

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第3期

Vol.39 No.3

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

长三角典型站点冬季大气 $PM_{2.5}$ 中 OC、EC 污染特征	康晖, 朱彬, 王红磊, 施双双 (961)
南京北郊能见度变化中二次无机盐消光的重要作用	于超, 于兴娜, 赵天良, 张蕾, 马国煦, 王咏薇 (972)
常州夏冬季 $PM_{2.5}$ 中无机组分昼夜变化特征与来源解析	刘佳澍, 顾远, 马帅帅, 苏亚兰, 叶招莲 (980)
天津市春季道路降尘 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 中的元素特征	王士宝, 姬亚芹, 李树立, 张伟, 张蕾 (990)
北京、新乡夏季大气颗粒物中重金属的粒径分布及人体健康风险评价	张鑫, 赵小曼, 孟雪洁, 王小颖, 杨帅, 许晓鹏, 王书亭, 谷超, 王梦蕾, 任浩, 张子洋, 闫广轩, 曹治国, 王跃思 (997)
山西省武乡县城大气 $PM_{2.5}$ 痕量重金属的生态和健康风险分析	郭墨霞, 耿红, 张晋宏, 周欢, 彭妍, 翟帅莹, 李金磊, 陈雨杉 (1004)
隧道中机动车排放颗粒物及无机元素特征	李凤华, 张衍杰, 张静, 袁远, 吴琳, 毛洪钧 (1014)
河南省 2013 年大气氨排放清单建立及分布特征	王琛, 尹沙沙, 于世杰, 卫军华, 谷幸珂, 官密秘, 张瑞芹 (1023)
城市道路行道树池裸地扬尘排放特征	李贝贝, 秦建平, 祁丽荣, 杨涛, 曲松, 石爱军, 黄玉虎 (1031)
DOC 和 CDPF 对柴油公交车颗粒物组分影响	楼狄明, 耿小雨, 宋博, 谭丕强, 胡志远, 刘继跃 (1040)
南水北调中线工程总干渠河南段原水中消毒副产物前体物变化规律	黄飘逸, 徐斌, 郭东良 (1046)
广州市流溪河水体中 6 种内分泌干扰素时空分布特征与环境风险	樊静静, 王赛, 唐金鹏, 戴玉女, 王林, 龙胜兴, 何文祥, 刘帅磊, 王佳希, 杨扬 (1053)
西藏拉萨河流域河水主要离子化学特征及来源	张清华, 孙平安, 何师意, 文化, 刘明隆, 于爽 (1065)
太子河下游河流硝酸盐来源及其迁移转化过程	李艳利, 杨梓睿, 尹希杰, 孙伟 (1076)
海南岛北部海湾沉积物重金属来源、分布主控因素及生态风险评价	曾维特, 杨永鹏, 张东强, 刘兵, 张航飞, 吴多誉, 王晓林 (1085)
天津农田重金属污染特征分析及降雨沥浸影响	许萌萌, 刘爱凤, 师荣光, 蓝靖, 田永, 赵宗山 (1095)
太湖出入湖河道与湖体水质季节差异分析	查慧铭, 朱梦圆, 朱广伟, 杨周生, 许海, 沈睿杰, 钟春妮 (1102)
春季敏感时期三峡水库典型支流沉积物-水界面氮释放特性	李欣, 宋林旭, 纪道斌, 刘德富, 苏青青, 吕林鹏, 王雄, 黄亚男, 吴庆 (1113)
不同湖泊入湖河流沉积物可转化态氮的空间分布及其影响因素	周睿, 袁旭音, Marip Ja Bawk, 于辉辉, 章琪, 唐豆豆 (1122)
水文气象因素对东南山区水库硅藻异常增殖的影响	孙祥, 朱广伟, 笄文怡, 余茂蕾, 杨文斌, 朱梦圆, 许海, 国超旋, 余丽 (1129)
深水型水库热分层诱导水质及真菌种群结构垂向演替	商潘路, 陈胜男, 黄廷林, 张海涵, 康鹏亮, 王跃, 钊珍芳, 刘彤彤 (1141)
太湖竺山湾春季浮游细菌群落结构及影响因素	薛银刚, 刘菲, 孙萌, 江晓栋, 耿金菊, 滕加泉, 谢文理, 张皓, 陈心一 (1151)
分层型水源水库沉积物需氧量特性	苏露, 黄廷林, 李楠, 张海涵, 文刚, 李扬, 陈家炜, 王晓江 (1159)
污水氮浓度和 NH_4^+ / NO_3^- 比对粉绿狐尾藻去氮能力和植物体氮组分的影响	马永飞, 杨小珍, 赵小虎, 胡承孝, 谭启玲, 孙学成, 吴金水 (1167)
水体氮磷营养负荷对苦草净化能力和光合荧光特性的影响	周裔文, 许晓光, 韩睿明, 周晓红, 冯德友, 李致春, 王国祥 (1180)
化学预氧化耦合生物锰氧化对水中有机物的去除	菅之奥, 常洋洋, 王立新, 梁金松, 柏耀辉 (1188)
铜铁氧体法处理模拟染料废水	韩志勇, 韩昆, 郝昊天, 于建伟, 石宝友, 庄媛, 孔岩 (1195)
草酸根对 α -FeOOH 多相 UV-Fenton 催化能力的增效实验	苗笑增, 戴慧旺, 陈建新, 蒋柏泉, 龚炯 (1202)
生物质基纳米 HZO 杂化材料的研制及其除磷特性	邱慧, 秦智峰, 刘凤玲, 梁晨, 宋明霞, 许正文, 管益东 (1212)
铁锰氧化物/生物炭复合材料对水中硝酸根的吸附特性	郑晓青, 韦安磊, 张一璇, 史良干, 张潇 (1220)
PAAm/HACC 半互穿网络水凝胶的制备及其对水中腐殖酸的吸附性能	刘泽琨, 周少奇, 马福臻 (1233)
二氧化钛对地下水砷的吸附及再生回用	马文静, 阎莉, 张建锋 (1241)
一体式絮体-超滤工艺去除腐殖酸效能与机制	李文江, 于莉芳, 苗瑞, 马百文 (1248)
中国城镇污水处理厂温室气体排放时空分布特征	闫旭, 邱德志, 郭东丽, 齐星昊, 郑仕侃, 程轲, 孙剑辉, 刘建伟 (1256)
硝化耦合 CANON 的铁锰氮生物净化工艺启动与运行	李冬, 曹瑞华, 杨航, 王艳菊, 吕赛赛, 张杰 (1264)
纤维载体的生物膜 CANON 反应器的启动特性	顾澄伟, 陈方敏, 李祥, 黄勇, 尤星怡, 金润, 张文静, 董石语 (1272)
$DO/NH_4^+ -N$ 实现短程硝化过程中生物膜特性	赵青, 卞伟, 李军, 王文啸, 孙艺齐, 梁东博, 张舒燕 (1278)
AUSB 中置曝气对 CANON 颗粒污泥工艺的影响	成朔, 李冬, 张杰, 李帅, 曹瑞华, 吕赛赛 (1286)
有机碳源对启动及运行 CANON 颗粒污泥工艺的影响	李冬, 王艳菊, 吕育锋, 曹瑞华, 李帅, 张杰 (1294)
中试一体式部分亚硝化-厌氧氨氧化反应器的启动与区域特性	周正, 王凡, 林兴, 董石语, 朱强, 李祥, 黄勇 (1301)
硝化液回流比对 ABR-MBR 工艺反硝化除磷效能的影响	吕亮, 尤雯, 张敏, 吴鹏, 沈耀良 (1309)
磁性纳米铁对厌氧颗粒污泥特性及其微生物群落的影响	宿程远, 郑鹏, 卢宇翔, 袁秋红, 赵力剑, 廖黎明, 黄智 (1316)
好氧颗粒污泥系统中溶解性微生物代谢产物的特征及主要组分	杨丹, 刘东方, 杜丽琼, 黄文力 (1325)
环丙沙星对膜生物反应器中微生物群落及抗性基因的影响	戴琦, 刘锐, 梁玉婷, 舒小铭, 徐灿灿, 陈吕军 (1333)
CEM-UF 组合膜-硝化/反硝化系统处理低 C/N 废水及种群结构分析	邢金良, 张岩, 陈昌明, 张博康, 郭威, 马翔山 (1342)
磷对混养反硝化污泥活性和微生物群落结构的影响	王佩琦, 周伟丽, 何圣兵, 黄荣振 (1350)
甲烷厌氧氧化协同硝酸盐还原菌群驯化及其群落特征	薛松, 张梦竹, 李琳, 刘俊新 (1357)
城市尾水排海过程中微生物及主要致病菌扩散规律	徐爱玲, 牛成洁, 宋志文, 郎秀臻, 郭明月 (1365)
氧四环素的微生物燃料电池处理及微生物群落	严伟富, 肖勇, 王淑华, 丁蕊, 赵峰 (1379)
近 30 年干草耕地土壤碳氮比时空变异特征及其影响因素	江叶枫, 钟珊, 李婕, 王澜珂, 卞荣禧 (1386)
中宁枸杞土壤碳组分分布特征及其空间异质性	王幼奇, 赵云鹏, 白一茹, 张兴 (1396)
滨海滩涂围垦区不同围垦年限土壤酶活性变化及其与理化性质关系	解雪峰, 濮励杰, 王琪琪, 朱明, 王小涵 (1404)
青藏高原中东部表层土壤中多环芳烃的分布特征、来源及生态风险评价	周雯雯, 李军, 胡健, 李兆洲 (1413)
基于 UNMIX 模型的矿区周边农田土壤金属源解析	卢鑫, 胡文友, 黄标, 李元, 祖艳群, 湛方栋, 卞荣禧 (1421)
铁锰双金属材料在不同 pH 条件下对土壤 As 和重金属的稳定化作用	费群, 阎秀兰, 李永华 (1430)
我国 3 个城市人体血清中新型溴代阻燃剂水平趋势及分布特征	王庆华, 袁浩东, 金军, 李鹏, 马玉龙, 王英 (1438)
《环境科学》征订启事 (979) 《环境科学》征稿简则 (996) 信息 (1022, 1064, 1293)	

隧道中机动车排放颗粒物及无机元素特征

李风华, 张衍杰, 张静, 袁远, 吴琳*, 毛洪钧

(南开大学环境科学与工程学院, 城市交通污染防治研究中心, 天津 300071)

摘要: 于 2015 年 9 月对天津市张自忠隧道不同地点(隧道内和隧道外)进行 $PM_{2.5}$ 采集, 分析其中 17 种无机元素, 并应用 PCA 受体模型对元素来源进行解析. 结果表明, 隧道内外 $PM_{2.5}$ 的日均浓度分别为 $(94.79 \pm 62.78) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(83.92 \pm 61.60) \mu g \cdot m^{-3}$, 受机动车污染影响较大, 且工作日高于非工作日, 高峰时段隧道内 $PM_{2.5}$ 浓度与机动车流量呈现一定相关性. 隧道内, Si、Fe、Al、Ca 和 Mg 浓度偏高, 质量分数占分析元素的 98.48%, 受机动车影响较小, 而 Fe 及微量重金属 (Zn、Cu、Pb 等) 与机动车污染相关. 通过 Wilcoxon Signed-Rank 检验, Ba、Cu、Zn、Mo、Sn 和 Sb 于隧道内外存在显著性差异. 富集因子 (EF) 结果显示, 在隧道内外, Co、Mn、Cr、Ca、Mg、Ba、Fe、Mo 和 V 的 EF < 5, 主要来自地壳源, Cu、Zn、Pb、Sn、Sb 和 Cd 的 EF > 5, 受人为源影响较大. 因子分析结果显示, 隧道内主要污染源为磨损排放和燃油燃烧的混合源、土壤扬尘源和柴油车燃烧, 其中将机动车污染源继续进行因子分析, 污染源主要包括轮胎磨损和尾气排放、刹车磨损和尾气排放及柴油车排放.

关键词: 隧道; 无机元素; 富集因子; 因子分析; 天津市

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)03-1014-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.201706226

Characteristics of Particulate and Inorganic Elements of Motor Vehicles Based on a Tunnel Environment

LI Feng-hua, ZHANG Yan-jie, ZHANG Jing, YUAN Yuan, WU Lin*, MAO Hong-jun

(Centre for Urban Transport Emission Research, College of Environmental Science and Engineering, Nankai University, Tianjin 300071, China)

Abstract: Respirable particulate matter ($PM_{2.5}$) samples were collected at different locations (inside and outside the tunnel) at the Zhang Zizhong Tunnel in Tianjin in September 2015. Seventeen inorganic elements were measured, and the sources were analyzed by the PCA receptor model. The results show that the daily average concentration of $PM_{2.5}$ inside and outside the tunnel is $(94.79 \pm 62.78) \mu g \cdot m^{-3}$ and $(83.92 \pm 61.60) \mu g \cdot m^{-3}$, respectively. The concentration during the working day is higher than on a non-working day, and, to a certain extent, $PM_{2.5}$ concentration in the tunnel during peak periods is correlated with the vehicle flow, which indicates that $PM_{2.5}$ concentration is affected by motor vehicle pollution seriously. In the tunnel, the concentrations of Si, Fe, Al, Ca, and Mg are higher, the mass fraction reach 98.48% of all analyzed elements and these elements are less affected by vehicles. Fe and trace heavy metals (Zn, Cu, and Pb) are related closely to motor vehicle pollution. From the Wilcoxon Signed-Rank test, there are significant differences in Ba, Cu, Zn, Mo, Sn, and Sb inside and outside the tunnel. Enrichment factors inside and outside the tunnel show that the enrichment factor ratios of Co, Mn, Cr, Ca, Mg, Ba, Fe, Mo, and V are less than 5, which are mainly from the crust. In addition, the enrichment factor ratios of Cu, Zn, Pb, Sn, Sb, and Cd are greater than 5, which are affected largely by anthropogenic sources. The factor analysis indicates that the main pollution sources in the tunnel are the mixed sources of wear and the combustion of fuel, the dust, and the combustion of diesel vehicles. In addition, in order to analyze the source of motor vehicle pollution further, a factor analysis indicates that the main pollution sources are tire wear and exhaust emission, brake wear and exhaust emissions, and diesel emissions.

Key words: tunnel; inorganic element; enrichment factor; factor analysis; Tianjin

随着城市化进程加快和居民机动车需求的激增, 2016 年底全国机动车保有量达 2.9 亿辆, 机动车排放污染日趋严重^[1,2], 我国多地源解析研究结果表明机动车尾气成为城市大气细颗粒物的首要污染源之一^[3~5]. 此外, 越来越多的国外研究也表明机动车非尾气排放对大气颗粒物的贡献也占有较大比例^[6,7]. 机动车排放作为重金属富集的重要来源, 通过尾气排放释放 Cd、Ni、Pb、Cu 等, 刹车磨损排放 Ba、Cu、Sb、Fe 等, 轮胎磨损排放 Zn^[6,8], 这些

重金属不仅会引起呼吸系统疾病, 还会对暴露人群有致癌风险^[9,10].

隧道环境由于其相对封闭性及污染来源的单一性, 经常被用作机动车污染排放的特征环境对象.

收稿日期: 2017-06-22; 修订日期: 2017-08-28

基金项目: 国家科技支撑计划项目(2014BAC23B0205); 科技部科技基础性工作专项(2013FY112700-02)

作者简介: 李风华(1992~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气污染控制, E-mail: li_fenghua66@126.com

* 通信作者, E-mail: dr. wu@msn.com

Pio 等^[11]发现隧道内颗粒物主要来源于机动车排放和车辆过往引起的二次起尘, Cu 可以作为道路交通磨损排放的示踪元素; Hung-Lung 等^[12]对台湾隧道研究发现 Fe、Al、Ca、Na 和 K 是颗粒物的主要元素, Ba 在 $PM_{2.5-10}$ 中富集较高, Mn 和 Pb 则在 $PM_{2.5}$ 中富集较高; Lawrence 等^[13]对英国哈特菲尔德市隧道研究发现 PM_{10} 中 Fe、Cu、Mn、Ni、Pb 和 Sb 与车流量相关性较好, 并利用 PCA/MLRA 模型对隧道内的污染源进行解析, 发现磨损排放、尾气排放及二次扬尘是隧道内的主要来源. 国内的隧道实验研究主要集中在机动车排放因子测算、颗粒物粒径分布及组分特征方面^[8,14,15], 印红玲等^[16]对厦门市隧道研究得出机动车尾气源饱和烃的特征排放谱, 崔敏^[17]对烟台市隧道内机动车排放的 $PM_{2.5}$ 组成特征进行分析, 但未重点研究机动车排放微量重金属的污染特征. 此外, 国内研究中对近几年关注较多的非尾气排放研究也较少.

本研究选择的张自忠隧道是位于天津市繁华商业区的地下交通通道, 承担了海河西岸的区域交通, 对沟通河北区、河东区及和平区交通具有重要意义. 2016 年天津市汽车保有量达到 274 万辆, 在本地排放源中移动源对细颗粒物浓度的贡献占比较高, 张自忠隧道内主要通行小型客车、出租车、公交车及轻型货车, 其车辆构成、行驶工况较能反映天津城市道路交通现状. 本文研究了隧道内外 $PM_{2.5}$ 及载带无机元素的污染特征, 并对特征元素进行来源解析, 以了解机动车不同类别污染源, 以期为天津市机动车污染尤其是重金属污染防控提供理论依据.

1 材料与方法

1.1 采样时间与地点

张自忠隧道 ($39^{\circ}7'51.20''N$, $117^{\circ}12'21.06''E$) 全长约为 400 m, 横截面积为 43.6 m^2 , 单向 3 车道通车, 限速 $40 \text{ km} \cdot \text{h}^{-1}$, 进出口处连接交通要道张自忠路. 隧道内采用纵向全射流机械通风方式, 隧道全段安装 3 组射流风机, 在不稳定的自然通风情况下, 风机自然开启, 采样期间风机关闭. 该隧道距出口约 170 m 处呈现一定弧度, 但受速度所限, 车流行驶平稳.

本研究于 2015 年 9 月 21 日 (周一) 至 27 日 (周日) 在隧道内部和外部各设置一个监测点 (如图 1), 采样点 A 位于隧道外, 距离入口 10 m, 采样点 B 位于隧道内部, 距离出口处约 30 m. 采样期间, 隧道

内主要通行小型客车、公交车及轻型货车, 柴油车占比约为 1% (主要包括部分公交车及轻型货车), 平均车速为 $(37.1 \pm 1.1) \text{ km} \cdot \text{h}^{-1}$, 24 h 平均车流量为 $(19\,238 \pm 1\,837)$ 辆. 选用 TH-150AII 型智能中流量 ($100 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$) 采样器对环境空气中 $PM_{2.5}$ 进行 24 h 采集, 分 5 个时段进行采样 (07:00 ~ 11:00、11:00 ~ 15:00、15:00 ~ 19:00、19:00 ~ 23:00、23:00 ~ 次日 07:00). 采样时选用 $\phi 90 \text{ mm}$ 的聚丙烯滤膜. 采样前, 首先将滤膜置于 60°C 的烘箱中烘干 2 h 后置于恒温 (22 ± 1) $^{\circ}\text{C}$ 、恒湿 (35 ± 1) % 天平室平衡 72 h, 最终得到 $PM_{2.5}$ 有效样品 63 个.

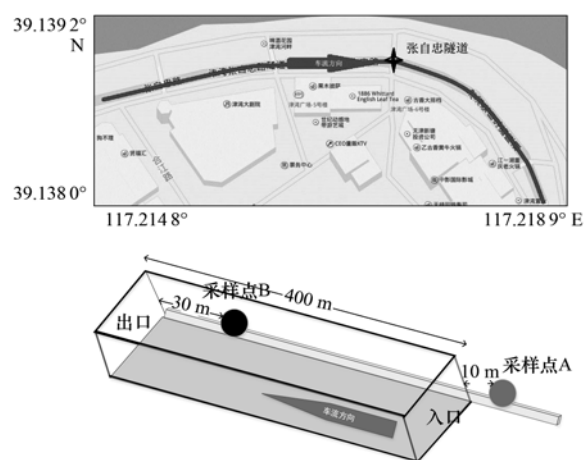


图 1 采样点示意

Fig. 1 Diagram of the sampling point

1.2 样品处理与分析

将采后滤膜置于恒温 (22 ± 1) $^{\circ}\text{C}$ 、恒湿 (35 ± 1) % 天平室平衡 72 h 后, 采用称重法分析颗粒物采样膜质量.

实验测定分析 Al、Mg、Ca、Fe、Ba、Si、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、As、Mo、Cd、Sn、Sb、Pb 共 18 种元素, 其中 Co、Cr、Mo、Mn、Ni、Pb、Zn、As、Cd、Sn、Sb、Cu 元素利用美国 Agilent 公司的 Agilent 7500a 型 ICP-MS 分析. 用塑料镊子剪取采后滤膜 1/4 剪碎放入 100 mL 带盖的聚四氟乙烯烧杯中, 加入 5 mL HCl ($\text{pH} = 5.6$) 和一滴 HF ($\text{pH} = 5.3$) 萃取溶液, 盖好上盖, 并与 220°C 电热板上加热回流 2.5 h. 利用余温用 HCl ($\text{pH} = 5.4$) 5 mL 浸取, 最后以纯水稀释定容至 10 mL 待测. Si、Al、Ca、Mg、Fe、Ba 元素利用 ICP-OES 检测. 取 1/4 滤膜置于镍坩埚中, 放入马弗炉进行灰化. 冷却, 加入几滴无水乙醇润湿, 加入 0.2 g 固体 NaOH, 于马弗炉中熔融 10 min, 取出冷却, 加热水煮沸提取. 移入预先盛有 2 mL 盐酸 (2 + 1) 溶液的塑料管中,

用 2% 的盐酸溶液冲洗坩埚, 以水稀释至 10 mL, 摇匀待测。

1.3 质量控制

采样期间, 每天采集一个空白样品用以扣除空白值。进行元素分析前, 调试仪器操作参数(包括灵敏度、质量分辨率、稳定度等), 补偿样品基体效应和信号漂移。进行元素分析时, 为保证整个实验过程的准确性和可靠性, 每 10 个样品分析需要制备一个方法空白分析, 检测值必须低于检出限的 2 倍; 每 10 个样品至少执行一个标准样品分析, 回收率应在 80% ~ 120% 范围内; 每 10 个样品至少执行一个重复样品分析, 并求其相对差异百分比, 相对误差小于 20%。

2 结果与讨论

2.1 隧道内外 $PM_{2.5}$ 的浓度特征

采样期间, 隧道外 $PM_{2.5}$ 的日均质量浓度为 $(83.92 \pm 61.60) \mu g \cdot m^{-3}$, 隧道内为 $(94.79 \pm 62.78) \mu g \cdot m^{-3}$, 而距离采样点最近的国控点处 $PM_{2.5}$ 的平均浓度为 $(62.05 \pm 39.89) \mu g \cdot m^{-3}$, 可见采样点处 $PM_{2.5}$ 浓度偏高, 受机动车排放影响明显。如图 2, 根据时间性质, 隧道环境中 $PM_{2.5}$ 质量浓度工作日高于非工作日, 这与工作日期间机动车流量偏高有一定关系。根据采样点位置, 对隧道内外 $PM_{2.5}$ 质量浓度进行 Wilcoxon Signed-Rank 检验 ($P < 0.05$), 可见隧道内外 $PM_{2.5}$ 浓度存在显著性差异, 且隧道内 $PM_{2.5}$ 的质量浓度显著高于隧道外, 这与隧道环境的封闭性有关, 而隧道外大气扩散稀释的作用较大, 故浓度较低。采样期间两个采样点 $PM_{2.5}$ 质量浓度的变化趋势相对一致, 证明了隧道内外 $PM_{2.5}$ 的主要污染源一致。

此外, 为了进一步说明机动车流量对 $PM_{2.5}$ 浓度的影响, 于闲时(23:00 ~ 次日 07:00)、早高峰(07:00 ~ 11:00)和晚高峰(15:00 ~ 19:00)典型时段下各选取 3 个代表样品(分别命名为“闲时-1”、“闲时-2”、“闲时-3”; “早高峰-1”、“早高峰-2”、“早高峰-3”; “晚高峰-1”、“晚高峰-2”、“晚高峰-3”), 将其 $PM_{2.5}$ 浓度与该时段下的车流量数目进行比较(如图 3), 可以看出, 闲时阶段车流量数目远低于早晚高峰时段, 且在高峰时段隧道中 $PM_{2.5}$ 浓度值与车流量数目变化趋势相对一致, 进一步说明隧道内 $PM_{2.5}$ 浓度与机动车流量呈现一定相关性。在闲时期间, 隧道环境内 $PM_{2.5}$ 浓度高于国控点, 说明一定程度上受到机动车影响, 但其仍存在

$PM_{2.5}$ 浓度高于高峰时段 $PM_{2.5}$ 浓度的现象, 说明在夜间车流量数目不是影响 $PM_{2.5}$ 浓度的主要因素, 还会受到气象条件、周围环境干扰等原因的影响。

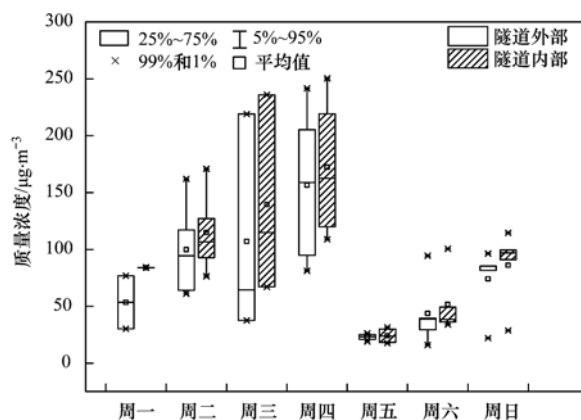


图 2 采样期间隧道内外 $PM_{2.5}$ 质量浓度

Fig. 2 $PM_{2.5}$ mass concentration inside and outside the tunnel during the sampling period

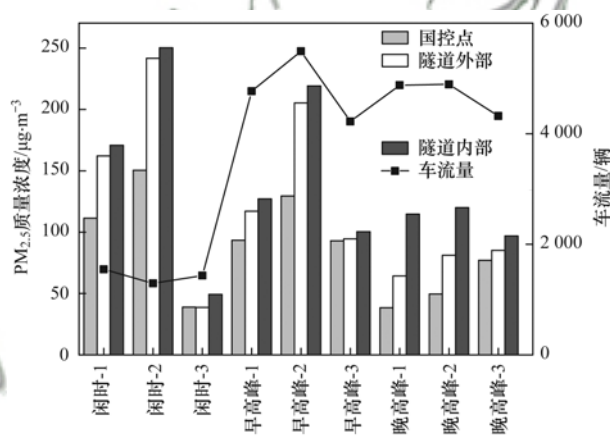


图 3 典型时段隧道环境 $PM_{2.5}$ 浓度与车流量关系

Fig. 3 Relationship between $PM_{2.5}$ concentration and vehicle flow in a typical period

2.2 隧道内外元素的浓度特征

本研究中共测定分析了 Al、Mg、Ca、Fe、Ba、Si、Cr、Mn、Co、V、Cu、Zn、Mo、Cd、Sn、Sb、Pb 共 17 种元素。如表 1, 隧道环境内部元素浓度由高到低顺序为 $Si > Fe > Al > Ca > Mg > Zn > Ba > Cu > Pb > Mn > V > Cr > Sn > Sb > Mo > Cd > Co$; 隧道环境外部元素浓度由高到低顺序为 $Si > Al > Fe > Mg > Ca > Zn > Ba > Pb > Mn > V > Cu > Cr > Sn > Sb > Mo > Cd > Co$ 。隧道环境下, Si、Fe、Al、Ca 和 Mg 元素浓度偏高, 这些元素的质量分数之和于隧道内部和外部分别占分析元素的 98.48% 和 98.80%, 其中 Si 浓度最高, 分别达到 $(6.00 \pm 3.40) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(5.88 \pm 3.10) \mu g \cdot m^{-3}$ 。对比不同采样地点元素质量浓度, Al、Mg 在隧道外部高于隧道内部, Si、

Ca 的浓度相差较小,可见这些地壳元素与隧道环境无显著关联,说明机动车行驶带入的道路扬尘对隧道环境中元素浓度影响较大,与 Lawrence 等^[13]对英国哈特菲尔德隧道的研究结果一致. Fe 的质量浓度隧道内部明显高于隧道外部,可见 Fe 与机动车污染有一定关系, Sanders 等^[18]和 Clarke 等^[19]在研究中也得到了相同结果. 此外,微量重金属元素,包括 Zn、Cu、Pb 等,在隧道微环境内的质量浓度高于隧道外部,说明这些微量元素属于与机动车污染相关的元素,与 Sternbeck 等^[20]的研究结果一致. 通过 Wilcoxon Signed-Rank 检验发现(表 2), Ba、Cu、Zn、Mo、Sn 和 Sb 的 *P* 值小于 0.05,说明这些元素于隧道内外存在显著性差异.

表 1 为天津市隧道与其他城市隧道颗粒物中元素组分浓度的对比. 从中可以看出,对于地壳元素(Al、Si、Mg、Ca 等),天津、广州隧道内的质量浓度普遍高于其他城市,说明两地受土壤扬尘影响显著;对于 Zn、Cu、Ba、Pb 等机动车相关元素,各城市间的质量浓度呈现不同程度的差异性,这可能是由于不同城市实行不同的燃油标准、具有不同的车队构成及不同的行驶工况所致^[11],而本研究中这些元素质量浓度普遍低于其他城市,可能与隧道内主要通行小型汽油客车及较平稳的行驶工况有一定关系. 广州市珠江隧道大型车及重型车占比 18.6%,隧道内 PM_{2.5} 浓度为 620.38 μg·m⁻³,显

著高于本研究 PM_{2.5} 质量浓度值(94.79 μg·m⁻³),故其 Zn、Cu、Pb、V 等元素浓度显著高于其他城市. 同时,香港 ShingMun 隧道车流量达到 1 600 辆·时⁻¹,柴油车比例约 50%,故其 Cu、Zn、Pb、Sn、Sb 等元素浓度显著高于本研究值. 法国 Malraux 隧道重型车占比 1.5%~2%,与本研究车队构成相似,其元素浓度与本研究较为接近,其 PM_{2.5} 浓度为 52.7 μg·m⁻³,略低于本研究值,但其隧道内机动车行驶速度高于本研究,故存在一定差异. 对比美国休斯敦隧道发现, Ba 元素浓度普遍高于其他研究,这可能是由于隧道内坡度(约 6°)明显,机动车刹车频繁导致. 此外,对比台湾 Chung-Liao 隧道不同采样地点的元素质量浓度,发现隧道内元素质量浓度普遍高于隧道外,与本研究相符.

2.3 元素来源分析

2.3.1 富集因子

富集因子(EF)是评价环境中重金属污染来源和污染程度的有效指标,用以判断自然源同人为源对颗粒物中元素含量的贡献水平,初步判断环境的污染程度及污染来源^[24,25]. 富集因子分析中,一般选择人为污染小且地球化学性质比较稳定的元素作为参比元素^[26],在大气颗粒物污染研究中,常选择 Al、Ti、Fe 等元素^[27],本研究使用 Al 作为参比元素. 当 EF>5 时,表明该元素显著富集,受人为影响较大^[28].

表 1 各城市隧道环境中 PM_{2.5} 载带元素质量浓度¹⁾
Table 1 Comparison of element mass concentrations in PM_{2.5} based on tunnel environment in other cities

元素	本研究		Chung-Liao 隧道,台湾 ^[12]		珠江隧道, 广州 ^[8]	ShingMun 隧道, 香港 ^[21]	Malraux 隧道, 法国尼斯 ^[22]	Washburn 隧道, 美国休斯敦 ^[23]
	隧道外	隧道内	隧道外	隧道内	(隧道内)	(隧道内)	(隧道内)	(隧道内)
Si	5.88±3.10	6.00±3.39	—	—	—	0.99	—	—
Al	4.24±1.33	3.95±1.27	0.71	1.27	7.726	0.26	—	2.37
Fe	3.62±2.79	4.08±3.49	1.35	2.99	8.427	1.1	1.46	2.72
Mg	2.26±1.59	1.99±1.20	0.21	0.33	3.545	0.15	—	0.39
Ca	2.00±0.74	2.06±1.19	0.82	1.47	56.761	0.69	—	—
Zn	90.50±78.53	120.77±131.30	150	335	6 898	430	64.8	326
Ba	31.16±14.70	42.95±25.19	49.5	21	—	37	—	210.5
Pb	23.40±21.68	26.06±25.97	36	90	929	72	11.4	25.05
Mn	21.12±16.94	24.43±20.38	46.7	115	266	28	13.1	46.25
V	17.99±5.99	18.55±7.12	4.25	15	24	12	5.19	6.64
Cu	17.36±10.80	26.19±17.56	5.7	30	480	63	94.5	168.25
Cr	9.23±5.81	9.04±4.57	50	80	63	6.5	—	—
Sn	3.43±2.66	5.59±4.46	—	—	—	18	13.1	—
Sb	2.24±2.69	3.10±2.79	5.1	1.05	—	8.6	13.5	—
Mo	0.78±0.49	1.07±0.86	—	—	—	—	—	6.97
Cd	0.45±0.50	0.56±0.60	0.8	1.25	5	—	0.331	—
Co	0.23±0.13	0.27±0.18	2.3	5.3	—	5.6	0.216	2.12

1) Si、Al、Fe、Mg、Ca 的单位为 μg·m⁻³, 其他的单位为 ng·m⁻³

表 2 Wilcoxon Signed-Rank 检验结果

Table2 Result of Wilcoxon Signed-Rank test

元素	Al	Mg	Ca	Fe	Ba	Si	Cr	Mn	Co
<i>P</i>	0.627	0.336	0.754	0.430	0.001	0.482	0.905	0.658	0.214
元素	Ni	Cu	Zn	Mo	Cd	Sn	Sb	Pb	V
<i>P</i>	0.112	0	0.048	0.030	0.117	0	0.024	0.770	0.265

$$EF = \frac{(X_i/A_{Al})_{\text{颗粒物}}}{(X_i/X_{Al})_{\text{地壳}}}$$

式中, X_i 和 X_{Al} 分别为元素 i 和元素 Al 的浓度, 各元素的土壤背景值取自中国 A 层土壤背景平均值^[29].

从图 4 可以看出, Co、Mn、Cr、Ca、Mg、Ba、Fe、Mo 和 V 的富集因子小于 5, 说明在隧道环境中这些元素受人为影响较小, 主要来源于地壳源. 对比隧道内外各元素的 EF 发现, Ba、Fe、Mo 和 V 的 EF 隧道内部高于隧道外部. Ba 和 Fe 作为刹车片磨损的示踪元素^[6], 受机动车排放影响较大. Weckwerth 等指出^[30], Mo 除了来自轮胎和刹车片材料外, 细粒子中 Mo 在柴油车煤烟中贡献率达到 30%, 且 V 主要来源于柴油车燃油燃烧^[31], 故这些元素在隧道内部富集程度较高. Cu、Zn、Pb、Sn、Sb 和 Cd 的富集因子大于 5, 说明这些元素受人为源影响较大, 且隧道内这些元素的富集程度显著高于隧道外部 (>40%), 说明这些元素与隧道内密闭的环境条件及机动车污染排放相关^[11,13].

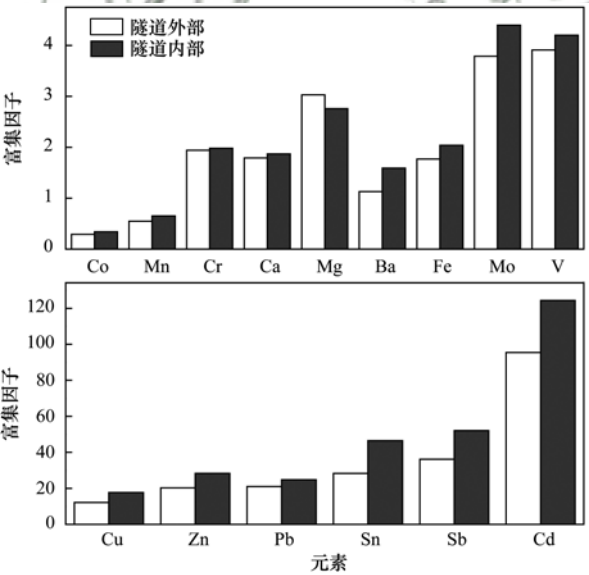


图 4 隧道内部和外部各元素的富集因子

Fig. 4 Enrichment factors of elements inside and outside the tunnel

2.3.2 元素相关性分析

借鉴 Sternbeck 等^[20] 和 Lin 等^[32] 的研究成果,

并结合上文富集因子研究, 发现 Cu、Zn、Sb 等 9 种元素与机动车污染排放呈现一定相关性, 故对上述元素进行 Spearman 相关性分析(表 3), 其中上三角表示隧道内元素相关性、下三角表示隧道外元素相关性.

结果表明, 隧道内 Cu、Zn、Sb、Sn、Pb、Cd 和 Mo 之间相关性较好 ($r > 0.80$). 由于 Cu 作为机动车润滑油的添加剂, 同时也是刹车片的组成成分, 可以作为道路交通磨损的示踪物^[12,18], 进一步证明这些元素主要来自机动车污染. 而 Fe 与 Ba 之间相关性较好 ($r > 0.7$), 而与其他元素相关性较差, 故说明 Fe 和 Ba 污染源更相近, 刹车片磨损可能是它们共同的污染源^[33], 另外, 研究表明 Fe 和 Ba 受粒径影响较大, 粗粒子中 Fe 和 Ba 主要来自地壳源, 而细粒子中受人为源影响较大^[12,18], 在上文研究中, 尽管二者的富集因子小于 5, 但在隧道内外其质量浓度相差较大, 说明受机动车排放源影响较大, 研究结果一致. 此外, 通过隧道内部和隧道外部相关性比较, 发现隧道外 Cu、Zn、Pb、Sn、Cd、Mo 和 Sb 的相关性 ($r > 0.70$) 略低于隧道内部.

2.3.3 元素主成分分析

取 PM_{2.5} 中的 17 种元素利用 SPSS 16.0 软件进行因子分析. 因子载荷矩阵的变换采用了方差极大旋转法, 正交旋转后的因子载荷矩阵见表 4. 依据特征根大于 1 时方可被提取原则, 隧道内解析得到 3 个主要成分, 累计方差贡献率达到 85.89%, 基本解释了全部变量的主要信息. 因子 1 初始解释方差为 49.42%, 负载系数较高的元素为 Cu、Zn、Pb、Sb、Cd、Sn 等, Cu、Sb 作为刹车磨损的特征元素, Zn 作为轮胎磨损的标识物, 以及燃油燃烧也会排放这些元素, 故因子 1 代表磨损排放和燃油燃烧的混合源; 因子 2 中初始解释方差为 25.22%, 其中 Al、Mg、Ca、Fe、Ba 和 Si 的负载系数较高, Al 和 Si 是典型的地壳元素, 故因子 2 可以代表土壤扬尘源; 因子 3 的解释方差为 11.25%, V 的负载系数最高, 其主要来源于柴油车燃油燃烧, 故该因子代表柴油车燃烧. 隧道外部解析得到 3 个主要成分,

表 3 隧道内部和外部各元素间相关性分析¹⁾

Table 3 Correlation analysis between elements inside and outside the tunnel									
	Cu	Zn	Sb	Sn	Ba	Pb	Cd	Mo	Fe
Cu	1	0.857 **	0.940 **	0.948 **	0.388 *	0.905 **	0.884 **	0.876 **	0.407 *
Zn	0.895 **	1	0.829 **	0.854 **	0.404 *	0.867 **	0.882 **	0.870 **	0.478 **
Sb	0.704 **	0.717 **	1	0.934 **	0.389 *	0.938 **	0.928 **	0.872 **	0.440 *
Sn	0.808 **	0.834 **	0.845 **	1	0.359	0.919 **	0.926 **	0.873 **	0.377 *
Ba	0.441 *	0.400 *	0.170	0.153	1	0.471 **	0.471 **	0.396 *	0.724 **
Pb	0.817 **	0.863 **	0.747 **	0.768 **	0.316	1	0.965 **	0.830 **	0.392 *
Cd	0.732 **	0.842 **	0.703 **	0.745 **	0.211	0.944 **	1	0.849 **	0.444 *
Mo	0.730 **	0.832 **	0.718 **	0.741 **	0.346	0.712 **	0.626 **	1	0.541 **
Fe	0.274	0.356	0.097	0.165	0.749 **	0.140	0.091	0.343	1

1) * * 表示在 0.01 水平上有显著性；* 表示在 0.05 水平上有显著性

累计方差贡献率达到 81.41%，基本解释了全部变量的主要信息。因子 1 中负载系数较高的元素同隧道内一致，初始解释方差为 43.20%，代表磨损排放和燃料燃烧的混合源；因子 2 初始解释方差为 21.80%，其中 Mg、Fe、Ba 的负载系数较高，Fe 除与地壳源相关外，也会来自发动机和刹车磨损的人为源^[18]，而 BaSO₄ 作为刹车片填充物，故因子 2 为地壳源与刹车磨损的混合源；因子 3 中初始解释方差为 16.41%，Al、Si 和 V 的负载系数较高，故该因子代表地壳源和柴油车燃烧的混合源。对比隧道内外主成分分析结果发现，隧道内部各类污染源区分特征较明显，解析效果更明确。

为了排除 Al、Ca、Mg 等地壳元素影响，进一

步区分隧道内机动车污染特征，故将因子 1 中 Cu、Zn、Pb、Sb 等 10 种机动车相关元素继续采用方差极大旋转法进行主成分分析，提取 3 个主成分，累积解释方差达到 95.50%。如表 5，因子 1 的初始解释方差为 38.00%，Zn、Pb、Mn、Cd 的负载系数较高。Zn 主要来自轮胎磨损，橡胶硫化过程加入 Zn，可占到轮胎重量的 1%~2%^[34,35]，此外还有一部分 Zn 通过尾气管排放^[36]，Pb 和 Zn 的相关性($r=0.867$)较好，机动车尾气也会释放少量 Pb，故因子 1 代表轮胎磨损和尾气排放。因子 2 中初始解释方差为 33.30%，Cu、Sb 的负载系数较高。刹车磨损的主要来源是 Sb^[37]，且隧道内 Cu 与 Sb 的相关性非常高($r=0.94$)，Cu 作为磨损的示踪物质^[11]，在

表 4 隧道内部和外部 PM_{2.5} 中最大方差旋转因子分析¹⁾

元素	隧道内环境			隧道外环境		
	因子 1	因子 2	因子 3	因子 1	因子 2	因子 3
Al	0.17	0.81	0.44	0.014	0.49	0.78
Mg	0.25	0.70	0.29	-0.073	0.87	0.17
Ca	0.47	0.69	0.17	0.26	0.71	0.38
Fe	0.005	0.89	-0.028	0.022	0.95	0.17
Ba	0.33	0.81	-0.20	0.26	0.88	0.076
Si	0.21	0.75	0.36	0.12	0.41	0.77
Cr	0.80	0.30	0.44	0.71	0.39	0.18
Mn	0.88	0.36	0.18	0.81	0.13	0.36
Co	0.88	0.33	0.23	0.84	0.19	0.32
Cu	0.90	0.19	0.25	0.90	0.17	0.21
Zn	0.88	0.30	0.05	0.90	0.25	0.18
Mo	0.74	0.16	0.54	0.63	0.092	0.64
Cd	0.95	0.25	0.038	0.94	0.066	-0.038
Sn	0.96	0.092	0.16	0.92	-0.050	0.096
Sb	0.90	0.080	0.24	0.90	-0.20	0.23
Pb	0.96	0.21	0.02	0.96	0.075	0.052
V	0.28	0.23	0.85	0.41	0.040	0.75
解释方差/%	49.42	25.22	11.25	43.20	21.80	16.41
累积解释方差/%	49.42	74.64	85.89	43.20	65.00	81.41

1) 高于 0.65 的值用黑体字表示，下同

刹车片中占 1% ~ 10%^[18], 同时 Cu 和 Sb 也会添加到润滑油, 随尾气管排放^[36,38], 故因子 2 代表刹车磨损和尾气排放. 因子 3 中初始解释方差为 24.20%, Mo 负载系数最高, Mo 可能与柴油车排放相关^[30,39], 故该因子代表柴油车排放.

表 5 隧道内 PM_{2.5} 中部分元素最大方差旋转因子分析

Table 5 Maximum variance rotation factor analysis of partial elements within the tunnel

元素	因子 1	因子 2	因子 3
Cr	0.40	0.64	0.59
Mn	0.69	0.43	0.55
Co	0.63	0.53	0.51
Cu	0.49	0.76	0.38
Zn	0.85	0.30	0.40
Mo	0.35	0.37	0.84
Cd	0.76	0.55	0.30
Sn	0.60	0.66	0.39
Sb	0.40	0.77	0.43
Pb	0.77	0.56	0.27
解释方差/%	38.00	33.30	24.20
累积解释方差/%	38.00	71.30	95.50

3 结论

(1) 采样期间, 隧道内外 PM_{2.5} 的日均质量浓度分别为 $(94.79 \pm 62.78) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(83.92 \pm 61.60) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 工作日高于非工作日. 不同地点 PM_{2.5} 质量浓度有显著性差异, 隧道内部偏高, 且隧道内外 PM_{2.5} 的主要污染源一致. 比较闲时和高峰时段机动车流量与 PM_{2.5} 浓度发现, 高峰时段, 车流量数目与 PM_{2.5} 浓度呈现一定相关性, 而闲时期间, 车流量数目不是影响 PM_{2.5} 浓度的主要因素.

(2) 隧道环境中 Si、Fe、Al、Ca 和 Mg 浓度偏高, 其质量分数于隧道内外分别占分析元素的 98.48% 和 98.75%. 地壳元素 (Al、Si、Mg 等) 浓度与采样地点无显著关联, 主要受机动车行驶带入的道路扬尘的影响. Fe 及微量重金属 (Zn、Cu、Pb 等) 与机动车污染相关. 通过 Wilcoxon Signed-Rank 检验发现 Ba、Cu、Zn、Mo、Sn 和 Sb 于隧道内外存在显著性差异. 此外, 本研究中地壳元素 (Al、Si、Mg、Ca) 浓度较其他研究偏高, Zn、Cu、Pb 等元素的质量浓度偏低.

(3) 通过富集因子及元素相关性分析, Co、Mn、Cr、Ca、Mg、Ba、Fe、Mo 和 V 的 EF < 5, 主要来自地壳源, 其中 Ba、Fe、Mo 和 V 在隧道内部富集程度较高; Cu、Zn、Pb、Sn、Sb 和 Cd 的 EF > 5, 受人为源影响较大. 其中 Cu、Zn、Pb、Sn、Sb 和 Cd 与机动车污染相关, 且隧道内其相关性系数 $r >$

0.80; Fe 和 Ba 相关性较好 ($r > 0.7$), 可能来自刹车片磨损. 此外, 隧道内各元素的相关性均优于隧道外.

(4) PM_{2.5} 中 17 种元素分析结果显示: 隧道内外分别解析均得到 3 个主要成分, 其累计方差贡献率分别达到 85.89% 和 81.41%, 隧道内, 解析得到三类污染源, 分别为磨损排放和燃料燃烧的混合源, 土壤扬尘源和柴油车燃烧源; 隧道外, 解析得到的三类污染源分别为磨损排放和燃油燃烧的混合源, 地壳源与刹车磨损的混合源, 地壳源和柴油车燃烧源. 将机动车污染源继续提取 3 个主成分, 得到的 3 个主要来源分别为轮胎磨损和尾气排放、刹车磨损和尾气排放及柴油车排放.

致谢: 本实验的现场采样工作由南开大学“城市交通污染防治研究中心”所有老师及学生协助完成, 在此表示感谢.

参考文献:

- [1] 伏晴艳, 杨冬青, 黄嵘, 等. 上海市机动车发展的大气环境容量[J]. 环境科学, 2004, **25**(S1): 1-6.
Fu Q Y, Yang D Q, Huang R, et al. Atmospheric capacity of motor vehicles development in Shanghai [J]. Environmental Science, 2004, **25**(S1): 1-6.
- [2] 郭宇宏, 王自发, 康宏, 等. 机动车尾气排放对城市空气质量的影响研究——以乌鲁木齐市春节前后对比分析[J]. 环境科学学报, 2014, **34**(5): 1109-1117.
Guo Y H, Wang Z F, Kang H, et al. Impact of automobile vehicles exhaust emissions on metropolitan air quality: Analysis study on the air pollution change before and after the Spring Festival in Urumqi City, China [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2014, **34**(5): 1109-1117.
- [3] 周静博, 李治国, 路娜, 等. 抗战胜利 70 周年大阅兵期间石家庄大气细颗粒物在线来源解析[J]. 环境科学, 2016, **37**(8): 2855-2862.
Zhou J B, Li Z G, Lu N, et al. Online sources about atmospheric fine particles during the 70th anniversary of victory parade in Shijiazhuang [J]. Environmental Science, 2016, **37**(8): 2855-2862.
- [4] 祁心, 郝庆菊, 吉东生, 等. 重庆市北碚城区大气中 VOCs 组成特征研究[J]. 环境科学, 2014, **35**(9): 3293-3301.
Qi X, Hao Q J, Ji D S, et al. Composition characteristics of atmospheric volatile organic compounds in the urban area of Beibei district, Chongqing [J]. Environmental Science, 2014, **35**(9): 3293-3301.
- [5] 陈多宏, 李梅, 黄渤, 等. 区域大气细粒子污染特征及快速来源解析[J]. 中国环境科学, 2016, **36**(3): 651-659.
Chen D H, Li M, Huang B, et al. The pollution characteristics and source apportionment of regional atmospheric fine particles [J]. China Environmental Science, 2016, **36**(3): 651-659.
- [6] Thorpe A, Harrison R M. Sources and properties of non-exhaust particulate matter from road traffic: a review [J]. Science of the Total Environment, 2008, **400**(1-3): 270-282.
- [7] Bukowiecki N, Lienemann P, Hill M, et al. PM₁₀ emission

- factors for non-exhaust particles generated by road traffic in an urban street canyon and along a freeway in Switzerland [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(19): 2330-2340.
- [8] 王伯光, 杨嘉慧, 周炎, 等. 广州市机动车尾气中金属元素的排放特征[J]. *中国环境科学*, 2008, **28**(5): 389-394.
Wang B G, Yang J H, Zhou Y, *et al.* The emission characteristics of metal elements in urban motor vehicles exhaust of Guangzhou City[J]. *China Environmental Science*, 2008, **28**(5): 389-394.
- [9] Gavett S H, Haykal-Coates N, Copeland L B, *et al.* Metal composition of ambient PM_{2.5} influences severity of allergic airways disease in mice[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2003, **111**(12): 1471-1477.
- [10] Zhou P, Guo J, Zhou X Y, *et al.* PM_{2.5}, PM₁₀ and health risk assessment of heavy metals in a typical printed circuit boards manufacturing workshop[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2014, **26**(10): 2018-2026.
- [11] Pio C, Mirante F, Oliveira C, *et al.* Size-segregated chemical composition of aerosol emissions in an urban road tunnel in Portugal[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **71**: 15-25.
- [12] Hung-Lung C, Yao-Sheng H. Particulate matter emissions from on-road vehicles in a freeway tunnel study [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(26): 4014-4022.
- [13] Lawrence S, Sokhi R, Ravindra K, *et al.* Source apportionment of traffic emissions of particulate matter using tunnel measurements[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **77**: 548-557.
- [14] 王伯光, 张远航, 祝昌健, 等. 城市机动车排放因子隧道试验研究[J]. *环境科学*, 2001, **22**(2): 55-59.
Wang B G, Zhang Y H, Zhu C J, *et al.* A study on city motor vehicle emission factors by tunnel test [J]. *Environmental Science*, 2001, **22**(2): 55-59.
- [15] 朱春, 张旭. 机动车细微/超细颗粒物数浓度排放因子隧道实测研究[J]. *环境科学学报*, 2010, **30**(7): 1352-1357.
Zhu C, Zhang X. Emission factors for fine/ultrafine particle numbers from vehicles in a road tunnel [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2010, **30**(7): 1352-1357.
- [16] 印红玲, 洪华生, 王新红, 等. 厦门市大气中机动车尾气的烃类污染特征[J]. *福建师范大学学报(自然科学版)*, 2010, **26**(3): 112-118.
Yin H L, Hong H S, Wang X H, *et al.* Analysis on hydrocarbons pollution in vehicle exhausts in Xiamen City[J]. *Journal of Fujian Normal University (Natural Science Edition)*, 2010, **26**(3): 112-118.
- [17] 崔敏. 基于实测的道路与非道路柴油车颗粒物排放特征初步研究[D]. 烟台: 中国科学院烟台海岸带研究所, 2016.
Cui M. Characteristics of particulate emission from road and non-road diesel vehicles on real world conditions[D]. Yantai: Yantai Institute of Coastal Zone Research Chinese Academy of Sciences, 2016.
- [18] Sanders P G, Xu N, Dalka T M, *et al.* Airborne brake wear debris: size distributions, composition, and a comparison of dynamometer and vehicle tests [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, **37**(18): 4060-4069.
- [19] Clarke A G, Chen J M, Pipitsangchand S, *et al.* Vehicular particulate emissions and roadside air pollution[J]. *Science of the Total Environment*, 1996, **189-190**: 417-422.
- [20] Sternbeck J, Sjödin Å, Andréasson K. Metal emissions from road traffic and the influence of resuspension—results from two tunnel studies[J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(30): 4735-4744.
- [21] Cheng Y, Lee S C, Ho K F, *et al.* Chemically-specified on-road PM_{2.5} motor vehicle emission factors in Hong Kong[J]. *Science of the Total Environment*, 2010, **408**(7): 1621-1627.
- [22] 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.
- [23] Chellam S, Kulkarni P, Fraser M P. Emissions of organic compounds and trace metals in fine particulate matter from motor vehicles: a tunnel study in Houston, Texas[J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2005, **55**(1): 60-72.
- [24] 房春生, 陈分定, 陈克华, 等. 龙岩市大气颗粒物来源统计分析[J]. *中国环境科学*, 2011, **31**(2): 214-219.
Fang C S, Chen F D, Chen K H, *et al.* Statistical analysis of atmospheric particulate matter sources in Longyan City [J]. *China Environmental Science*, 2011, **31**(2): 214-219.
- [25] Bourennane H, Douay F, Sterckeman T, *et al.* Mapping of anthropogenic trace elements inputs in agricultural topsoil from Northern France using enrichment factors[J]. *Geoderma*, 2010, **157**(3-4): 165-174.
- [26] Schiff K C, Weisberg S B. Iron as a reference element for determining trace metal enrichment in Southern California coastal shelf sediments[J]. *Marine Environmental Research*, 1999, **48**(2): 161-176.
- [27] 姬亚芹, 朱坦, 冯银厂, 等. 用富集因子法评价我国城市土壤风沙尘元素的污染[J]. *南开大学学报(自然科学版)*, 2006, **39**(2): 94-99.
Ji Y Q, Zhu T, Feng Y C, *et al.* Application of the enrichment factor to analyze the pollution of elements in soil dust in China [J]. *Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Nankaiensis*, 2006, **39**(2): 94-99.
- [28] Chen Y, Schleicher N, Chen Y Z, *et al.* The influence of governmental mitigation measures on contamination characteristics of PM_{2.5} in Beijing [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **490**: 647-658.
- [29] 王云, 魏复盛. 土壤环境元素化学[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1995. 28-31.
- [30] Weckwerth G. Verification of traffic emitted aerosol components in the ambient air of Cologne (Germany) [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(32): 5525-5536.
- [31] Shafer M M, Toner B M, Overdier J T, *et al.* Chemical speciation of vanadium in particulate matter emitted from diesel vehicles and urban atmospheric aerosols [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012, **46**(1): 189-195.
- [32] Lin Y C, Tsai C J, Wu Y C, *et al.* Characteristics of trace metals in traffic-derived particles in Hsuehshan Tunnel, Taiwan: size distribution, fingerprinting metal ratio, and emission factor [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2014, **14**(9): 13963-14004.
- [33] Mancilla Y, Mendoza A. A tunnel study to characterize PM_{2.5}, emissions from gasoline-powered vehicles in Monterrey, Mexico [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **59**: 449-460.
- [34] Degaffe F S, Turner A. Leaching of zinc from tire wear particles

- under simulated estuarine conditions[J]. *Chemosphere*, 2011, **85**(5): 738-743.
- [35] Taheri S, Khoshgoftarmanesh A H, Shariatmadari H, *et al.* Kinetics of zinc release from ground tire rubber and rubber ash in a calcareous soil as alternatives to Zn fertilizers[J]. *Plant and Soil*, 2011, **341**(1-2): 89-97.
- [36] Huang X D, Olmez I, Aras N K, *et al.* Emissions of trace elements from motor vehicles: Potential marker elements and source composition profile[J]. *Atmospheric Environment*, 1994, **28**(8): 1385-1391.
- [37] Bukowiecki N, Lienemann P, Hill M, *et al.* Real-world emission factors for antimony and other brake wear related trace elements: size-segregated values for light and heavy duty vehicles [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009, **43**(21): 8072-8078.
- [38] Cal-Prieto M J, Carlosena A, Andrade J M, *et al.* Antimony as a tracer of the anthropogenic influence on soils and estuarine sediments[J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2001, **129**(1-4): 333-348.
- [39] Kuo C Y, Wang J Y, Chang S H, *et al.* Study of metal concentrations in the environment near diesel transport routes [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(19): 3070-3076.

《环境科学》多项引证指标名列前茅

2017年10月31日,中国科学技术信息研究所在中国科技论文统计结果发布会上公布了2016年度中国科技论文统计结果.统计结果显示《环境科学》2015年度总被引频次10 024,影响因子1.878,多项引证指标位居环境科学技术及资源科学技术类科技期刊前列.



CONTENTS

Characterization and Variation of Organic Carbon (OC) and Elemental Carbon (EC) in PM _{2.5} During the Winter in the Yangtze River Delta Region, China	KANG Hui, ZHU Bin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i>	(961)
Important Effect of Secondary Inorganic Salt Extinction on Visibility Impairment in the Northern Suburb of Nanjing	YU Chao, YU Xing-na, ZHAO Tian-liang, <i>et al.</i>	(972)
Day-Night Differences and Source Apportionment of Inorganic Components of PM _{2.5} During Summer-Winter in Changzhou City	LIU Jia-shu, GU Yuan, MA Shuai-shuai, <i>et al.</i>	(980)
Characteristics of Elements in PM _{2.5} and PM ₁₀ in Road Dust Fall During Spring in Tianjin	WANG Shi-bao, JI Ya-qin, LI Shu-li, <i>et al.</i>	(990)
Particle Size Distribution and Human Health Risk Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Particles from Beijing and Xinxiang During Summer	ZHANG Xin, ZHAO Xiao-man, MENG Xue-jie, <i>et al.</i>	(997)
Ecological and Health Risks of Trace Heavy Metals in Atmospheric PM _{2.5} Collected in Wuxiang Town, Shanxi Province	GUO Zhao-xia, GENG Hong, ZHANG Jin-hong, <i>et al.</i>	(1004)
Characteristics of Particulate and Inorganic Elements of Motor Vehicles Based on a Tunnel Environment	LI Feng-hua, ZHANG Yan-jie, ZHANG Jing, <i>et al.</i>	(1014)
A 2013-based Atmospheric Ammonia Emission Inventory and Its Characteristic of Spatial Distribution in Henan Province	WANG Chen, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i>	(1023)
Emission Characteristics of Wind Erosion Dust from Topsoil of Urban Roadside-Tree Pool	LI Bei-bei, QIN Jian-ping, QI Li-rong, <i>et al.</i>	(1031)
Particulate Component Emission Characteristic from a Diesel Bus with DOC and CDPF	LOU Di-ming, GENG Xiao-yu, SONG Bo, <i>et al.</i>	(1040)
Water Quality in the Henan Intake Area of the South-to-North Water Diversion Project	HUANG Piao-yi, XU Bin, GUO Dong-liang	(1046)
Spatio-Temporal Patterns and Environmental Risk of Endocrine Disrupting Chemicals in the Liuxi River	FAN Jing-jing, WANG Sai, TANG Jin-peng, <i>et al.</i>	(1053)
Fate and Origin of Major Ions in River Water in the Lhasa River Basin, Tibet	ZHANG Qing-hua, SUN Ping-an, HE Shi-yi, <i>et al.</i>	(1065)
Identification of Nitrate Sources and the Fate of Nitrate in Downstream Areas: A Case Study in the Taizi River Basin	LI Yan-li, YANG Zi-rui, YIN Xi-jie, <i>et al.</i>	(1076)
Sources, Distribution of Main Controlling Factors, and Potential Ecological Risk Assessment for Heavy Metals in the Surface Sediment of Hainan Island North Bay, South China	ZENG Wei-te, YANG Yong-peng, ZHANG Dong-qiang, <i>et al.</i>	(1085)
Characteristics of Heavy Metals Pollution of Farmland and the Leaching Effect of Rainfall in Tianjin	XU Meng-meng, LIU Ai-feng, SHI Rong-guang, <i>et al.</i>	(1095)
Seasonal Difference in Water Quality Between Lake and Inflow/Outflow Rivers of Lake Taihu, China	ZHA Hui-ming, ZHU Meng-yuan, ZHU Guang-wei, <i>et al.</i>	(1102)
Characteristics of Nitrogen Release at the Sediment-Water Interface in the Typical Tributaries of the Three Gorges Reservoir During the Sensitive Period in Spring	LI Xin, SONG Lin-xu, JI Dao-bin, <i>et al.</i>	(1113)
Spatial Distributions of Transferable Nitrogen Forms and Influencing Factors in Sediments from Inflow Rivers in Different Lake Basins	ZHOU Rui, YUAN Xu-yin, Marip Ja Bawk, <i>et al.</i>	(1122)
Effects of Hydrological and Meteorological Conditions on Diatom Proliferation in Reservoirs	SUN Xiang, ZHU Guang-wei, DA Wen-yi, <i>et al.</i>	(1129)
Vertical Distribution of Fungal Community Composition and Water Quality During the Deep Reservoir Thermal Stratification	SHANG Pan-lu, CHEN Sheng-nan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i>	(1141)
Community Structure and Influencing Factors of Bacterioplankton in Spring in Zhushan Bay, Lake Taihu	XUE Yin-gang, LIU Fei, SUN Meng, <i>et al.</i>	(1151)
Characteristics of Sediment Oxygen Demand in a Drinking Water Reservoir	SU Lu, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i>	(1159)
Effects of Wastewater Nitrogen Concentrations and NH ₄ ⁺ /NO ₃ ⁻ on Nitrogen Removal Ability and the Nitrogen Component of <i>Myriophyllum aquaticum</i> (Vell.) Verde	MA Yong-fei, YANG Xiao-zhen, ZHAO Xiao-hu, <i>et al.</i>	(1167)
Effect of Nutrient Loadings on the Regulation of Water Nitrogen and Phosphorus by <i>Vallisneria spiralis</i> and Its Photosynthetic Fluorescence Characteristics	ZHOU Yi-wen, XU Xiao-guang, HAN Rui-ming, <i>et al.</i>	(1180)
Removal of Organic Matter from Water by Chemical Preoxidation Coupled with Biogenic Manganese Oxidation	JIAN Zhi-yu, CHANG Yang-yang, WANG Li-xin, <i>et al.</i>	(1188)
Treating Simulated Dye Wastewater by an <i>In Situ</i> Copper Ferrite Process	HAN Zhi-yong, HAN Kun, HAO Hao-tian, <i>et al.</i>	(1195)
Experiment to Enhance Catalytic Activity of α -FeOOH in Heterogeneous UV-Fenton System by Addition of Oxalate	MIAO Xiao-zeng, DAI Hui-wang, CHEN Jian-xin, <i>et al.</i>	(1202)
Fabrication of a Biomass-Based Hydrous Zirconium Oxide Nanocomposite for Advanced Phosphate Removal	QIU Hui, QIN Zhi-feng, LIU Feng-ling, <i>et al.</i>	(1212)
Characteristic of Nitrate Adsorption in Aqueous Solution by Iron and Manganese Oxide/Biochar Composites	ZHENG Xiao-qing, WEI An-lei, ZHANG Yi-xuan, <i>et al.</i>	(1220)
Preparation of PAAm/HACC Semi-Interpenetrate Network Hydrogel and Its Adsorption Properties for Humic Acid from Aqueous Solution	LIU Ze-jun, ZHOU Shao-qi, MA Fu-zhen	(1233)
Groundwater Arsenic and Silicate Adsorption on TiO ₂ and the Regeneration of TiO ₂	MA Wen-jing, YAN Li, ZHANG Jian-feng	(1241)
Removal Efficiency and Mechanism of Removal by Humic Acid of the Integrated Floc-ultrafiltration Process	LI Wen-jiang, YU Li-fang, MIAO Rui, <i>et al.</i>	(1248)
Emission Inventory of Greenhouse Gas from Urban Wastewater Treatment Plants and Its Temporal and Spatial Distribution in China	YAN Xu, QIU De-zhi, GUO Dong-li, <i>et al.</i>	(1256)
Start-up and Operation of Biofilter Coupled Nitrification and CANON for the Removal of Iron, Manganese and Ammonia Nitrogen	LI Dong, CAO Rui-hua, YANG Hang, <i>et al.</i>	(1264)
Analysis of CANON Process Start-up with Fiber Carrier	GU Cheng-wei, CHEN Fang-min, LI Xiang, <i>et al.</i>	(1272)
Characteristics of Biofilm During the Transition Process of Complete Nitrification and Partial Nitrification	ZHAO Qing, BIAN Wei, LI Jun, <i>et al.</i>	(1278)
Effect of Intermediate-Setting Aeration on the CANON Granular Sludge Process in the AUSB Reactor	CHENG Shuo, LI Dong, ZHANG Jie, <i>et al.</i>	(1286)
Effect of Organic Carbon Source on Start-up and Operation of the CANON Granular Sludge Process	LI Dong, WANG Yan-ju, LU Yu-feng, <i>et al.</i>	(1294)
Start-Up and Regional Characteristics of a Pilot-scale Integrated PN-ANAMMOX Reactor	ZHOU Zheng, WANG Fan, LIN Xing, <i>et al.</i>	(1301)
Effect of NO _x ⁻ -N Recycling Ratio on Denitrifying Phosphorus Removal Efficiency in the ABR-MBR Combined Process	LÜ Liang, YOU Wen, ZHANG Min, <i>et al.</i>	(1309)
Effects of Magnetic Fe ₃ O ₄ Nanoparticles on the Characteristics of Anaerobic Granular Sludge and Its Interior Microbial Community	SU Cheng-yuan, ZHENG Peng, LU Yu-xiang, <i>et al.</i>	(1316)
Characterization Composition of Soluble Microbial Products in an Aerobic Granular Sludge System	YANG Dan, LIU Dong-fang, DU Li-qiong, <i>et al.</i>	(1325)
Influence of Ciprofloxacin on the Microbial Community and Antibiotics Resistance Genes in a Membrane Bioreactor	DAI Qi, LIU Rui, LIANG Yu-ting, <i>et al.</i>	(1333)
Analysis of Low C/N Wastewater Treatment and Structure by the CEM-UF Combined Membrane-Nitrification/Denitrification System	XING Jin-liang, ZHANG Yan, CHEN Chang-ming, <i>et al.</i>	(1342)
Effects of Phosphorus on the Activity and Bacterial Community in Mixotrophic Denitrification Sludge	WANG Pei-qi, ZHOU Wei-li, HE Sheng-bing, <i>et al.</i>	(1350)
Acclimatization and Community Structure Analysis of the Microbial Consortium in Nitrate-Dependent Anaerobic Methane Oxidation	XUE Song, ZHANG Meng-zhu, LI Lin, <i>et al.</i>	(1357)
Diffusion of Microorganism and Main Pathogenic Bacteria During Municipal Treated Wastewater Discharged into Sea	XU Ai-ling, NIU Cheng-jie, SONG Zhi-wen, <i>et al.</i>	(1365)
Oxytetracycline Wastewater Treatment in Microbial Fuel Cells and the Analysis of Microbial Communities	YAN Wei-fu, XIAO Yong, WANG Shu-hua, <i>et al.</i>	(1379)
Spatial and Temporal Variability of Soil C-to-N Ratio of Yugan County and Its Influencing Factors in the Past 30 Years	JIANG Ye-feng, ZHONG Shan, LI Jie, <i>et al.</i>	(1386)
Spatial Heterogeneity of Soil Carbon and its Fractions in the Wolfberry Field of Zhongning County	WANG You-qi, ZHAO Yun-peng, BAI Yi-ru, <i>et al.</i>	(1396)
Response of Soil Enzyme Activities and Their Relationships with Physicochemical Properties to Different Aged Coastal Reclamation Areas, Eastern China	XIE Xue-feng, PU Li-jie, WANG Qi-qi, <i>et al.</i>	(1404)
Distribution, Sources, and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Soils of the Central and Eastern Areas of the Qinghai-Tibetan Plateau	ZHOU Wen-wen, LI Jun, HU Jian, <i>et al.</i>	(1413)
Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around Mining Area Based on UNMIX Model	LU Xin, HU Wen-you, HUANG Biao, <i>et al.</i>	(1421)
Stabilization Effects of Fe-Mn Binary Oxide on Arsenic and Heavy Metal Co-contaminated Soils Under Different pH Conditions	FEI Yang, YAN Xiu-lan, LI Yong-hua	(1430)
Concentration and Distribution of Novel Brominated Flame Retardants in Human Serum from Three Chinese Cities	WANG Qing-hua, YUAN Hao-dong, JIN Jun, <i>et al.</i>	(1438)