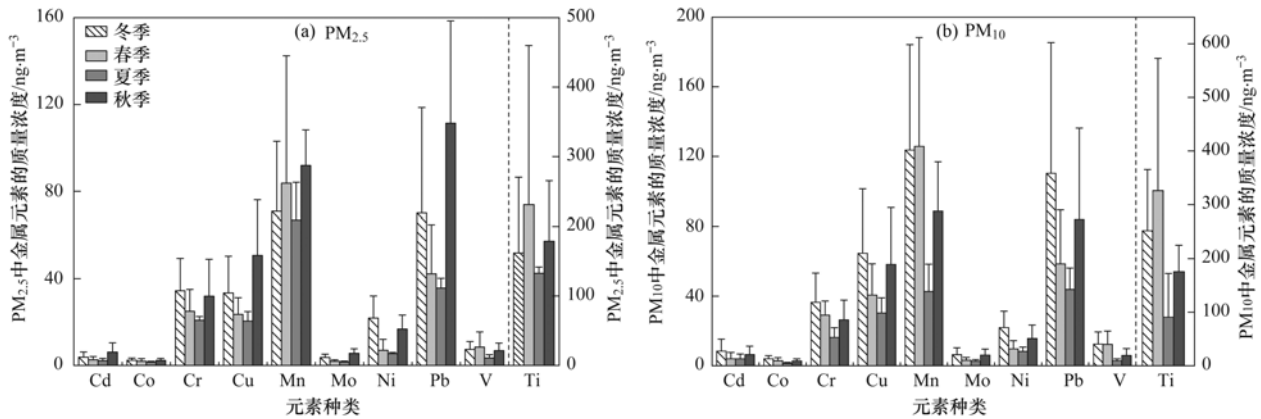
Table 3 Annual mean concentrations of ten heavy metals in particulate matter and dust				
元素	$PM_{2.5}/\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$	$PM_{10}/\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$	降尘/ $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$	$PM_{2.5}/PM_{10}$
Ti	173.42 ± 132.99	238.66 ± 158.33	$2\,651.48 \pm 838.88$	0.73
Cd	3.58 ± 2.52	6.53 ± 5.75	1.89 ± 0.53	0.55
Cr	30.92 ± 14.08	30.39 ± 14.47	62.28 ± 25.26	1.02
Ni	16.77 ± 10.91	16.24 ± 9.38	65.03 ± 31.08	1.03
Co	2.21 ± 1.03	3.21 ± 1.72	32.00 ± 36.17	0.69
Cu	31.57 ± 17.03	53.57 ± 31.93	99.69 ± 51.99	0.59
Mn	74.66 ± 36.51	107.44 ± 58.61	469.99 ± 54.83	0.69
Mo	3.24 ± 1.75	5.16 ± 3.48	5.77 ± 2.21	0.63
Pb	64.59 ± 45.45	85.91 ± 61.41	217.44 ± 43.85	0.75
V	7.13 ± 4.37	10.76 ± 7.14	48.35 ± 9.32	0.66

1) 表格中数据形式为“算术平均值±标准偏差”, $PM_{2.5}/PM_{10}$ 比值为 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中重金属元素质量浓度比值的平均值

2.4 颗粒物中金属元素的季节分布

$PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中 10 种金属元素的季节分布如图 3 所示。从中可以看出,多数元素质量浓度(Mn 、 Ti 、 V 除外)高值出现在秋冬两季,低值出现在春夏两季,与颗粒物的季节分布状态一致。 Mn 、 Ti 两种元

素质量浓度高值出现在春秋两季, V 质量浓度高值出现在冬春两季。元素的季节分布与排放源和扩散条件相关, Mn 、 Ti 两种元素主要来自交通排放^[31, 32], V 主要来自油类燃烧^[33];另外秋冬季节城市逐渐进入采暖期,燃煤量增加,导致颗粒物的排放量增



虚线左侧元素以左纵轴为基准,虚线右侧元素以右纵轴为基准

图3 北京大气 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中 10 种金属元素的季节分布

Fig. 3 Seasonal distribution of heavy metals in $PM_{2.5}$ and PM_{10} in Beijing atmosphere

加,且秋冬季节常出现逆温天气,影响颗粒物的扩散,进而影响了颗粒物中金属元素的分布;夏季频繁的降雨和湿热天气,使得大气边界层升高,对颗粒物的去除作用明显,资料显示,一次中等强度的降雨可使颗粒物质量浓度平均下降 56.3%^[34].

2.5 降尘中重金属元素的含量分布及污染水平

降尘中 10 种目标金属元素的含量见表 3,它们的含量由高到低依次为 $Ti > Mn > Pb > Cu > Ni > Cr > V > Co > Mo > Cd$, 含量最高的元素仍为 Ti, 其含量为 $2561.48 \mu g \cdot g^{-1}$, 占有目标元素的质量分数为 72.57%, 而含量最低的目标元素为 Cd, 其含量为 $0.03 \mu g \cdot g^{-1}$, 仅占有目标元素的 0.16%, 降尘中各元素的含量高低与颗粒物中有差异, 说明降尘的来源不止颗粒物的干沉降^[35]. 对比其与 Wei 等^[20]测定的北京降尘中的对应金属元素含量, 除 Cr 元素外, 其他元素的含量均处于同一水平.

地累积指数 (geo-accumulation index, I_{geo}) 方法由于考虑了地球化学循环过程和人类活动的影响被广泛应用于评价沉积物、土壤及道路降尘中重金属的污染水平^[36~39]. 本文根据前人研究方法^[39, 40]计算了降尘中 10 种金属元素的地累积指数 (I_{geo}). 降尘中 10 种金属元素的 I_{geo} 如图 4 所示, Cd、Co、Cr、Cu、Mn、Mo、Ni、Pb、Ti、V 等元素的 I_{geo} 平均值分别为 4.03、-0.08、-0.80、1.33、-1.18、-0.20、0.43、2.49、-1.34、-1.32. 其中 Co、Cr、Mn、Mo、Ti、V 等 I_{geo} 平均值小于 0, 说明这 6 种重金属元素人为来源干扰较小, 处于“未污染状态”; 而 Cd、Cu、Ni、Pb 等 I_{geo} 平均值大于 0, 且差异较大, 说明这 4 种元素的污染程度各不相同. 其中 Cd 的 I_{geo} 均值高达 4.03, 处于“重污染状态”, Wei 等^[20]的研究表明, 高浓度的 Cd 是高密度的人类活

动引起的, 降尘采样环境周围有交通干道、密集的科研办公楼及住宅小区等人类活动强度较大的设施和建筑, 可能是 Cd 污染重的原因. Pb 的 I_{geo} 均值为 2.49, 处于“中度污染到重度污染之间的状态”, 鉴于其血液毒性, 应该引起足够的重视. Cu 的 I_{geo} 均值为 1.33, 处于“中度污染状态”, 根据前人的研究^[20, 39, 41], 北京地区降尘中, Cu 的含量有增加的趋势, 应引起注意, 本研究也会继续监测其浓度. Ni 的 I_{geo} 均值为 0.43, 处于“轻微污染的状态”.

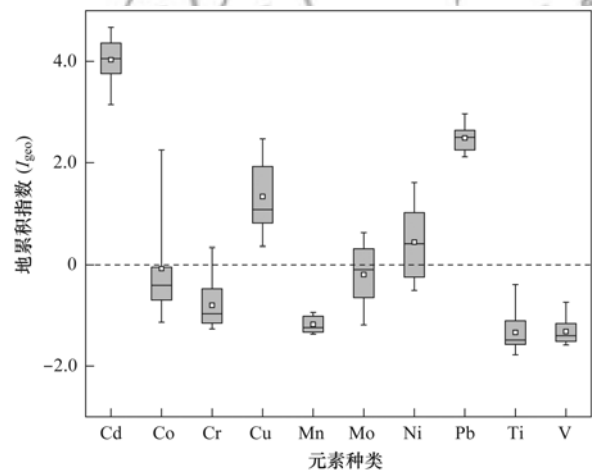


图4 降尘中重金属的地累积指数分布

Fig. 4 Distribution of geo-accumulation index of heavy metals in dust

2.6 重金属健康风险评价

根据公式(1)~(3), 计算了 PM_{10} 及降尘中 Cd、Co、Cr、Cu、Mn、Mo、Ni、Pb、V 等 9 种重金属元素通过呼吸 (inhalation)、口入降尘 (dust ingestion)、皮肤接触 (dermal contact) 这 3 种方式每日摄入量, 并根据公式(4)~(7)计算了在当前日摄入量下引起的健康风险, 包括非致癌健康风险和致癌健康风险两部分, 日摄入剂量和健康风险的计算结果

见表 4 和表 5。

对于非致癌日摄入量,口入降尘是最主要的摄入途径,占总摄入剂量的 73.35%,其次是皮肤接触和呼吸,分别占总摄入剂量的 16.45% 和 10.20%,结果与其他研究相似^[21, 22, 42]。就口入降尘摄入方式而言,日摄入量最大的是 Mn,其摄入剂量为 $3.19 \times 10^{-5} \text{ mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$,日摄入量最小的是 Cd,其摄入量为 $1.25 \times 10^{-7} \text{ mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$,Mn 的口入降尘摄入剂量比 Cd 的口入降尘摄入剂量高 2 个数量级,可见不同的重金属元素其摄入量有较

大的差异。就 3 种摄入途径的日摄入总量而言,Mn 也是摄入总量最多的元素,可达 $4.24 \times 10^{-5} \text{ mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$ 。对于致癌摄入剂量,最大的日均致癌摄入剂量也是口入降尘摄入方式中的 Mn,其平均值为 $2.28 \times 10^{-5} \text{ mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$,日均致癌摄入量最小的是皮肤接触摄入方式中的 Cd,其平均值为 $2.00 \times 10^{-8} \text{ mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$,由于不同的元素其引起健康风险的程度有差异,故仅通过摄入量不能全面的反映重金属元素对摄入人群的健康影响。

表 4 PM₁₀及降尘中重金属的日摄入量/mg·(kg·d)⁻¹

Table 4 Daily intake doses of heavy metals in PM ₁₀ and dust/mg·(kg·d) ⁻¹						
非致癌摄入		呼吸		口入降尘		皮肤接触
重金属	平均值	标准差	平均值	标准差	平均值	标准差
Cd	2.02×10^{-7}	1.83×10^{-7}	1.25×10^{-7}	3.68×10^{-8}	2.80×10^{-8}	8.24×10^{-9}
Co	1.02×10^{-7}	5.45×10^{-8}	2.23×10^{-6}	2.53×10^{-6}	5.00×10^{-7}	5.68×10^{-7}
Cr	9.61×10^{-7}	4.58×10^{-7}	4.31×10^{-6}	1.73×10^{-6}	9.65×10^{-7}	3.87×10^{-7}
Cu	1.69×10^{-6}	1.01×10^{-6}	6.93×10^{-6}	3.57×10^{-6}	1.55×10^{-6}	8.00×10^{-7}
Mn	3.40×10^{-6}	1.85×10^{-6}	3.19×10^{-5}	3.73×10^{-6}	7.14×10^{-6}	8.35×10^{-7}
Mo	1.63×10^{-7}	1.10×10^{-7}	3.99×10^{-7}	1.51×10^{-7}	8.93×10^{-8}	3.38×10^{-8}
Ni	5.14×10^{-7}	2.97×10^{-7}	4.57×10^{-6}	2.08×10^{-6}	1.02×10^{-6}	4.65×10^{-7}
Pb	2.16×10^{-6}	2.05×10^{-6}	1.45×10^{-5}	3.04×10^{-6}	3.24×10^{-6}	6.81×10^{-7}
V	3.05×10^{-7}	2.38×10^{-7}	3.30×10^{-6}	6.33×10^{-7}	7.39×10^{-7}	1.42×10^{-7}
总计	9.50×10^{-6}		6.82×10^{-5}		1.53×10^{-5}	
致癌摄入		呼吸		口入降尘		皮肤接触
重金属	平均值	标准差	平均值	标准差	平均值	标准差
Cd	1.44×10^{-7}	1.30×10^{-7}	8.92×10^{-8}	2.63×10^{-8}	2.00×10^{-8}	5.89×10^{-9}
Co	7.27×10^{-8}	3.89×10^{-8}	1.60×10^{-6}	1.81×10^{-6}	3.57×10^{-7}	4.05×10^{-7}
Cr	6.87×10^{-7}	3.27×10^{-7}	3.08×10^{-6}	1.23×10^{-6}	6.89×10^{-7}	2.76×10^{-7}
Cu	1.21×10^{-6}	7.21×10^{-7}	4.95×10^{-6}	2.55×10^{-6}	1.11×10^{-6}	5.71×10^{-7}
Mn	2.43×10^{-6}	1.32×10^{-6}	2.28×10^{-5}	2.66×10^{-6}	5.10×10^{-6}	5.97×10^{-7}
Mo	1.17×10^{-7}	7.85×10^{-8}	2.85×10^{-7}	1.08×10^{-7}	6.38×10^{-8}	2.41×10^{-8}
Ni	3.67×10^{-7}	2.12×10^{-7}	3.26×10^{-6}	1.48×10^{-6}	7.31×10^{-7}	3.32×10^{-7}
Pb	1.54×10^{-6}	1.47×10^{-6}	1.03×10^{-5}	2.17×10^{-6}	2.31×10^{-6}	4.86×10^{-7}
V	2.18×10^{-7}	1.70×10^{-7}	2.36×10^{-6}	4.52×10^{-7}	5.28×10^{-7}	1.01×10^{-7}
总计	6.79×10^{-6}		4.87×10^{-5}		1.09×10^{-5}	

就健康风险而言,3 种摄入方式非致癌健康风险中,呼吸摄入方式引起的健康风险平均值是其他两种摄入方式的 19.4 和 7.3 倍,呼吸摄入方式引起的非致癌风险从高到低依次为 Mn > Pb > Cu > Cr > Ni > V > Cd > Mo > Co; 口入降尘和皮肤接触摄入方式引起的非致癌健康风险有相同的次序,从高到低依次为 Mn > Pb > Cu > Ni > Cd > V > Co > Mo > Cd,根据不同元素经 3 种摄入方式摄入引起的非致癌健康风险值的不同可以得出,呼吸是重金属元素引起人体健康风险的重要途径,风险值由重金属元素在大气颗粒物和降尘中的质量浓度及日均参考摄入量决定。从风险值的大小角度而言,无论是单一元素的非致癌健康风险(最大单一元素非致

癌健康风险为口入降尘摄入方式中的 Mn 元素,其非致癌健康风险值为 $3.19 \times 10^{-5} \ll 1$) 还是这 3 种摄入方式总非致癌风险(HIs 值为 $3.46 \times 10^{-1} < 1$) 都在安全范围内,但呼吸摄入方式中 Mn 元素,其非致癌健康风险的平均值为 2.38×10^{-1} ,比其他元素高 1~4 个数量级,且其值比较接近于 1,说明若长期暴露在这样的环境中,其对人体健康有一定的危害(表 5)。另外,研究表明 Pb 能够导致肾脏病变、神经病变乃至脑病变^[43];而 Cr 元素能够导致发育中的肾脏和神经病变^[44],尽管本研究中,Pb(1.99×10^{-5})、Cr(6.55×10^{-6})的非致癌健康风险并不突出,但人们却不能够忽视其产生的健康影响。

对于致癌健康风险,由于致癌斜率因子的限制,本研究只考虑了 Cd、Cr、Co、Ni 这 4 种元素经由呼吸摄入方式引起的致癌健康风险,4 种元素的致癌健康风险平均值从高到低依次为 Cr > Cd > Co > Ni,其值分别为 2.82×10^{-5} 、 9.01×10^{-7} 、 7.12×10^{-7} 、

3.08×10^{-7} ,其中,Cd、Co、Ni 的致癌风险值均小于最低的可接受水平 10^{-6} ,致癌风险最高的 Cr 的风险值处在可接受水平范围($10^{-6} \sim 10^{-4}$)内,说明研究区域中,这 4 种元素对成年人的致癌健康风险不高,处在较为安全的范围内。

表 5 PM₁₀ 及降尘中重金属的非致癌和致癌健康风险¹⁾

Table 5 Non-carcinogenic and carcinogenic health risks of heavy metals in PM₁₀ and dust

非致癌健康风险		呼吸		口入降尘		皮肤接触	
重金属	平均值	标准差	平均值	标准差	平均值	标准差	
Cd	2.07×10^{-4}	1.82×10^{-4}	1.25×10^{-4}	3.68×10^{-5}	2.80×10^{-3}	8.24×10^{-4}	
Co	1.78×10^{-2}	9.55×10^{-3}	7.45×10^{-3}	8.45×10^{-3}	3.13×10^{-5}	3.55×10^{-5}	
Cr	3.36×10^{-2}	1.60×10^{-2}	1.44×10^{-3}	5.76×10^{-4}	1.61×10^{-2}	6.45×10^{-3}	
Cu	4.22×10^{-5}	2.51×10^{-5}	1.73×10^{-4}	8.93×10^{-5}	1.29×10^{-4}	6.67×10^{-5}	
Mn	2.38×10^{-1}	1.30×10^{-1}	6.93×10^{-4}	8.11×10^{-5}	3.88×10^{-3}	4.54×10^{-4}	
Mo	3.30×10^{-5}	2.22×10^{-5}	7.97×10^{-5}	3.01×10^{-5}	4.70×10^{-5}	1.78×10^{-5}	
Ni	2.49×10^{-5}	1.44×10^{-5}	2.28×10^{-4}	1.04×10^{-4}	1.89×10^{-4}	8.62×10^{-5}	
Pb	7.72×10^{-4}	5.52×10^{-4}	4.13×10^{-3}	8.69×10^{-4}	6.17×10^{-3}	1.30×10^{-3}	
V	4.86×10^{-5}	3.23×10^{-5}	6.55×10^{-4}	1.25×10^{-4}	1.06×10^{-2}	2.02×10^{-3}	
HI	2.91×10^{-1}		1.50×10^{-2}		3.99×10^{-2}		
致癌健康风险		呼吸		口入降尘		皮肤接触	
重金属	平均值	标准差	平均值	标准差	平均值	标准差	
Cd	9.01×10^{-7}	7.93×10^{-7}	—	—	—	—	
Co	7.12×10^{-7}	3.82×10^{-7}	—	—	—	—	
Cr	2.82×10^{-5}	1.34×10^{-5}	—	—	—	—	
Ni	3.08×10^{-7}	1.78×10^{-7}	—	—	—	—	
总计	3.01×10^{-5}		—		—		

1) “—”表示没有相关数据

3 结论

(1)研究区域大气 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的年均质量浓度分别为 $153.40 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} \pm 84.71 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $232.93 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3} \pm 154.54 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,是《环境空气质量标准 GB 3095-2012》中年均浓度限值的 5 倍和 3 倍,且以粒径小于 2.5 μm 的颗粒物(PM_{2.5})为主. 外源颗粒物来向与气候相关,随季节的变化而改变.

(2)研究区域大气颗粒物和降尘中优势元素均为 Ti、Mn 和 Pb,而 Co、Mo、Cd 最少.

(3)研究区域大气颗粒物中多数目标重金属元素质量浓度高值出现在秋冬两季,低值出现在春夏两季,与颗粒物的季节分布状态一致.

(4)研究区域降尘中多数元素处于未污染状态,Ni、Cu、Pb、Cd 这 4 种元素污染水平依次递增,应该引起注意.

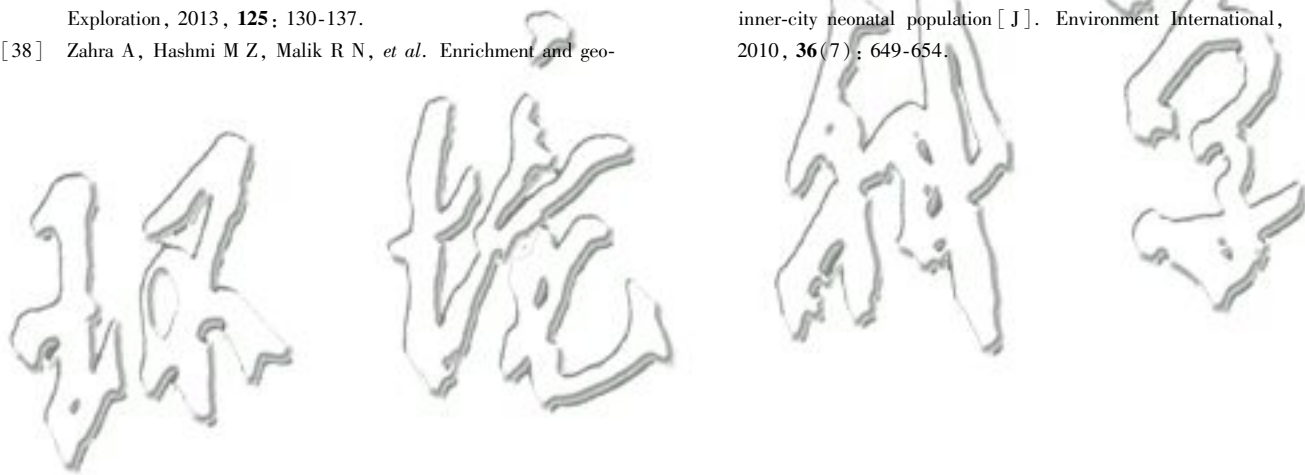
(5)健康风险评价中,目标金属元素的致癌和非致癌健康风险均在安全范围内,短期内对成人的健康无明显影响,但并不能忽略长期暴露于这种环境中引发的健康风险.

参考文献:

[1] 杨婧,郭晓爽,滕曼,等. 我国大气细颗粒物中金属污染特征及来源解析研究进展[J]. 环境化学, 2014, **33**(9): 1514-1521.
Yang J, Guo X S, Teng M, *et al.* A review of atmospheric fine particulate matter associated trace metal pollutants in China[J]. Environmental Chemistry, 2014, **33**(9): 1514-1521.
[2] Holgate S T, Sandstrom T, Frew A J, *et al.* Health effects of acute exposure to air pollution. Part I: Healthy and asthmatic subjects exposed to diesel exhaust [J]. Research Report Health Effects Institute, 2003, **112**: 1-30.
[3] Kappos A D, Bruckmann P, Eikmann T, *et al.* Health effects of particles in ambient air[J]. International Journal of Hygiene and Environmental Health, 2004, **207**(4): 399-407.
[4] Pope III C A, Dockery D W. Health effects of fine particulate air pollution: lines that connect[J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2006, **56**(6): 709-742.
[5] Vanos J K, Hebborn C, Cakmak S. Risk assessment for cardiovascular and respiratory mortality due to air pollution and synoptic meteorology in 10 Canadian cities[J]. Environmental Pollution, 2014, **185**: 322-332.
[6] Zhang L L, Jin X W, Johnson A C, *et al.* Hazard posed by metals and as in PM_{2.5} in air of five megacities in the Beijing-Tianjin-Hebei region of China during APEC[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2016, **23**(17): 17603-17612.
[7] Yu L D, Wang G F, Zhang R J, *et al.* Characterization and

- source apportionment of $PM_{2.5}$ in an urban environment in Beijing [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2013, **13**(2): 574-583.
- [8] Tao J, Gao J, Zhang L, *et al.* $PM_{2.5}$ pollution in a megacity of southwest China: source apportionment and implication [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14**(16): 8679-8699.
- [9] Geng N B, Wang J, Xu Y F, *et al.* $PM_{2.5}$ in an industrial district of Zhengzhou, China: chemical composition and source apportionment [J]. *Particology*, 2013, **11**(1): 99-109.
- [10] Ergenekon P, Ulutaş K. Heavy metal content of total suspended air particles in the heavily industrialized town of Gebze, Turkey [J]. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2014, **92**(1): 90-95.
- [11] Choung S, Oh J, Han W S, *et al.* Comparison of physicochemical properties between fine ($PM_{2.5}$) and coarse airborne particles at cold season in Korea [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **541**: 1132-1138.
- [12] Jiménez A S, Heal M R, Beverland I J. Correlations of particle number concentrations and metals with nitrogen oxides and other traffic-related air pollutants in Glasgow and London [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **54**: 667-678.
- [13] Addo M A, Darko E O, Gordon C, *et al.* Human health risk assessment of airborne trace elements for human receptors in the vicinity of the diamond cement factory, Volta Region, Ghana [J]. *International Journal of Sustainable Development and Planning*, 2016, **11**(4): 522-536.
- [14] Li F, Zhang J D, Huang J H, *et al.* Heavy metals in road dust from Xiandao district, Changsha city, China: characteristics, health risk assessment, and integrated source identification [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(13): 13100-13113.
- [15] Nduka J K, Amuka J P O, Onwuka J C, *et al.* Human health risk assessment of lead, manganese and copper from scrapped car paint dust from automobile workshops in Nigeria [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(20): 20341-20349.
- [16] HJ 618-2011, 环境空气 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 的测定 重量法[S].
HJ 618-2011, Determination of atmospheric particles PM_{10} and $PM_{2.5}$ in ambient air by gravimetric method[S].
- [17] HJ 657-2013, 空气和废气 颗粒物中铅等金属元素的测定 电感耦合等离子体质谱法[S].
HJ 657-2013, Ambient air and stationary source emission-determination of metals in ambient particulate matter-inductively coupled plasma/mass spectrometry (ICP-MS) [S].
- [18] 赵秀阁, 段小丽. 中国人群暴露参数手册(成人卷) [M]. 北京: 中国环境科学出版社, 2014. 3-26.
Zhao X G, Duan X L. Exposure factors handbook of Chinese population (Adults) [M]. Beijing: China Environmental Press, 2014. 3-26.
- [19] US EPA. Exposure factors handbook: 2011 edition [M]. Washington, DC: National Center for Environmental Assessment Office of Research and Development, 2011. 4-21.
- [20] Wei X, Gao B, Wang P, *et al.* Pollution characteristics and health risk assessment of heavy metals in street dusts from different functional areas in Beijing, China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2015, **112**: 186-192.
- [21] Ferreira-Baptista L, De Miguel E. Geochemistry and risk assessment of street dust in Luanda, Angola: a tropical urban environment [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(25): 4501-4512.
- [22] Chen H, Lu X W, Li L Y. Spatial distribution and risk assessment of metals in dust based on samples from nursery and primary schools of Xi'an, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **88**: 172-182.
- [23] Tan J H, Duan J C, Zhen N J, *et al.* Chemical characteristics and source of size-fractionated atmospheric particle in haze episode in Beijing [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **167**: 24-33.
- [24] 樊守彬, 田刚, 秦建平, 等. 道路降尘与扬尘 PM_{10} 排放的关系研究 [J]. *环境科学与技术*, 2012, **35**(1): 159-163.
Fan S B, Tian G, Qin J P, *et al.* Relationship of road dust fall and fugitive PM_{10} emission [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **35**(1): 159-163.
- [25] 刘杰, 杨鹏, 吕文生, 等. 北京城 6 区大气颗粒物质量浓度变化规律研究 [J]. *安全与环境学报*, 2015, **15**(6): 333-339.
Liu J, Yang P, Lv W S, *et al.* On the mass concentration variations of the particulate matters in the six downtown districts of Beijing [J]. *Journal of Safety and Environment*, 2015, **15**(6): 333-339.
- [26] Fang G C, Zhuang Y J, Kuo Y C, *et al.* Ambient air metallic elements (Mn, Fe, Zn, Cr, Cu, and Pb) pollutants sources study at a rural resident area near taichung thermal power plant and industrial park: 6-month observations [J]. *Environmental Earth Sciences*, 2016, **75**: 587.
- [27] Pan Y P, Tian S L, Li X R, *et al.* Trace elements in particulate matter from metropolitan regions of Northern China: sources, concentrations and size distributions [J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **537**: 9-22.
- [28] Fang G C, Kuo Y C, Zhuang Y J. Source analysis of trace metal pollution received at harbor, airport and farmland locations in central Taiwan [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2015, **15**(5): 1774-1786.
- [29] 孔珊珊, 刘厚凤, 陈义珍. 基于后向轨迹模式对北京市 $PM_{2.5}$ 来源的探讨 [J]. *中国环境管理*, 2017, **9**(1): 86-90.
Kong S S, Liu H F, Chen Y Z. Discussion on the source distribution and transmission characteristics of $PM_{2.5}$ in Beijing based on backward trajectory model [J]. *Chinese Journal of Environmental Management*, 2017, **9**(1): 86-90.
- [30] 徐祥德, 周秀骥, 施晓晖. 城市群落大气污染源影响的空间结构及尺度特征 [J]. *中国科学 D 辑 地球科学*, 2005, **35**(SI): 1-19.
Xu X D, Zhou X J, Shi X H. Spatial structure and scale feature of the atmospheric pollution source impact of city agglomeration [J]. *Science in China Series D Earth Sciences*, 2005, **48**(SII): 1-24.
- [31] Fabretti J F, Sauret N, Gal J F, *et al.* Elemental characterization and source identification of $PM_{2.5}$ using positive matrix factorization: the malraux road tunnel, nice, France [J]. *Atmospheric Research*, 2009, **94**(2): 320-329.
- [32] Gietl J K, Lawrence R, Thorpe A J, *et al.* Identification of brake wear particles and derivation of a quantitative tracer for brake dust at a major road [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(2): 141-146.

- [33] Pey J, Querol X, Alastuey A. Discriminating the regional and urban contributions in the North-Western Mediterranean: PM levels and composition[J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44** (13): 1587-1596.
- [34] 郭家瑜, 张英杰, 郑海涛, 等. 北京 2015 年大气细颗粒物的空间分布特征及变化规律[J]. *环境科学学报*, 2016, doi: 10.13671/j. hjkxxb. 2016. 0434.
- Guo J Y, Zhang S J, Zheng H T, *et al.* The characteristics of Spatial distribution and variations of atmospheric fine particles in Beijing in 2015[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2016, doi: 10.13671/j. hjkxxb. 2016. 0434.
- [35] Zhu L J, Liu J K, Cong L, *et al.* Spatiotemporal characteristics of particulate matter and dry deposition flux in the Cuihu Wetland of Beijing[J]. *PLoS One*, 2016, **11**(7): e0158616.
- [36] Lu X W, Wang L J, Lei K, *et al.* Contamination assessment of copper, lead, zinc, manganese and nickel in street dust of Baoji, NW China[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **161** (2-3): 1058-1062.
- [37] Hasan A B, Kabir S, Reza A H M S, *et al.* Enrichment factor and geo-accumulation index of trace metals in sediments of the ship breaking area of Sitakund Upazilla (Bhatary-Kumira), Chittagong, Bangladesh [J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2013, **125**: 130-137.
- [38] Zahra A, Hashmi M Z, Malik R N, *et al.* Enrichment and geo-accumulation of heavy metals and risk assessment of sediments of the Kurang Nallah-feeding tributary of the Rawal Lake Reservoir, Pakistan[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **470-471**: 925-933.
- [39] Zheng X X, Zhao W J, Yan X, *et al.* Pollution characteristics and health risk assessment of airborne heavy metals collected from Beijing bus stations[J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2015, **12**(8): 9658-9671.
- [40] 中国环境监测总站. 中国土壤元素背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990. 330-482.
- [41] Tanner P A, Ma H L, Yu P K N. Fingerprinting metals in urban street dust of Beijing, Shanghai, and Hong Kong [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **42** (19): 7111-7117.
- [42] Zheng N, Liu J S, Wang Q C, *et al.* Heavy metals exposure of children from stairway and sidewalk dust in the smelting district, Northeast of China [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44** (27): 3239-3245.
- [43] Caravanos J, Weiss A L, Blaise M J, *et al.* A survey of spatially distributed exterior dust lead loadings in New York City [J]. *Environmental Research*, 2006, **100**(2): 165-172.
- [44] Jones E A, Wright J M, Rice G, *et al.* Metal exposures in an inner-city neonatal population [J]. *Environment International*, 2010, **36**(7): 649-654.



CONTENTS

Emission Characteristics of Vehicles from National Roads and Provincial Roads in China	WANG Ren-jie, WANG Kun, ZHANG Fan, <i>et al.</i> (3553)
Impact of Gustly Northwesterly Winds on Biological Particles in Winter in Beijing	YAN Wei-zhuo, WANG Bu-ying, Oscar Fajardo Montana, <i>et al.</i> (3561)
Characteristics of Particulate Matter and Carbonaceous Species in Ambient Air at Different Air Quality Levels	FANG Xiao-zhen, WU Lin, ZHANG Jing, <i>et al.</i> (3569)
Distribution and Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particulate Matter and Dust	WANG Yong-xiao, CAO Hong-ying, DENG Ya-jia, <i>et al.</i> (3575)
Observational Study of Air Pollution Complex in Nanjing in June 2014	HAO Jian-qi, GE Bao-zhu, WANG Zi-fa, <i>et al.</i> (3585)
Distribution Characteristics of Air Pollutants and Aerosol Chemical Components Under Different Weather Conditions in Jiaxing	WANG Hong-lei, SHEN Li-juan, TANG Qian, <i>et al.</i> (3594)
Observations of Reactive Nitrogen and Sulfur Compounds During Haze Episodes Using a Demuder-based System	TIAN Shi-li, LIU Xue-jun, PAN Yue-peng, <i>et al.</i> (3605)
Analysis of Anthropogenic Reactive Nitrogen Emissions and Its Features on a Prefecture-level City in Fujian Province	ZHANG Qian-hu, GAO Bing, HUANG Wei, <i>et al.</i> (3610)
Levels, Sources, and Health Risk Assessments of Heavy Metals in Indoor Dust in a College in the Pearl River Delta	CAI Yun-mei, HUANG Han-shu, REN Lu-lu, <i>et al.</i> (3620)
Influence of Noble Metal and Promoter Capacity in CDPF on Particulate Matter Emissions of Diesel Bus	TAN Pi-qiang, ZHONG Yi-mei, ZHENG Yuan-fei, <i>et al.</i> (3628)
Spatial Distribution, Source and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in the Coastal Sediments of Northern Dongying City	LIU Qun-qun, MENG Fan-ping, WANG Fei-fei, <i>et al.</i> (3635)
Remote Sensing of Chlorophyll-a Concentrations in Lake Hongze Using Long Time Series MERIS Observations	LIU Ge, LI Yun-mei, LÜ Heng, <i>et al.</i> (3645)
Analysis of Spatial Variability of Water Quality and Pollution Sources in Lihe River Watershed, Taihu Lake Basin	LIAN Hui-shu, LIU Hong-bin, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (3657)
Distribution of Different Phosphorus Species in Water and Sediments from Gaocun to Lijin Reaches of the Yellow River	ZHAO Tun, JIA Yan-xiang, JIANG Bing-qi, <i>et al.</i> (3666)
Characterization of Phosphorus Fractions in the Soil of Water-Level-Fluctuation Zone and Unflooded Bankside in Pengxi River, Three Gorges Reservoir	 HUANG Jun-jie, WANG Chao, FANG Bo, <i>et al.</i> (3673)
Distribution of <i>n</i> -alkanes from Lake Wanghu Sediments in Relation to Environmental Changes	SHEN Bei-bei, WU Jing-lu, ZENG Hai-ao, <i>et al.</i> (3682)
Hydrological Performance Assessment of Permeable Parking Lots in High Water Areas	JIN Jian-rong, LI Tian, WANG Sheng-si, <i>et al.</i> (3689)
Analysis of the Characteristics of Groundwater Quality in a Typical Vegetable Field, Northern China	YU Jing, YU Min-da, LAN Yan, <i>et al.</i> (3696)
Composition, Evolution, and Complexation of Dissolved Organic Matter with Heavy Metals in Landfills	XIAO Xiao, HE Xiao-song, XI Bei-dou, <i>et al.</i> (3705)
Correlations Between Substrate Structure and Microbial Community in Subsurface Flow Constructed Wetlands	LI Zhen-ling, DING Yan-li, BAI Shao-yuan, <i>et al.</i> (3713)
Impact of Talc Ore Mining on Periphyton Community Structure and Water Environment	ZANG Xiao-miao, ZHANG Yuan, LIN Jia-ning, <i>et al.</i> (3721)
Physiological Characteristics and Nitrogen and Phosphorus Uptake of <i>Myriophyllum aquaticum</i> Under High Ammonium Conditions	LIU Shao-bo, RAN Bin, ZENG Guan-jun, <i>et al.</i> (3731)
Removal of Algal Organic Matter and Control of Disinfection By-products by Powder Activated Carbon	MIAO Yu, ZHAI Hong-yan, YU Shan-shan, <i>et al.</i> (3738)
Preparation and Pb ²⁺ Electrosorption Characteristics of Graphene Hydrogels Electrode	WANG Yao, JI Qing-hua, LI Yong-feng, <i>et al.</i> (3747)
Influence of Current Densities on Mineralization of Indole by BDD Electrode	ZHANG Jia-wei, WANG Ting, ZHENG Tong, <i>et al.</i> (3755)
Mechanism of Photochemical Degradation of MC-LR by Pyrite	ZHOU Wei, FANG Yan-fen, ZHANG Yu, <i>et al.</i> (3762)
Enhanced Treatment of Printing and Dyeing Wastewater Using H ₂ O ₂ -Biochemical Method	YUE Xiu, TANG Jia-li, YU Guang-ping, <i>et al.</i> (3769)
Effects of Influent C/N Ratios on Denitrifying Phosphorus Removal Performance Based on ABR-MBR Combined Process	WU Peng, CHENG Chao-yang, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (3781)
Start-up of a High Performance Nitrosation Reactor Through Continuous Growth of Aerobic Granular Sludge	GAO Jun-jun, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (3787)
Activated Sludge Mineralization and Solutions in the Process of Zero-Valent Iron Autotrophic Denitrification	ZHANG Ning-bo, LI Xiang, HUANG Yong, <i>et al.</i> (3793)
Analysis of Respirogram Characteristics of Filamentous Bulking Caused by Low Dissolved Oxygen	MA Zhi-bo, LI Zhi-hua, YANG Cheng-jian, <i>et al.</i> (3801)
Aerobic Degradation and Microbial Community Succession of Coking Wastewater with Municipal Sludge	LIU Guo-xin, WU Hai-zhen, SUN Sheng-li, <i>et al.</i> (3807)
Rapid Culture, Microbial Community Structure, and Diversity of High-Efficiency Denitrifying Bacteria	MENG Ting, YANG Hong (3816)
Abundance of Cell-associated and Cell-free Antibiotic Resistance Genes in Two Wastewater Treatment Systems	ZHANG Yan, CHEN Lü-jun, XIE Hui, <i>et al.</i> (3823)
Effect of Biochar on CH ₄ and N ₂ O Emissions from Lou Soil	ZHOU Feng, XU Chen-yang, WANG Yue-ling, <i>et al.</i> (3831)
Spatial Variability of C-to-N Ratio of Farmland Soil in Jiangxi Province	JIANG Ye-feng, GUO Xi, SUN Kai, <i>et al.</i> (3840)
Influence of Calcium Carbonate and Biochar Addition on Soil Nitrogen Retention in Acidified Vegetable Soil	YU Ying-liang, YANG Lin-zhang, Alfred Oduor Odindo, <i>et al.</i> (3451)
Comparison of Soil Hydraulic Characteristics Under the Conditions of Long-term Land Preparation and Natural Slope in Longtan Catchment of the Loess Hilly Region	 FENG Tian-jiao, WEI Wei, CHEN Li-ding, <i>et al.</i> (3860)
Effects of Organic Carbon Content on the Residue and Migration of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Soil Profiles	 FEI Jia-jia, ZHANG Zhi-huan, WAN Tian-tian, <i>et al.</i> (3871)
Major Factors Influencing the Cd Content and Seasonal Dynamics in Different Land Cover Soils in a Typical Acid Rain Region	LIU Xiao-li, ZENG Zhao-xia, TIE Bai-qing, <i>et al.</i> (3882)
Application Potential and Assessment of Metallurgical Contaminated Soil After Remediation in Tongguan of Shaanxi	WANG Jiao, XIAO Ran, LI Rong-hua, <i>et al.</i> (3888)
Effects and Mechanisms of In-situ Cement Solidification/Stabilization on a Pb-, Zn-, and Cd-Contaminated Site at Baiyin, China	LÜ Hao-yang, FEI Yang, WANG Ai-qin, <i>et al.</i> (3897)
Concentrations and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Soils and Vegetables influenced by Facility Cultivation	 JIN Xiao-pei, JIA Jin-pu, BI Chun-juan, <i>et al.</i> (3907)
Effects of Arbuscular Mycorrhizal Fungi on the Growth and Uptake of La and Pb by Maize Grown in La and Pb-Contaminated Soil	CHANG Qing, GUO Wei, PAN Liang, <i>et al.</i> (3915)
Effects of Straw Incorporation on Cadmium Accumulation and Subcellular Distribution in Rice	DUAN Gui-lan, WANG Fang, CEN Kuang, <i>et al.</i> (3927)
Redox Transformation of Arsenic and Antimony in Soils Mediated by <i>Pantoea</i> sp. IMH	 ZHANG Lin, LU Jin-suo (3937)
Adsorption Characteristics of Biochar on Heavy Metals (Pb and Zn) in Soil	WANG Hong, XIA Wen, LU Ping, <i>et al.</i> (3944)
Characteristics of <i>Enteromorpha prolifera</i> Biochars and Their Adsorption Performance and Mechanisms for Cr(VI)	CHEN You-yuan, HUI Hong-xia, LU Shuang, <i>et al.</i> (3953)
External Phosphorus Adsorption and Immobility with the Addition of Ignited Water Purification Sludge	YU Sheng-nan, LI Yong, LI Da-peng, <i>et al.</i> (3962)
Preparation of Adsorption Ceramsite Derived from Sludge Biochar	LI Jie, PAN Lan-jia, YU Guang-wei, <i>et al.</i> (3970)
Construction of Graphitic Carbon Nitride-Bismuth Oxyiodide Layered Heterostructures and Their Photocatalytic Antibacterial Performance	 HUANG Jian-hui, LIN Wen-ting, XIE Li-yan, <i>et al.</i> (3979)