

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2019

Vol.40 No.12

第40卷 第12期

目次(卷终)

研究报告

- 京津冀秋冬季 PM_{2.5} 污染概况和预报结果评估 朱媛媛, 高愈霄, 刘冰, 王晓彦, 朱莉莉, 许荣, 汪巍, 丁俊男, 李健军, 段小丽 (5191)
- 2016 ~ 2017 年采暖期华北平原东部 PM_{2.5} 组分特征及来源解析 张逸琴, 王杰, 高健, 徐仲均, 车飞, 马彤, 杨艳, 刘素, 闫璐璐 (5202)
- 霾不同发展阶段下污染气体和水溶性离子变化特征分析 王振彬, 刘安康, 卢文, 杨晓旻, 王红磊, 陈魁, 夏丽 (5213)
- 上海郊区家庭妇女 PM_{2.5} 重金属组分暴露水平、来源与健康风险 罗燃燃, 戴海夏, 张蕴晖, 乔利平, 马英歌, 周敏, 夏斌, 朱清扬, 赵迎亚, 黄成 (5224)
- 固定污染源可凝结颗粒物测量方法 蒋靖坤, 邓建国, 王刚, 张莹, 李妍菁, 段雷, 郝吉明 (5234)
- 家具企业挥发性有机物排放特征及其环境影响 张嘉妮, 曾春玲, 刘锐源, 姚懿娟, 柯云婷, 范丽雅, 叶代启 (5240)
- 抗生素企业 VOCs 排放清单及影响范围模拟 竹涛, 吕怡蓉, 边文璟, 牛文凤, 袁前程, 段二红, 于洋, 林军 (5250)
- 新乡市机动车排放对道路灰尘中重金属与多环芳烃污染的影响 李琦路, 吴锦涛, 张颖, 孙玉静, 乔泓钦, 张子伟, 裴梦园, 张孟琼, 任明浩 (5258)
- 成都市道路积尘中全氟化合物的污染特征及暴露风险评估 方淑红, 朱和祥, 叶芝祥, 印红玲, 孙静 (5265)
- 祁连山北坡中段降水稳定同位素特征及水汽来源分析 张百娟, 李宗省, 王昱, 李永格, 吕越敏, 袁瑞丰, 桂娟 (5272)
- 长江南京段水源水中抗生素的赋存特征与风险评估 封梦娟, 张芹, 宋宁慧, 卜元卿, 杨正标, 刘艳华, 郭瑞昕, 陈建秋, 张圣虎 (5286)
- 夏秋季混凝剂对复合锰氧化膜去除地表水中氨氮和锰的影响 程丽杰, 黄廷林, 程亚, 张莎莎, 阮昭意, 卢磊 (5294)
- 浙江省 H 市供水系统消毒副产物及其健康风险评价 刘俊萍, 于建全, 李青松, 马晓雁, 杨玉龙, 贾佳 (5302)
- 三峡库区城镇化背景下河流 DOM 的吸收及荧光光谱特征 陈昭宇, 李思悦 (5309)
- 川西高原河流水体 CDOM 的光化学降解特性 刘堰杨, 孙辉, 刘琛, 王小沁 (5318)
- 三峡库区典型紫色土小流域径流及氮磷流失特征 曹瑞霞, 刘京, 邓开开, 先宇, 王伟, 方芳, 欧阳文娟, 郭劲松 (5330)
- 九龙江流域河流磷输出对土地利用模式及水文状况的响应 黄亚玲, 唐莉, 黄金良, 肖才荣 (5340)
- 不同尺度土地利用方式对鄱阳湖湿地水质的影响 方娜, 刘玲玲, 游清徽, 田娜, 吴燕平, 阳文静 (5348)
- 太湖草藻型湖区磷赋存特征及其环境意义 耿雪, 文帅龙, 孙培荣, 徐楚天, 李大鹏, 黄勇 (5358)
- 太湖竺山湾沉积物碳氮磷分布特征与污染评价 方家琪, 祁闯, 张新厚, 韩睿明, 黄和笑, 王卓森, 王国祥 (5367)
- 降雨强度对洱海流域凤羽河氮磷排放的影响 李晓虹, 雷秋良, 周脚根, 张亦涛, 李影, 胡万里, 武淑霞, 翟丽梅, 王洪媛, 刘宏斌 (5375)
- 外源 Ca²⁺ 和 K⁺ 作用下河口区碱蓬水质净化效果和耐盐碱提高机制 吴丹, 孙萍, 陈广琳, 陈友媛, 彭昌盛 (5384)
- 泽泻 (*Alisma orientale*) 对全氟化合物的吸收和传输特征-浓度的影响 王团团, 李贝贝, 王赛, 华佩, 陈军, 应光国 (5394)
- 复合人工湿地中反硝化除磷作用的发生及其稳定性 刘冰, 郑煜铭, 李清飞, 赵承美, 魏巍, 张凯 (5401)
- 铅、镉和铜改性沸石添加控制底泥磷释放的对比 刘婷, 赵钰颖, 林建伟, 詹艳慧, 秦琴 (5411)
- 生物炭结构性质对氨氮的吸附特性影响 陈梅, 王芳, 张德俐, 易维明 (5421)
- 溶解氧对悬浮与附着生长系统短程硝化反应的影响机制 王嗣禹, 刘灵婕, 王芬, 季民 (5430)
- 间歇恒定/梯度曝气对 SNAD 工艺启动的影响 李冬, 刘志成, 徐贵达, 李帅, 张杰 (5438)
- 共基质模式下铁盐脱氮反应器的运行性能及微生物学特征 王茹, 刘梦瑜, 刘冰茵, 赵治国, 袁林江 (5446)
- 阶梯曝气对城市污水好氧颗粒污泥系统的影响 李冬, 魏子清, 劳会妹, 李帅, 张杰 (5456)
- 酵母菌降解胞外聚合物提升剩余活性污泥的脱水性能 俞心怡, 向金豪, 刘英, 龚天翼, 张彬辉, 吕文洲 (5465)
- 基于 GEE 的 1998 ~ 2018 年京津冀土地利用变化对生态系统服务价值的影响 娄佩卿, 付波霖, 林星辰, 闭璐, 马瑞雪, 唐廷元 (5473)
- 基于 MDS 与 TOPSIS 模型的滨海滩涂围垦区土壤质量评价 解雪峰, 濮励杰, 朱明, 吴涛, 许艳 (5484)
- 淹水增加对闽江河口淡水潮汐湿地孔隙水地球化学特征及 CO₂ 和 CH₄ 排放通量的影响 李敬, 黄佳芳, 罗敏, 刘育秀, 谭季, 朱爱菊, 王声钰, 仝川 (5493)
- 养殖塘 CH₄ 排放特征及其影响因素 王娇, 肖薇, 张秀芳, 张弥, 张文庆, 刘强, 陈争, 董保华, 李旭辉 (5503)
- 施肥对高梁地土壤呼吸及其温度敏感性的影响 严俊霞, 张媛, 焦晓燕 (5515)
- 高硒高镉区土地安全区划方法 王锐, 侯宛苓, 李雨潼, 余涛, 陈娟 (5524)
- 不同配比复合材料对农田镉污染土壤的修复效果 陈树兰, 许晨阳, 耿增超, 王强, 祝乐, 龚园, 拓卫卫 (5531)
- 水铝钙石对不同镉污染农田重金属的钝化效果及机制 吴秋梅, 刘刚, 王慧峰, 胡文友, 黄标 (5540)
- 狮子山矿区不同土地利用类型对土壤微生物群落多样性的影响 黄健, 朱旭炎, 陆金, 孙雨, 赵兴青 (5550)
- 林地转型耕地对东北丘陵区白浆土 *cbbL* 细菌群落丰度和结构的影响 王蕊, 吴宪, 李刚, 修伟明, 王丽丽, 张贵龙 (5561)
- 粤港澳大湾区场地污染特征、治理修复与环境管理研究专辑
- 粤港澳大湾区污染场地土壤风险管控制度体系建设与思考 常春英, 董敏刚, 邓一荣, 肖荣波, 刘丽丽 (5570)
- 粤港澳大湾区土壤污染问题计量及可视化分析 张宁, 张盛, 杨海超, 张建通 (5581)
- 城市生活垃圾填埋场的物质存量特征及其环境影响: 以粤港澳大湾区为例 马仕君, 周传斌, 杨光, 赵志岚, 刘懿颀 (5593)
- 粤港澳大湾区丘陵区带某电镀场地重金属污染特征与迁移规律分析 侯文隽, 龚星, 詹泽波, 刘锋, 黄子航, 杨立宏, 林晓琛 (5604)
- 粤港澳大湾区典型化工场地苯系物污染特征及迁移规律 邓一荣, 陆海建, 董敏刚, 程洲, 庄长伟, 肖荣波, 钟音, 彭平安 (5615)
- 针铁矿-富里酸复合材料对铅镉污染土壤的钝化修复性能 刘千钧, 李想, 周阳媚, 唐杰鹏, 林亲铁, 姚琨 (5623)
- 广东大宝山矿区土壤植物体系重金属迁移过程及风险评价 陈洁宜, 刘广波, 崔金立, 肖唐付 (5629)
- Hydrus-1D 模型在推导基于保护地下水的土壤风险控制值中的应用 林挺, 罗飞, 朱艳, 杨坤, 郝秀平 (5640)
- 《环境科学》第 40 卷(2019 年) 总目录 (5649)
- 《环境科学》征订启事(5233) 《环境科学》征稿简则(5285) 信息(5357, 5420, 5429)

上海郊区家庭妇女 $PM_{2.5}$ 重金属组分暴露水平、来源与健康风险

罗燃燃^{1,2}, 戴海夏^{1,2*}, 张蕴晖^{1*}, 乔利平², 马英歌², 周敏², 夏斌¹, 朱清扬¹, 赵迎亚¹, 黄成²

(1. 复旦大学公共卫生学院, 公共卫生安全教育部重点实验室, 上海 200032; 2. 上海市环境科学研究院, 国家环境保护城市大气复合污染成因与防治重点实验室, 上海 200233)

摘要: 为了解上海市郊区家庭妇女大气 $PM_{2.5}$ 及重金属组分的呼吸暴露水平和潜在健康风险, 于2017年2月至2018年6月使用SKC个体采样泵对松江区143位研究对象开展个体暴露监测, 采用能量色散X射线荧光光谱法(ED-XRF)测定 $PM_{2.5}$ 中13种无机元素的质量浓度。利用PMF源解析技术和美国环保署推荐的健康风险评估模型, 对Ni、V、Cr、Mn、As和Pb的来源和暴露风险进行分析。结果表明, 家庭主妇 $PM_{2.5}$ 的年均暴露浓度为 $40.61 \mu g \cdot m^{-3}$, 普遍高于周边环境监测站点的 $PM_{2.5}$ 平均水平。Cr(VI)和As的致癌健康风险超过了可接受水平(10^{-6}); V、Cr(VI)、Mn、Ni和As的非致癌风险处于安全水平, 但5种元素的非致癌风险加和超出了安全阈值(>1)。 $PM_{2.5}$ 中10种无机元素(Al、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Ni、Zn、As和Pb)的主要来源包括扬尘与室内源混合源(43.8%)、工业冶炼尘(34.6%)、燃煤(14.5%)和燃油(7.2%)。根据源类的健康风险评估结果, 应进一步加强工业冶炼和化石燃料燃烧综合防控。

关键词: $PM_{2.5}$; 个体暴露; 重金属; 来源; 健康风险评估

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2019)12-5224-10 DOI: 10.13227/j.hjks.201905043

Exposure Levels, Sources, and Health Risks of Heavy Metal Components of $PM_{2.5}$ in Housewives in Rural Shanghai

LUO Ran-ran^{1,2}, DAI Hai-xia^{1,2*}, ZHANG Yun-hui^{1*}, QIAO Li-ping², MA Ying-ge², ZHOU Min², XIA Bin¹, ZHU Qing-yang¹, ZHAO Ying-ya¹, HUANG Cheng²

(1. Key Laboratory of Public Health Safety, Ministry of Education, School of Public Health, Fudan University, Shanghai 200032, China; 2. State Environmental Protection Key Laboratory of Formation and Prevention of Urban Air Pollution Complex, Shanghai Academy of Environmental Sciences, Shanghai 200233, China)

Abstract: To investigate exposure characteristics and potential health risk of $PM_{2.5}$ -bound heavy metals in housewives in rural areas, 265 personal exposure samples from 143 subjects were collected in the Songjiang district, Shanghai from February 2017 to June 2018. Mass concentrations of 13 elements in $PM_{2.5}$ were determined by energy-dispersive X-ray fluorescence spectrometry (ED-XRF). The sources of heavy metal components in $PM_{2.5}$ were analyzed using positive matrix factorization (PMF). The inhalation health risks of exposure to Ni, V, Cr, Mn, As, and Pb were analyzed using the US EPA health risk assessment model. The results showed that the average concentration of personal exposure to $PM_{2.5}$ was $40.61 \mu g \cdot m^{-3}$ in housewives, which was higher than the concentration at peripheral monitoring stations. The carcinogenic risks of Cr(VI) and As exceeded the acceptable risk level (10^{-6}). The non-carcinogenic risks of V, Cr(VI), Mn, Ni, and As were all below the safety threshold, while the total non-carcinogenic risks of these five elements were higher than the safety threshold (>1). The results of PMF indicated that resuspended dust and indoor dust (43.8%), the metallurgy industry (34.6%), coal combustion (14.5%), and fossil-fuel combustion (7.2%) were the major sources of ten elements (Al, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Zn, As, and Pb) in $PM_{2.5}$. Based on the results of health risk assessment of pollution sources, control measures on the metallurgy industry and fossil-fuel combustion should be further strengthened.

Key words: $PM_{2.5}$; personal exposure; heavy metals; source; health risk assessment

大量的流行病学和毒理学研究表明, 细颗粒物 (fine particulate matter, $PM_{2.5}$) 的呼吸暴露会对人体造成多种不良的健康效应^[1]。而 $PM_{2.5}$ 的毒性大小受空气动力学直径、肺泡沉积效率及化学组分等多种因素的影响^[2]。重金属元素是 $PM_{2.5}$ 中的重要毒性组分之一, 可以对人体造成急慢性健康损害, 甚至会导致癌症的发生^[3]。有研究发现 $PM_{2.5}$ 中的重金属元素会引起人体心肺功能的急性改变, 如心率、心率变异性、血压和肺活量的变化等^[4~7]。此外, 重

金属进入血液循环后可以分布蓄积在人体的各组织器官中, 且很难被清除, 对人体产生慢性健康影响。例如, As 和 Pb 均能够在脑组织蓄积, 从而导致神经系统疾病, 并且两者还可能诱导心脑血管疾病的发

收稿日期: 2019-05-07; 修订日期: 2019-07-09

基金项目: 国家重点研发计划项目 (2016YFC0206800, 2016YFC0206801)

作者简介: 罗燃燃 (1995~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为环境与妇女儿童健康, E-mail: 18211020075@fudan.edu.cn

* 通信作者, E-mail: Daihx@saes.sh.cn; yhzhang@shmu.edu.cn

生;Ni 和 V 均可能导致肺部的慢性病变,如肺纤维化;As、Pb、Ni、Cr 和 Cd 等重金属具有致癌性,可能诱发癌症^[2, 8~11]。因此研究 $\text{PM}_{2.5}$ 载带重金属对人群的健康风险,对于健康风险的量化分析和健康管理决策具有重要意义。

国内很多城市如北京^[12, 13]、上海^[14]、南京^[15]和成都^[16]等已经开展了对大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中重金属暴露的健康风险评估。然而这些研究大都是基于环境监测站点数据评估该地区人群的暴露健康风险。对于特定人群来说,其 $\text{PM}_{2.5}$ 暴露不仅受到室外大气污染源的影响,还受到室内场所污染源的影响。Oglesby 等^[17]指出对于特定来源的暴露,环境监测站点的数据可能无法准确衡量个体暴露。Ryan 等^[18]比较了室外、室内及个体样本的 $\text{PM}_{2.5}$ 元素组成,并使用主成分分析和聚类分析法检验了不同样本元素组成的异质性,发现室外监测站点 $\text{PM}_{2.5}$ 的元素组成与个体 $\text{PM}_{2.5}$ 的元素组成存在一定差异。由于环境监测站点数据无法评估室内源所导致的暴露,也未考虑人群时间活动模式等因素的影响,因此,在健康风险评价中使用个体监测数据能获得更为准确的暴露信息。

2012 年发表的全球疾病负担报告称,吸烟(包括二手烟)、环境空气污染和来自固体燃料燃烧的家庭空气污染是包括中国在内许多发展中国家的主要环境风险因素^[19~21]。家庭主妇在家庭生活中承担着重要角色。近年来,有关家庭主妇的社会学研究倾向于将“家庭主妇”看做一种特殊的职业^[22]。作为长时间待在室内的群体之一,家庭主妇的心理和生理健康都值得被重点关注。有研究表明家庭主妇的日常活动(如烹饪、使用清洁剂和打扫卫生等)与室内空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的升高有关,并且室内 $\text{PM}_{2.5}$ 暴露与家庭主妇心率变异性的下降存在关联^[23]。Mu 等^[24]研究了室内空气污染与不吸烟女性的肺癌风险的关系,结果表明高频率的烹饪活动以及固体燃料的使用与肺癌之间存在显著的关联。因此,家庭主妇可能因为烹饪等活动产生更高的 $\text{PM}_{2.5}$ 吸入暴露,从而导致更高的健康风险。然而,家庭主妇的 $\text{PM}_{2.5}$ 及重金属组分的暴露水平和潜在健康风险究竟如何,目前还鲜见报道。

根据 $\text{PM}_{2.5}$ 特定组分的构成情况开展来源解析有助于认识 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要来源,从而为制定有效的污染控制对策提供参考依据。Khan 等^[25]和 Peng 等^[26]通过源解析的技术手段,比较 $\text{PM}_{2.5}$ 中重金属的源解析结果与特定来源的健康风险时发现,源类对重金属浓度水平的贡献程度与源类的人群健康风险之间存在显著差异。因此在确定空气污染优先控

制来源时,仅将源类对环境污染物的贡献值作为判断依据尚不够完善。Liu 等^[27]认为应当将源解析与健康风险评估方法结合起来,以评估特定源类的人群健康风险,从而确定优先控制源。

近年来,上海市大气 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度呈现逐年改善的趋势。从空间分布看,受区域输送和二次生成的影响,总体呈西高东低的分布态势^[28, 29]。根据相关研究^[30],上海市大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中重金属的时间变化规律与 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度基本一致,并受人为源排放影响较大。与城区相比,郊区大气 $\text{PM}_{2.5}$ 重金属的含量水平受到工业生产、农作活动和自然源等多种因素影响而呈现复杂特征,然而迄今为止,相关研究仍较为缺乏。为深入了解上海市郊区空气重金属污染特征和特定人群的暴露风险,本文选择上海市松江区家庭主妇作为研究对象,通过开展该群体 $\text{PM}_{2.5}$ 及其中载带重金属的个体呼吸暴露特征分析和健康风险评估,鉴别该区域对家庭主妇具有潜在健康威胁的重金属成分及来源,以期对大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中重金属暴露风险防控提供参考依据。

1 材料与方法

1.1 调查对象

根据自愿原则,招募居住在上海市松江区家庭主妇(健康,不吸烟)开展个体 $\text{PM}_{2.5}$ 暴露样本监测,松江区位于上海市西南部,总面积 604.64 km²,占上海市总面积的 9.5%,常住人口 176 万。该区域具有国家级工业园区,产业门类包括电子信息、食品加工、精细化工、现代装备和金属制品等行业。本研究先后共计纳入 143 名志愿者。所有调查对象均已签署知情同意书。研究对象的年龄范围在 18~42 岁之间,平均年龄为 29 岁。具体的年龄分布如表 1 所示。

表 1 研究对象的年龄分布

Table 1 Age distribution of subjects

年龄组	人数	百分比/%
18~24	5	3.5
24~30	86	60.1
30~36	39	27.3
36~42	13	9.1
合计	143	100.0

1.2 个体 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度监测

在 2017 年 2 月至 2018 年 6 月期间的四季,对调查对象开展 1~3 次的个体监测。采样期间,调查对象随身携带装载有直径为 37 mm 的特氟龙(Teflon)滤膜(美国 PALL 公司)的 SKC 个体采样泵(SK220-5000TC AirChek TOUCH,美国 SKC 公

司), PM_{2.5} 粒径切割头置于研究对象的肩部, 采样泵置于双肩包中并固定于研究对象的呼吸带高度, 以 4 L·min⁻¹ 的流量连续采集 72 h, 每次采样于第 1 d 上午 09:00 ~ 10:00 安装并启动, 第 4 d 上午 09:00 ~ 10:00 结束, 并采用问卷调查的方式记录研究对象同时期的时间活动模式. 在对个体进行采样的同时, 同步搜集调查对象居住地周边环境监测站点的 PM_{2.5} 小时浓度监测数据. 采样结束后, 在超净台中将 Teflon 滤膜从切割头中取出, 并储存于 -20℃ 冰箱中, 直至后续的重量称重和无机元素组分分析. 本研究共计采集 265 例个体 PM_{2.5} 暴露样本.

1.3 样品分析方法

PM_{2.5} 的质量浓度通过称重法进行计算. Teflon 滤膜的称量条件和要求参照《环境空气颗粒物 (PM_{2.5}) 手工监测方法 (重量法) 技术规范》(HJ 656-2013) 执行. 滤膜恒温恒湿 24 h 后, 采用检定分度值为 0.001 mg 的天平进行称量, 称量环境为: 温度 20℃ ± 1℃、相对湿度 50% ± 5%. 根据采样前后 Teflon 膜的质量差和实际采样体积计算个体 PM_{2.5} 暴露的质量浓度. 平行两次称量的质量之差控制在 ±0.02 mg.

PM_{2.5} 滤膜样品中无机元素采用能量色散 X 射线荧光光谱法 (ED-XRF) 进行分析. 使用能量色散 X 射线荧光光谱分析仪 (Epsilon 5, 荷兰 PANalytical 公司) 对采集的 Teflon 滤膜进行检测. 分析的无机元素包括 Al、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Zn、As、Mo、Cd 和 Pb 共 13 种. Co、Mo 和 Cd 检出率低于 20%, 不参与后续分析.

1.4 PM_{2.5} 中重金属的来源解析

根据美国环保署综合风险信息数据库 (Integrated Risk Information Database, IRIS) 相关研究^[31], V、Cr、Mn、Ni、Pb 和 As 这 6 种重金属元素具有明确的急慢性毒性效应, 使用正定矩阵因子分解法 (positive matrix factorization, PMF) 对这 6 种毒害重金属元素来源进行解析. 该方法根据大量样品的化学物种相关关系, 从中归纳总结公因子, 计算因子载荷, 通过因子载荷以及源类特征示踪物推断源类别. PMF 法遵循质量平衡原理^[32], 即:

$$X = G \cdot F + E \tag{1}$$

式中, X 表示给定受体的成分谱; G 表示源对受体的贡献; F 代表化学组分在来源中的质量分数, 即源成分谱; E 为残差矩阵.

为了提高源解析模型的效率^[27], 在 PMF 模型中引入 Al、Ti、Fe 和 Zn 这 4 种无机元素. 基础模型运算后, 使用位移 (displacement) 误差估计和自举 (bootstrap) 误差估计对 PMF 模型的不确定性进行

评估.

1.5 PM_{2.5} 中重金属的健康风险评价模型

采用美国环保署 (US EPA) 推荐的人群暴露健康风险评价模型^[33] 开展致癌和非致癌风险评估. 选取上述 V、Cr、Mn、Ni、Pb 和 As 这 6 种毒害重金属开展暴露风险评估. 相关毒性参数见表 2^[27, 34]. 其中 Cr(VI)、Ni、As 和 Pb 兼具有致癌效应和非致癌效应, 而 V 和 Mn 主要产生非致癌效应. 由于 Cr 的毒性与其存在价态有关, Cr(VI) 为明确的人类致癌物, 而尚无足够证据表明 Cr(III) 具有潜在致癌性, 所以在风险评估时主要考虑 Cr(VI) 的健康风险. Cr(VI) 的浓度以总 Cr 浓度的 1/7 计^[27].

表 2 6 种重金属经呼吸途径暴露的毒性参数
Table 2 Toxic parameters of six heavy metals through inhalation route

重金属	IUR/($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) ⁻¹	RfC/ $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$
Cr(VI)	1.20E-02	1.00E-04
As	4.30E-03	1.50E-05
Ni	2.40E-04	1.40E-05
Pb	1.20E-05	— ¹⁾
Mn	—	5.00E-05
V	—	1.00E-04

1) “—”表示暂无相应数据

1.5.1 日均暴露浓度计算方法

人体经呼吸途径吸入重金属的日均暴露浓度 (EC_{inh} , $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 计算公式见式(2).

$$\text{EC}_{\text{inh}} = \frac{\text{CA} \times \text{ET} \times \text{EF} \times \text{ED}}{\text{AT}} \tag{2}$$

式中, CA 为 PM_{2.5} 中重金属的浓度, $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 使用个体暴露浓度平均值的 95% 置信区间的上限 (95% UCL) 表示^[13], 由于本研究样本量大于 100, 可以认为均值近似服从正态分布, 95% UCL 使用 $\bar{X} + Z_{0.05/2}S_{\bar{X}}$ 计算. 其中, $\bar{X}$ 为样本的算术均值, $S_{\bar{X}}$ 为样本均数的标准差. ET 为暴露时间, $\text{h}\cdot\text{d}^{-1}$, 本研究为 24 $\text{h}\cdot\text{d}^{-1}$; EF 为暴露频率, $\text{d}\cdot\text{a}^{-1}$, 本研究为 365 $\text{d}\cdot\text{a}^{-1}$; ED 为暴露持续时间^[27], a , 对于成年人来说, 以 30 a 计; AT 为平均暴露时间^[35], h , 对于非致癌物, $\text{AT} = \text{ED} \times 365 \times 24$, 对于致癌物, $\text{AT} = 70 \times 365 \times 24$.

1.5.2 健康风险评价方法

致癌风险以终生暴露超额致癌风险 ILCR 衡量, 为重金属元素终生日均暴露浓度与该元素单位吸入风险 [IUR , ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)⁻¹] 的乘积, 计算公式见式(3):

$$\text{ILCR} = \text{EC}_{\text{inh}} \times \text{IUR} \tag{3}$$

式中, IUR 表示人群持续暴露于质量浓度为 1 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 元素时产生终生超额致癌风险估计值的上限. ILCR 为无量纲值, 表示人群终生 (70 a) 暴露于一

定剂量的某致癌因素下罹患癌症的最大概率,通常以单位数量人口出现癌症患者的例数表示^[36]. 致癌风险的可接受水平为 10^{-6} ^[34, 37], 即当 $CR > 10^{-6}$ 时, 认为致癌物引起的风险超出可接受水平, 应引起关注.

非致癌风险以危害系数 (HQ) 衡量, 为重金属日均暴露浓度与参考浓度 ($RfC, \text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$) 的比值, 并以危害指数 (HI) 评价多种重金属元素以相加作用对人群产生的潜在非致癌风险. 分别见式 (4) 和式 (5).

$$HQ = \frac{EC_{inh}}{RfC \times 1000 \mu\text{g} \cdot \text{mg}^{-1}} \quad (4)$$

$$HI = \sum_{i=1}^n HQ_i \quad (5)$$

式中, RfC 表示人群 (包括易感人群) 通过呼吸途径终生暴露于某元素后不会产生明显有害效应的日均暴露浓度的估计值. 危害指数 (HI) 为所有参评元素单一摄入方式的危害系数之和. HQ 或 $HI < 1$ 时, 表示人群暴露浓度低于参考浓度, 可认为风险较小或可以忽略不计; 反之, 则认为存在非致癌风险.

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5} 及其载带重金属的暴露特征

采样期间, 家庭主妇个体 PM_{2.5} 年日均浓度为 $40.61 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ (四分位范围为 $29.30 \sim 55.92 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$), 低于《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 规定的日均浓度限值 ($75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$), 但高于周边环境监测站点 PM_{2.5} 的平均水平. 家庭主妇的月日均暴露浓度和周边环境监测站点 PM_{2.5} 浓度水平见图 1.

由图 1(a) 可见, 个体暴露数据变异范围较环境监测数据更大. 除 4、6、10、11 和 12 月外, 个体 PM_{2.5} 月均暴露浓度中位数均高于环境监测水平. 表明个体暴露浓度受到户外大气污染、个体行为活动模式、室内污染源等多种因素影响. 从季节分布看, 个体 PM_{2.5} 暴露水平及环境的月均浓度都呈现春冬高, 夏秋低的规律. 由图 1(b) 可知, 个体暴露与环境固定监测点数据线性拟合的 r^2 值 ($r^2 = 0.20$) 较低, 说明本研究群体的个体暴露浓度与固定监测点浓度之间相关性较弱. 提示若使用环境监测浓度代替个体暴露浓度水平可能存在一定的偏差.

PM_{2.5} 中重金属暴露浓度的平均水平由高到低依次为: Pb ($32.72 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) $>$ Mn ($22.25 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) $>$ V ($5.90 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) $>$ Cr ($5.18 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) $>$ Ni ($4.97 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) $>$ As ($3.32 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$). 与《环境空气质量标准》(GB3095-2012) 规定的浓度限值比较发现, Pb 和 As 的年平均浓度低于其规定的限值 (分别为 500

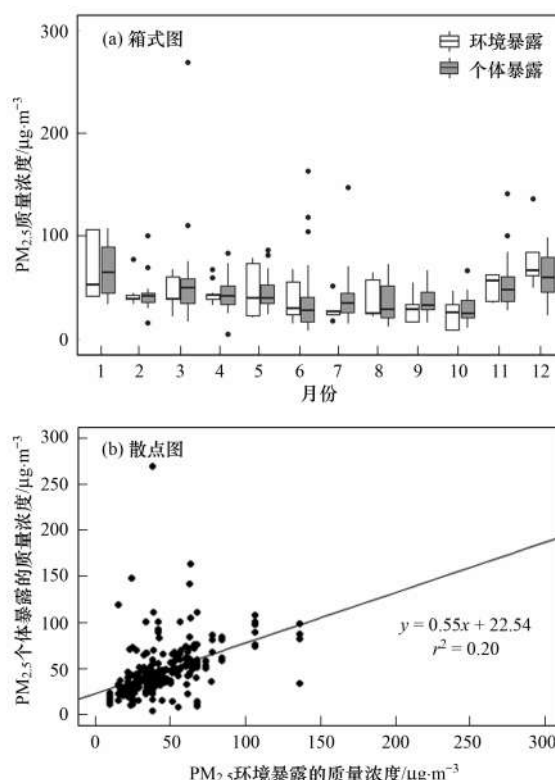


图 1 个体及环境 PM_{2.5} 质量浓度的箱式图及散点图

Fig. 1 Box plot and scatter plot of mass concentration of personal and ambient PM_{2.5}

$\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $6 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$), 而 Cr(VI) 的年平均浓度为 $0.74 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 高于国标中的参考限值 ($0.025 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$), 因此重金属元素 Cr 的污染应当引起重视.

表 3 列出了本研究与其它大气 PM_{2.5} 中重金属含量相关研究的对比情况. 由于重金属个体暴露相关研究较少, 对比的相关研究均为环境监测浓度. 通过比较发现, 本研究家庭主妇个体重金属暴露水平整体低于上海金山区^[38]、扬州^[39]、珠海^[40]和西安^[3]等城市大气 PM_{2.5} 重金属水平, 但 Ni 、 V 和 Cr 这 3 种重金属水平略高于北京市^[27] 相关研究. 这可能与上海受到船舶或相关工业源排放的影响有关.

不同季节家庭主妇 PM_{2.5} 载带重金属的个体暴露浓度水平如表 4 所示. 从中可知, As 、 Cr 、 Mn 、 Ni 、 Pb 这 5 种重金属元素的季节分布规律与 PM_{2.5} 浓度变化趋势基本一致, 呈现取暖季 (秋冬季或冬春季) 高、非取暖季 (夏季) 低的规律. 这与取暖季燃煤、燃油等污染排放增加以及不利的气象条件影响有关. 而 V 元素浓度呈现春夏季高于秋冬季的特征, 这与徐静等^[41] 在北京城郊的研究报道类似. 分析其原因, V 元素是重油燃烧的重要标识元素之一, 随着上海市中小锅炉“油改气、油改电”等清洁能源替代工程的推进, 工业重油燃烧对空气中 V 元素浓度水平的影响程度在逐渐减小, 而春夏季浓度较高可能与夏季季风将沿海船舶排放吹向内陆有关.

表 3 不同城市环境空气 PM_{2.5} 载带重金属的年均浓度比较/ng·m⁻³

Table 3 Annual average concentration of PM _{2.5} -bound heavy metals in different cities/ng·m ⁻³									
城市	采样方式	采样时间	V	Cr	Mn	Ni	As	Pb	文献
上海	个体采样	2017-02 ~ 2018-06	5.90	5.18	22.25	4.97	3.32	32.72	本研究
上海	环境采样	2015-07 ~ 2016-06	16	— ¹⁾	29	8	4	30	[38]
西安	环境采样	2015-05 ~ 2016-04	—	100.9	61.5	21.5	125.4	159	[3]
北京	环境采样	2016-01 ~ 2016-12	3.22	3.97	38.1	3.01	7.84	53.6	[27]
扬州	环境采样	2016-01 ~ 2016-12	25.24	—	5.36	6.36	64.4	—	[39]
珠海	环境采样	2014-04 ~ 2015-01	12.0	5.6	27.9	7.2	—	59.3	[40]

1) “—”表示无相应数据

表 4 不同季节 PM_{2.5} 载带重金属的质量浓度/ng·m⁻³

Table 4 Mass concentration of PM _{2.5} -bound heavy metals in different seasons/ng·m ⁻³								
元素	春 (n = 73)		夏 (n = 76)		秋 (n = 54)		冬 (n = 62)	
	中位值	四分位距	中位值	四分位距	中位值	四分位距	中位值	四分位距
V	6.84	7.51	7.25	5.65	4.21	4.36	3.87	6.04
Cr	5.10	2.82	4.29	4.67	4.78	3.10	8.18	6.22
Mn	22.33	15.63	18.34	12.50	20.66	12.18	35.33	26.81
Ni	5.10	3.17	4.87	4.28	3.56	3.34	5.64	4.24
As	2.31	4.99	1.19	3.92	3.95	5.19	6.55	6.52
Pb	35.30	31.16	15.84	23.41	20.91	25.10	55.67	25.31

2.2 PM_{2.5} 中重金属组分呼吸暴露健康风险

PM_{2.5} 中重金属呼吸暴露的非致癌和致癌风险计算结果如图 2 所示。从中可知,Cr(VI) 和 As 的 ILCR 值均超出了可接受水平 10⁻⁶,Ni 的风险值接

近 10⁻⁶,并且 As 的 ILCR 最高。V、Cr(VI)、Mn、Ni 和 As 这 5 种重金属元素的 HQ 值均小于 1,并呈现 HQ_{Ni} > HQ_{Mn} > HQ_{As} > HQ_V > HQ_{Cr(VI)},然而,5 种重金属元素的 HQ 加和即 HI 值为 1.55,超出了 1,提示它们联合呼吸暴露所引起的非致癌风险超过了安全水平。根据上述 PM_{2.5} 中重金属健康风险评价结果,空气 PM_{2.5} 重金属组分的呼吸暴露可能会对家庭主妇群体造成一定程度的潜在健康风险。

Cao 等^[42]对南京市室内外 PM_{2.5} 中重金属的健康风险进行了评估,结果表明 Mn 具有潜在非致癌风险,Cr、As、Cd 和 Pb 这 4 种重金属的致癌风险均超出了可接受水平 10⁻⁶,且致癌风险呈现 Cr > As > Cd > Pb。Liu 等^[27]评估了北京市大气 PM_{2.5} 中重金属的健康风险,发现 Co、Cr(VI)、As 和 Cd 这 4 种重金属的致癌风险均超出了可接受水平 10⁻⁶,且致癌风险呈现 As > Co > Cr(VI) > Cd。结合本研究结果,As 和 Cr 等重金属元素是城市大气 PM_{2.5} 污染致癌风险较高的组分,需要优先关注并制定相应的污染控制对策。

2.3 PM_{2.5} 中重金属组分的来源解析

使用 PMF 法对 PM_{2.5} 中重金属开展源解析的分析结果如图 3 所示。从中可知,在因子 1 中,Pb (74.5%) 的贡献率较高,且 Zn 和 As 也有一定的贡献率,分别为 22.8% 和 18.8%。Pb 和 As 都是燃煤的重要标识元素^[43]。Zn 也可来源于燃煤^[44]。此外,Pb 的质量浓度呈现出春冬高、秋夏低季节规律,与燃煤活动的季节规律基本一致。因此认为因子 1 是燃煤源。因子 2 中 Al(93.0%)、Ti(58.2%)

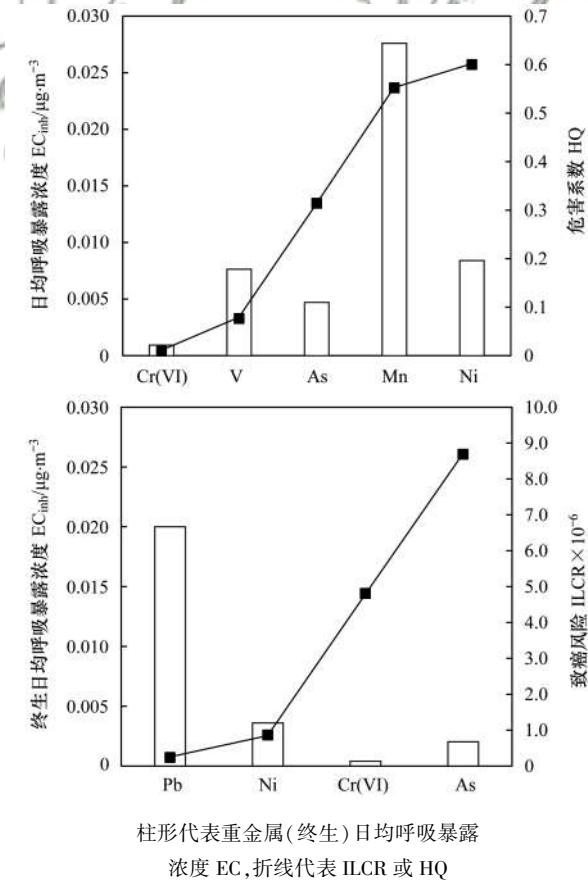
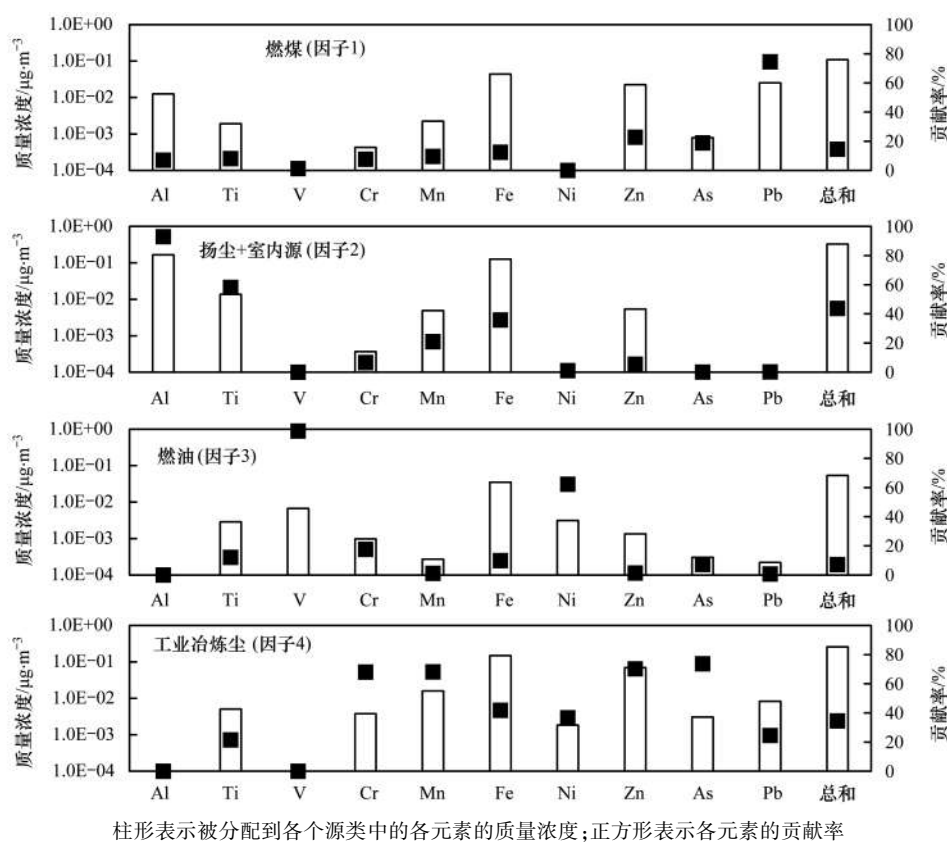


图 2 6 种重金属的非致癌与致癌健康风险

Fig. 2 Non-carcinogenic and carcinogenic health risk of six heavy metals

和 Fe (35.8%) 贡献率较高. Mn 也有一定的贡献, 为 20.9%. Al、Ti、Fe 和 Mn 都是常见的地壳元素, 也是扬尘的标识元素^[45, 46]. 倪天茹等^[47]在对天津市老年人个体 PM_{2.5} 进行来源分析时提出室内个体活动(如打扫、走动等)可导致室内的尘土再悬浮, 使室内地壳元素的浓度升高. 有研究表明烹饪活动会使室内的 PM_{2.5} 浓度显著升高, 同时也会使 PM_{2.5} 中一些金属元素的浓度增加^[20, 48, 49]. 燃料、食物原料、炊具等会在烹饪过程中释放出金属元素, 如 Fe

可以从烹饪原料和炊具中释放出来^[50], Mn 可以从食用油中释放出来^[51]. 因此将因子 2 定义为扬尘与室内源的混合源. 因子 3 中 V 和 Ni 的贡献率较高, 分别为 98.8% 和 62.2%. Ni 和 V 是燃油典型的示踪元素^[45], 因此将因子 3 定义为燃油. 因子 4 中 Cr、Mn、Zn 和 As 贡献率较高, 均大于 50%. 此外, Fe 和 Ni 也对该因子有一定的贡献. 这 6 种元素均可来源于冶炼、镀金、钢铁等工业的排放^[44, 47, 52, 53], 因此将因子 4 定义为工业冶炼尘.



柱形表示被分配到各个源类中的各元素的质量浓度; 正方形表示各元素的贡献率

图 3 10 种元素的源成分谱

Fig. 3 Source profiles of ten elements

根据 PMF 计算出的松江区家庭妇女 PM_{2.5} 中重金属的 4 种源类的分担率如图 4 所示. 从中可知, 扬尘与室内源的混合源和工业冶炼尘对家庭主妇 PM_{2.5} 中重金属元素的暴露分担率最大, 分别为 43.8% 和 34.6%, 其次为燃煤 (14.5%) 和燃油 (7.2%). 本文得到的研究结果的总体判断与 Chen 等^[54] 和马瑾^[55] 使用富集因子和主成分分析法对上海市大气 PM_{2.5} 中的无机元素进行定性来源识别的研究结果类似.

近年来, 不少城市开展了对大气 PM_{2.5} 中金属组分的来源研究, 发现燃煤、工业尘、扬尘和交通排放源等是我国城市大气 PM_{2.5} 中金属元素的主要来源^[56]. 然而, 不同采样地区和采样时间得到的解析结果可能存在差别. 闫广轩等^[57] 对新乡市冬季

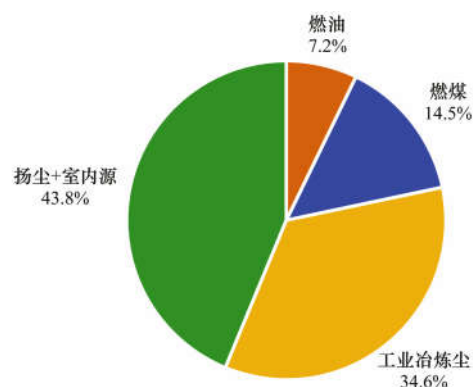


图 4 4 种来源对 PM_{2.5} 中 10 种元素的分担率

Fig. 4 Source contributions to ten elements in PM_{2.5}

PM_{2.5} 中金属元素与水溶性离子的来源进行解析, 认为二次源 (2015 年: 70.0%, 2016 年: 74.4%)、化石

燃料燃烧(2015年:13.5%,2016年:11.3%)、土壤尘与建筑尘(2015年:6.7%,2016年:13.7%)、工业源(2015年:9.8%,2016年:0.6%)是当地PM_{2.5}金属元素的主要来源。Liu等^[27]对北京市2016年大气PM_{2.5}中13种金属元素进行了来源解析,得到扬尘(61.0%),交通源(16.3%),铜相关工业源(14.1%),燃煤(3.7%),铬相关工业源(3.4%)和燃油(1.6%)为主要来源。杨毅红等^[40]使用主成分分析法解析了珠海市郊区PM_{2.5}中13种重金属元素的来源,结果表明区域输送污染源(包括交通排放、金属冶炼、自然矿尘等)、船舶源、燃煤和电子工业是重金属的主要来源,其贡献率分别为53.4%、13.0%、7.6%和6.8%。

2.4 PM_{2.5}中重金属组分特定来源的健康风险

为了解特定污染源潜在的人群健康风险,进一步根据PMF解析的四类因子(源)的浓度值(如图3)计算相应源的非致癌与致癌健康风险^[27]如图5所示。从中可知,从致癌风险看,除扬尘与室内尘的混合源外,其余3种源类的ILCR值均超过可接受水平,并且ILCR_{工业冶炼尘}(8.70×10^{-6}) > ILCR_{燃煤}

(1.89×10^{-6}) > ILCR_{燃油}(1.60×10^{-6})。提示工业冶炼、燃油、燃煤等大气污染源对人群的长期暴露仍然存在潜在致癌风险。从非致癌风险看,4种源类的HQ值均小于1,并且HQ_{工业冶炼尘}(0.662) > HQ_{燃油}(0.318) > HQ_{扬尘+室内源}(0.102) > HQ_{燃煤}(0.099)。然而4种因子(源)HQ值的加和大于1,说明污染源类的联合暴露仍然具有一定的不良影响。

综合重金属和源类的健康风险评估结果,致癌和非致癌风险较高的重金属元素为Cr、Mn、Ni和As,这些元素大多来自工业冶炼、燃油和燃煤,尽管PMF源解析结果显示扬尘与室内源的混合源对PM_{2.5}重金属元素的贡献分担率最高,但是源类的健康风险计算结果显示,工业冶炼和燃油来源的重金属健康风险高于扬尘与室内源的混合源。与本研究相比较,北京^[27]、扬州^[39]和济南^[58]等地区则报道燃煤源具有较高的呼吸暴露健康风险,这与不同城市PM_{2.5}污染特征及源贡献差异有关。综合上述研究,户外大气污染对家庭主妇长期慢性暴露于PM_{2.5}重金属组分所产生的潜在健康风险具有一定的贡献,做好大气污染综合防控,对于降低人群重金属暴露水平具有重要意义。

本研究的源解析模型计算结果也存在一定的局限性。首先,由于研究仅对有限种类的无机元素进行分析,可能导致某些源类(例如交通源)无法被识别或难以区分某些混合源(室内烹饪油烟、吸烟等)。其次,本研究未能分割室内和室外采样数据,无法比较室内外PM_{2.5}中重金属组分的浓度差异,难以鉴别家庭主妇重金属的暴露主要来源于室内或是室外。将在未来的研究中予以改进,从而为健康风险防控提供具体细分方向。

3 结论

(1)研究期间,上海市松江区家庭主妇PM_{2.5}的日均暴露浓度为 $40.6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,总体高于周边环境监测站点PM_{2.5}浓度水平。除V元素外,As、Cr、Mn、Ni和Pb这5种重金属元素浓度的季节变化规律与PM_{2.5}质量浓度变化趋势类似,呈现冬季高,夏季低的特征。

(2)Cr(VI)和As的呼吸暴露致癌健康风险超过了可接受水平,且As的ILCR值大于Cr(VI)。V、Cr(VI)、Mn、Ni和As的呼吸暴露非致癌健康风险低于安全阈值,但5种重金属非致癌风险总和超过了安全阈值。

(3)PMF的解析结果表明,家庭主妇PM_{2.5}中重金属组分个体暴露的主要来源为扬尘与室内源混合源(43.8%)、工业冶炼尘(34.6%)、燃煤(14.5%)

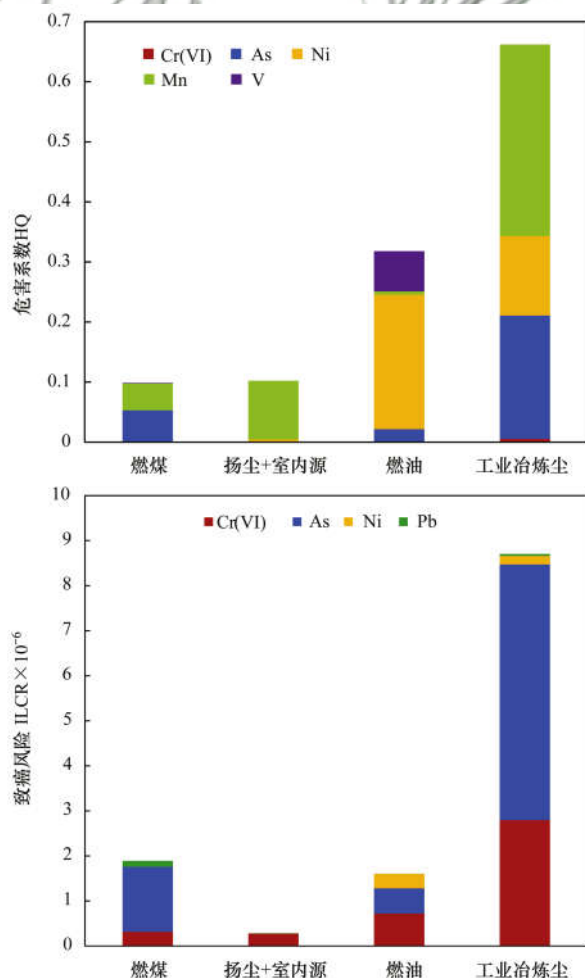


图5 4种来源的非致癌与致癌健康风险

Fig. 5 Non-carcinogenic and carcinogenic health risk of four sources

和燃油(7.2%)。

(4) 工业冶炼尘、燃煤、重油燃烧呼吸暴露的致癌风险超出了可接受水平;4 种源类呼吸暴露的非致癌风险均低于安全阈值,但是其加和超过了安全阈值。基于污染源的风险评估结果,应进一步加强工业冶炼和化石燃料燃烧综合防控。

参考文献:

- [1] Mukherjee A, Agrawal M. A global perspective of fine particulate matter pollution and its health effects[A]. In: Gunther F A, de Voogt P (Eds.). Reviews of Environmental Contamination and Toxicology[M]. Cham: Springer, 2017. 5-51.
- [2] Mazzoli-Rocha F, Fernandes S, Einicker-Lamas M, et al. Roles of oxidative stress in signaling and inflammation induced by particulate matter[J]. Cell Biology and Toxicology, 2010, **26**(5): 481-498.
- [3] Liu P P, Ren H R, Xu H M, et al. Assessment of heavy metal characteristics and health risks associated with PM_{2.5} in Xi'an, the largest city in Northwestern China [J]. Air Quality, Atmosphere & Health, 2018, **11**(9): 1037-1047.
- [4] Cakmak S, Dales R, Kauri L M, et al. Metal composition of fine particulate air pollution and acute changes in cardiorespiratory physiology[J]. Environmental Pollution, 2014, **189**: 208-214.
- [5] Rohr A C, Wyzga R E. Attributing health effects to individual particulate matter constituents [J]. Atmospheric Environment, 2012, **62**: 130-152.
- [6] Hsu S O L, Ito K, Lippmann M. Effects of thoracic and fine PM and their components on heart rate and pulmonary function in COPD patients [J]. Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology, 2011, **21**(5): 464-472.
- [7] Kamal A S, Rohr A C, Mukherjee B, et al. PM_{2.5}-induced changes in cardiac function of hypertensive rats depend on wind direction and specific sources in Steubenville, Ohio [J]. Inhalation Toxicology, 2011, **23**(7): 417-430.
- [8] Zahra N, Kalim I. Perilous effects of heavy metals contamination on human health [J]. Pakistan Journal of Analytical & Environmental Chemistry, 2017, **18**(1): 1-17.
- [9] Anyanwu B O, Ezejirofor A N, Igweze Z N, et al. Heavy metal mixture exposure and effects in developing nations: an update [J]. Toxics, 2018, **6**(4): 65.
- [10] Koedrit P, Kim H, Weon J I, et al. Toxicogenomic approaches for understanding molecular mechanisms of heavy metal mutagenicity and carcinogenicity [J]. International Journal of Hygiene and Environmental Health, 2013, **216**(5): 587-598.
- [11] Amin S N S M, Azid A, Sani M S A, et al. Heavy metals in air: analysis using instrument, air pollution and human health-a review [J]. Malaysian Journal of Fundamental and Applied Sciences, 2018, **14**(4): 490-494.
- [12] 张鑫, 赵小曼, 孟雪洁, 等. 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[J]. 环境科学, 2018, **39**(3): 997-1003.
- Zhang X, Zhao X M, Meng X J, et al. Particle size distribution and human health risk assessment of heavy metals in atmospheric particles from Beijing and Xinxiang during summer [J]. Environmental Science, 2018, **39**(3): 997-1003.
- [13] Gao Y, Ji H B. Microscopic morphology and seasonal variation of health effect arising from heavy metals in PM_{2.5} and PM₁₀: one-year measurement in a densely populated area of urban Beijing [J]. Atmospheric Research, 2018, **212**: 213-226.
- [14] Huang H, Jiang Y, Xu X Y, et al. In vitro bioaccessibility and health risk assessment of heavy metals in atmospheric particulate matters from three different functional areas of Shanghai, China [J]. Science of the Total Environment, 2018, **610-611**: 546-554.
- [15] Wang F, Zhou Y Y, Meng D, et al. Heavy metal characteristics and health risk assessment of PM_{2.5} in three residential homes during winter in Nanjing, China [J]. Building and Environment, 2018, **143**: 339-348.
- [16] Cheng Z, Chen L J, Li H H, et al. Characteristics and health risk assessment of heavy metals exposure via household dust from urban area in Chengdu, China [J]. Science of the Total Environment, 2018, **619-620**: 621-629.
- [17] Oglesby L, Künzli N, Rössli M, et al. Validity of ambient levels of fine particles as surrogate for personal exposure to outdoor air pollution—results of the European EXPOLIS-EAS Study (Swiss Center Basel) [J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2000, **50**(7): 1251-1261.
- [18] Ryan P H, Brokamp C, Fan Z H, et al. Analysis of personal and home characteristics associated with the elemental composition of PM_{2.5} in indoor, outdoor, and personal air in the RIOPA study [J]. Research Report (Health Effects Institute), 2015, (185): 3-40.
- [19] Lim S S, Vos T, Flaxman A D, et al. A comparative risk assessment of burden of disease and injury attributable to 67 risk factors and risk factor clusters in 21 regions, 1990-2010: a systematic analysis for the global burden of disease study 2010 [J]. The Lancet, 2013, **380**(9859): 2224-2260.
- [20] Lu F J, Shen B X, Yuan P, et al. The emission of PM_{2.5} in respiratory zone from Chinese family cooking and its health effect [J]. Science of the Total Environment, 2019, **654**: 671-677.
- [21] Li T X, Cao S Z, Fan D L, et al. Household concentrations and personal exposure of PM_{2.5} among urban residents using different cooking fuels [J]. Science of the Total Environment, 2016, **548-549**: 6-12.
- [22] 严世超. 现代都市家庭主妇家庭地位研究[D]. 北京: 中国青年政治学院, 2012.
- [23] Huang Y L, Chen H W, Han B C, et al. Personal exposure to household particulate matter, household activities and heart rate variability among housewives [J]. PLoS One, 2014, **9**(3), doi: 10.1371/journal.pone.0089969.
- [24] Mu L N, Liu L, Niu R G, et al. Indoor air pollution and risk of lung cancer among Chinese female non-smokers [J]. Cancer Causes & Control, 2013, **24**(3): 439-450.
- [25] Khan M F, Latif M T, Saw W H, et al. Fine particulate matter in the tropical environment: monsoonal effects, source apportionment, and health risk assessment [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, **16**(2): 597-617.
- [26] Peng X, Shi G L, Liu G R, et al. Source apportionment and heavy metal health risk (HMHR) quantification from sources in a southern city in China, using an ME2-HMHR model [J]. Environmental Pollution, 2017, **221**: 335-342.
- [27] Liu J W, Chen Y J, Chao S H, et al. Emission control priority of PM_{2.5}-bound heavy metals in different seasons: a comprehensive analysis from health risk perspective [J]. Science of the Total Environment, 2018, **644**: 20-30.
- [28] Zhu Q Y, Xia B, Zhao Y Y, et al. Predicting gestational personal exposure to PM_{2.5} from satellite-driven ambient concentrations in Shanghai [J]. Chemosphere, 2019, **233**: 452-461.
- [29] 上海市环境保护局. 2017 上海市环境状况公报[R]. 上海: 上海市环境保护局, 2017.

- [30] 胡子梅, 王军, 陶征楷, 等. 上海市 $PM_{2.5}$ 重金属污染水平与健康风险评价[J]. 环境科学学报, 2013, **33**(12): 3399-3406.
- Hu Z M, Wang J, Tao Z K, *et al.* Pollution level and health risk assessment of heavy metals in $PM_{2.5}$, Shanghai [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, **33**(12): 3399-3406.
- [31] US EPA. Integrated risk information system[EB/OL]. <https://www.epa.gov/iris>, 2019-01-16.
- [32] Molnár P, Johannesson S, Quass U. Source apportionment of $PM_{2.5}$ using positive matrix factorization (PMF) and PMF with factor selection[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2014, **14**(3): 725-733.
- [33] US EPA. EPA-540-R-070-002. Risk assessment guidance for superfund, volume I: human health evaluation manual (Part F, supplemental guidance for inhalation risk assessment) [S]. Washington, D. C.: U. S. Environmental Protection Agency, 2009.
- [34] US EPA. Regional screening level (RSL) summary table (TR = $1E-06$, HQ = 0.1) [S]. Washington, D. C.: U. S. Environmental Protection Agency, 2018.
- [35] Jiang N, Duan S G, Yu X, *et al.* Comparative major components and health risks of toxic elements and polycyclic aromatic hydrocarbons of $PM_{2.5}$ in winter and summer in Zhengzhou: based on three-year data [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **213**: 173-184.
- [36] 张洛红, 范芳, 蒋炜炜, 等. 珠三角地区大气 $PM_{2.5}$ 中重金属污染水平及健康风险评价[J]. 环境科学学报, 2017, **37**(1): 370-380.
- Zhang L H, Fan F, Jiang W W, *et al.* Concentrations and health risk assessment of heavy metals in atmospheric $PM_{2.5}$ in the Pearl River Delta Region [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2017, **37**(1): 370-380.
- [37] Sówka I, Chlebowska-Styś A, Pachurka Ł, *et al.* Seasonal variations of $PM_{2.5}$ and PM_{10} concentrations and inhalation exposure from PM-bound metals (As, Cd, Ni): first studies in Poznań (Poland) [J]. *Archives of Environmental Protection*, 2018, **4**(44): 86-95.
- [38] 吴云, 叶玉龙, 张亚宁, 等. 上海金山化学工业区周边 $PM_{2.5}$ 金属元素特征分析[J]. 中国卫生检验杂志, 2017, **27**(5): 698-701.
- Wu Y, Ye Y L, Zhang Y N, *et al.* Characteristic analysis of metallic elements in $PM_{2.5}$ around Jinshan Chemical Industry Zone of Shanghai [J]. *Chinese Journal of Health Laboratory Technology*, 2017, **27**(5): 698-701.
- [39] 董世豪, 谢扬, 皇甫延琦, 等. 扬州市 $PM_{2.5}$ 中重金属来源及潜在健康风险评估[J]. 环境科学, 2019, **40**(2): 540-547.
- Dong S H, Xie Y, Huangfu Y Q, *et al.* Source apportionment and health risk quantification of heavy metals in $PM_{2.5}$ in Yangzhou, China [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(2): 540-547.
- [40] 杨毅红, 贾燕, 卞国建, 等. 珠海市郊区大气 $PM_{2.5}$ 中元素特征及重金属健康风险评价[J]. 环境科学, 2019, **40**(4): 1553-1561.
- Yang Y H, Jia Y, Bian G J, *et al.* Elemental characteristics and health risk assessment of heavy metals in atmospheric $PM_{2.5}$ in a suburb of Zhuhai city [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(4): 1553-1561.
- [41] 徐静, 李杏茹, 张兰, 等. 北京城郊 $PM_{2.5}$ 中金属元素的污染特征及潜在生态风险评价[J]. 环境科学, 2019, **40**(6): 2501-2509.
- Xu J, Li X R, Zhang L, *et al.* Concentration and ecological risk assessment of heavy metals in $PM_{2.5}$ collected in urban and suburban areas of Beijing [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(6): 2501-2509.
- [42] Cao G Z, Bi J, Ma Z W, *et al.* Seasonal characteristics of the chemical composition of fine particles in residences of Nanjing, China [J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2019, **16**(6): 1066, doi: 10.3390/ijerph16061066.
- [43] Duan J C, Tan J H. Atmospheric heavy metals and arsenic in China: situation, sources and control policies [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **74**: 93-101.
- [44] 董婷, 李天听, 赵秀阁, 等. 某焦化厂周边大气 PM_{10} 重金属来源及健康风险评价[J]. 环境科学, 2014, **35**(4): 1238-1244.
- Dong T, Li T X, Zhao X G, *et al.* Source and health risk assessment of heavy metals in ambient air PM_{10} from one coking plant [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(4): 1238-1244.
- [45] 郑玫, 张延君, 闫才青, 等. 中国 $PM_{2.5}$ 来源解析方法综述 [J]. 北京大学学报(自然科学版), 2014, **50**(6): 1141-1154.
- Zheng M, Zhang Y J, Yan C Q, *et al.* Review of $PM_{2.5}$ source apportionment methods in China [J]. *Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Pekinensis*, 2014, **50**(6): 1141-1154.
- [46] Zhang J Z, Zhou X H, Wang Z, *et al.* Trace elements in $PM_{2.5}$ in Shandong province: source identification and health risk assessment [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **621**: 558-577.
- [47] 倪天茹, 韩斌, 李彭辉, 等. 天津市某社区老年人 $PM_{2.5}$ 个体暴露来源解析研究[J]. 中华预防医学杂志, 2016, **50**(8): 698-704.
- Ni T R, Han B, Li P H, *et al.* Contribution of different sources of exposure to particulate matter in an elderly community in Tianjin [J]. *Chinese Journal of Preventive Medicine*, 2016, **50**(8): 698-704.
- [48] See S W, Balasubramanian R. Chemical characteristics of fine particles emitted from different gas cooking methods [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(39): 8852-8862.
- [49] Li Y C, Shu M, Ho S S H, *et al.* Characteristics of $PM_{2.5}$ emitted from different cooking activities in China [J]. *Atmospheric Research*, 2015, **166**: 83-91.
- [50] Zhang N, Han B, He F, *et al.* Chemical characteristic of $PM_{2.5}$ emission and inhalational carcinogenic risk of domestic Chinese cooking [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **227**: 24-30.
- [51] Zhao Y J, Chen C, Zhao B. Emission characteristics of $PM_{2.5}$ -bound chemicals from residential Chinese cooking [J]. *Building and Environment*, 2019, **149**: 623-629.
- [52] Minguillón M C, Schembari A, Triguero-Mas M, *et al.* Source apportionment of indoor, outdoor and personal $PM_{2.5}$ exposure of pregnant women in Barcelona, Spain [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **59**: 426-436.
- [53] Pekey H, Pekey B, Arslanbas D, *et al.* Source apportionment of personal exposure to fine particulate matter and volatile organic compounds using positive matrix factorization [J]. *Water, Air, & Soil Pollution*, 2013, **224**(1): 1403, doi: 10.1007/s11270-012-1403-2.
- [54] Chen J M, Tan M G, Li Y L, *et al.* Characteristics of trace elements and lead isotope ratios in $PM_{2.5}$ from four sites in Shanghai [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2008, **156**(1-3): 36-43.
- [55] 马瑾. 上海市大气细颗粒物中元素分析及来源解析[D]. 上

- 海: 上海师范大学, 2018.
- [56] 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.
- [57] 闫广轩, 雷豪杰, 张靖雯, 等. 新乡冬季 $PM_{2.5}$ 中金属元素与水溶性离子年际变化及其来源解析[J]. 环境科学, 2019, **40**(3): 1071-1081.
- Yan G X, Lei H J, Zhang J W, *et al.* Interannual variation of metal elements and water-soluble ions in $PM_{2.5}$ during wintertime in Xinxiang and their source apportionment[J]. Environmental Science, 2019, **40**(3): 1071-1081.
- [58] Du L L, Wang Y, Wu Z C, *et al.* $PM_{2.5}$ -bound toxic elements in an urban city in east China: concentrations, sources, and health risks[J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2019, **16**(1), doi: 10.3390/ijerph16010164.

欢迎订阅 2020 年《环境科学》

《环境科学》创刊于 1976 年,由中国科学院主管,中国科学院生态环境研究中心主办,是我国环境科学学科中最早创刊的学术性期刊。

《环境科学》自创刊以来,始终坚持“防治污染,改善生态,促进发展,造福人民”的宗旨,报道我国环境科学领域内具有创新性高水平,有重要意义的基础研究和应用研究成果,以及反映控制污染,清洁生产和生态环境建设等可持续发展的战略思想、理论和实用技术等。

《环境科学》在国内外公开发行,并在国内外科技界有较大影响,被国内外一些重要检索系统收录,如工程索引 Ei Compendex;医学索引 MEDLINE;Scopus;化学文摘 CA;俄罗斯文摘杂志 AJ;美国生物学文摘预评 BP;美国医学索引 IM;日本科学技术情报中心数据库 JICST;英国动物学记录 ZR;剑桥科学文摘(CSA):Environmental Sciences;剑桥科学文摘(CSA):Pollution Abstracts;剑桥科学文摘(CAS):Life Sciences Abstracts等;国内的检索系统有中国科技论文统计与引文数据库(CSTPCD);中文科技期刊数据库(维普);中国期刊全文数据库(CNKI);数字化期刊全文数据库(万方);中国科学引文数据库(CSCD);中国生物学文摘等。

全国各地邮局均可订阅,如有漏订的读者可直接与编辑部联系,办理补订手续。

国内统一连续出版物号:CN 11-1895/X

国际标准连续出版物号:ISSN 0250-3301

国外发行代号:M 205

国内邮发代号:2-821

编辑部地址:北京市海淀区双清路 18 号(2871 信箱) 邮编:100085

电话:010-62941102;传真:010-62849343;E-mail:hjcx@rcees.ac.cn;网址:www.hjcx.ac.cn

CONTENTS

Concentration Characteristics and Assessment of Model-Predicted Results of PM _{2.5} in the Beijing-Tianjin-Hebei Region in Autumn and Winter	ZHU Yuan-yuan, GAO Yu-xiao, LIU Bing, <i>et al.</i> (5191)
Chemical Composition Characteristics and Source Apportionment of PM _{2.5} During the Heating Period of 2016-2017 in the Eastern Part of the North China Plain	ZHANG Yi-qin, WANG Jie, GAO Jian, <i>et al.</i> (5202)
Change in Characteristics of Pollution Gas and Water-soluble Ions at Different Development Stages of Haze	WANG Zhen-bin, LIU An-kang, LU Wen, <i>et al.</i> (5213)
Exposure Levels, Sources, and Health Risks of Heavy Metal Components of PM _{2.5} in Housewives in Rural Shanghai	LUO Ran-ran, DAI Hai-xia, ZHANG Yun-hui, <i>et al.</i> (5224)
Measuring the Condensable Particle Matter from a Stationary Source	JIANG Jing-kun, DENG Jian-guo, WANG Gang, <i>et al.</i> (5234)
Volatile Organic Compound Emission Characteristics of Furniture Manufacturing Enterprises and the Influence on the Atmospheric Environment	ZHANG Jia-mi, ZENG Chun-ling, LIU Rui-yuan, <i>et al.</i> (5240)
VOCs Emission Inventory and Impact Range Simulation of Antibiotic Enterprises	ZHU Tao, LÜ Yi-rong, BIAN Wen-jing, <i>et al.</i> (5250)
Effects of Vehicle Emissions on Heavy Metals and Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Pollution in Road Dust in Xinxiang	LI Qi-lu, WU Jin-tao, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (5258)
Pollution Characteristics and Exposure Risk Assessment of Perfluoroalkyl Substances in Road Dust, Chengdu	FANG Shu-hong, ZHU He-xiang, YE Zhi-xiang, <i>et al.</i> (5265)
Characteristics of Stable Isotopes and Analysis of Water Vapor Sources of Precipitation at the Northern Slope of the Qilian Mountains	ZHANG Bai-juan, LI Zong-xing, WANG Yu, <i>et al.</i> (5272)
Occurrence Characteristics and Risk Assessment of Antibiotics in Source Water of the Nanjing Reach of the Yangtze River	FENG Meng-juan, ZHANG Qin, SONG Ning-hui, <i>et al.</i> (5286)
Effects of Different Coagulants on Co-manganese Oxides Filter Media for Removing Ammonium and Manganese from Surface Water in Summer and Autumn	CHENG Li-jie, HUNAG Ting-lin, CHENG Ya, <i>et al.</i> (5294)
Disinfection By-products and the Relevant Health Risk in the Water Supply System in H City of Zhejiang Province	LIU Jun-ping, YU Jian-quan, LI Qing-song, <i>et al.</i> (5302)
Absorption and Fluorescence Spectra of Dissolved Organic Matter in Rivers of the Three Gorges Reservoir Area Under the Background of Urbanization	CHEN Zhao-yu, LI Si-yue (5309)
Characteristics of Chromophoric Dissolved Organic Matter (CDOM) in Natural Rivers of Western Sichuan Plateau	LIU Yan-yang, SUN Hui, LIU Chen, <i>et al.</i> (5318)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Losses and Runoff in a Typical Purple Soil Watershed in the Three Gorges Reservoir Area	CAO Rui-xia, LIU Jing, DENG Kai-kai, <i>et al.</i> (5330)
Responses of Riverine Phosphorus Exports to Land Use and Hydrological Regime in the Jiulong River Watershed	HUANG Ya-ling, TANG Li, HUANG Jin-liang, <i>et al.</i> (5340)
Effects of Land Use Types at Different Spatial Scales on Water Quality in Poyang Lake Wetland	FANG Na, LIU Ling-ling, YOU Qing-hui, <i>et al.</i> (5348)
Environmental Significance of Phosphorus Fractions of Phytoplankton-and Macrophyte-Dominated Zones in Taihu Lake	GENG Xue, WEN Shuai-long, SUN Pei-rong, <i>et al.</i> (5358)
Spatial Distribution and Pollution Evaluation of Carbon, Nitrogen, and Phosphorus in Sediments of Zhushan Bay at Taihu Lake	FANG Jia-qi, QI Chuang, ZHANG Xin-hou, <i>et al.</i> (5367)
Effect of Rainfall Intensity on the Content of Nitrogen and Phosphorus Components in Plateau Areas: A Case Study of the Fengyu River Watershed	LI Xiao-hong, LEI Qiu-liang, ZHOU Jiao-gen, <i>et al.</i> (5375)
Water Purification Effect and Saline-alkali Tolerance Improvement Mechanism of <i>Suaeda salsa</i> in the Estuary Area	WU Dan, SUN Ping, CHEN Guang-lin, <i>et al.</i> (5384)
Concentration-dependent Accumulation and Translocation of PFASs by Wetland Plant <i>Alisma orientale</i>	WANG Tuan-tuan, LI Bei-bei, WANG Sai, <i>et al.</i> (5394)
Occurrence of Denitrifying Dephosphatation in a Hybrid Constructed Wetland System and Its Stability	LIU Bing, ZHENG Yu-ming, LI Qing-fei, <i>et al.</i> (5401)
Comparison of the Control of Sedimentary Phosphorus Release Using Zirconium-, Lanthanum-, and Lanthanum/Zirconium-Modified Zeolites as Sediment Amendments	LIU Ting, ZHAO Yu-ying, LIN Jian-wei, <i>et al.</i> (5411)
Effect of Biochar Structure on Adsorption Characteristics of Ammonia Nitrogen	CHEN Mei, WANG Fang, ZHANG De-li, <i>et al.</i> (5421)
Effect of Dissolved Oxygen on Partial Nitrification of Suspended and Attached Growth Systems	WANG Si-yu, LIU Ling-jie, WANG Fen, <i>et al.</i> (5430)
Effects of Different Intermittent Aeration Strategies on the Start-up of SNAD Process	LI Dong, LIU Zhi-cheng, XU Gui-da, <i>et al.</i> (5438)
Operational Performance and Microbiological Characteristics of an Iron-Salt Denitrification Reactor in Co-substrate Mode	WANG Ru, LIU Meng-yu, LIU Bing-yin, <i>et al.</i> (5446)
Effect of Step Aeration on a Municipal Sewage Aerobic Granular Sludge System	LI Dong, WEI Zi-qing, LAO Hui-mei, <i>et al.</i> (5456)
Improvement of the Dewaterability of Excess Activated Sludge with Mixed Yeasts by Degrading Extracellular Polymeric Substances	YU Xin-yi, XIANG Jin-hao, LIU Ying, <i>et al.</i> (5465)
Influence of Land Use Change on Ecosystem Service Value Based on GEE in the Beijing-Tianjin-Hebei Region from 1998 to 2018	LOU Pei-qing, FU Bo-lin, LIN Xing-chen, <i>et al.</i> (5473)
Assessment of Soil Quality in Coastal Tidal Flat Reclamation Areas Based on MDS-TOPSIS Model	XIE Xue-feng, PU Li-jie, ZHU Ming, <i>et al.</i> (5484)
Effect of Increasing Tidewater Inundation on Porewater Geochemistries and CO ₂ and CH ₄ Effluxes in the Tidal Freshwater Marshes of the Minjiang River Estuary, Southeast China	LI Jing, HUANG Jia-fang, LUO Min, <i>et al.</i> (5493)
Methane Emission Characteristics and Its Influencing Factors over Aquaculture Ponds	WANG Jiao, XIAO Wei, ZHANG Xiu-fang, <i>et al.</i> (5503)
Effect of Fertilization on Soil Respiration and Its Temperature Sensitivity in a Sorghum Field	YAN Jun-xia, ZHANG Yuan, JIAO Xiao-yan (5515)
Land Safety Zoning Method in High-Selenium and High-Cadmium Areas	WANG Rui, HOU Wan-ling, LI Yu-tong, <i>et al.</i> (5524)
Remediation Effects of Different Composite Materials on Cadmium-Contaminated Farmland Soil	CHEN Shu-lan, XU Chen-yang, GENG Zeng-chao, <i>et al.</i> (5531)
Hydrocalumite Passivation Effect and Mechanism on Heavy Metals in Different Cd-Contaminated Farmland Soils	WU Qiu-mei, LIU Gang, WANG Hui-feng, <i>et al.</i> (5540)
Effects of Different Land Use Types on Microbial Community Diversity in the Shizishan Mining Area	HUANG Jian, ZHU Xu-yan, LU Jin, <i>et al.</i> (5550)
Effects of Conversion of Forest to Arable Land on the Abundance and Structure of the <i>cbbL</i> -Harboring Bacterial Community in Albic Soil of the Hilly Region of Northeast China	WANG Rui, WU Xian, LI Gang, <i>et al.</i> (5561)
Thoughts on and Construction of a Risk Management and Control System for Contaminated Sites in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area	CHANG Chun-ying, DONG Min-gang, DENG Yi-rong, <i>et al.</i> (5570)
Visualized Quantitative Research of Soil Pollution in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area	ZHANG Ning, ZHANG Sheng, YANG Hai-chao, <i>et al.</i> (5581)
Characteristics and Environmental Impacts of Materials Stored in Municipal Solid Waste Landfills: A Case Study of the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area	MA Shi-jun, ZHOU Chuan-bin, YANG Guang, <i>et al.</i> (5593)
Heavy Metal Contamination and Migration in Correspondence of an Electroplating Site on the Hilly Lands of the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area, China	HOU Wen-juan, GONG Xing, ZHAN Ze-bo, <i>et al.</i> (5604)
Pollution Characteristics and Migration of BTEX at a Chemical Contaminated Site in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area	DENG Yi-rong, LU Hai-jian, DONG Min-gang, <i>et al.</i> (5615)
Immobilization Impact of Goethite-Fulvic Acid Composites on Pb-Cd Contaminated Soil	LIU Qian-jun, LI Xiang, ZHOU Yang-mei, <i>et al.</i> (5623)
Mobilization of Heavy Metals in a Soil-Plant System and Risk Assessment in the Dabaoshan Mine Area, Guangdong Province, China	CHEN Jie-yi, LIU Guang-bo, CUI Jin-li, <i>et al.</i> (5629)
Calculation of the Soil Risk Control Value through a Hydrus-1D Model for Groundwater Protection	LIN Ting, LUO Fei, ZHU Yan, <i>et al.</i> (5640)
INDEX HUANJING KEXUE CONTENTS 2019, Vol. 40	(5659)