

目次

中国城市碳排放强度的时空演变、动态跃迁及收敛趋势 杨清可, 王磊, 朱高立, 李颖, 范业婷, 王雅竹 (1869)

交通运输业碳排放效率时空演变及趋势预测 郑琰, 蒋雪梅, 肖玉杰 (1879)

基于扩展STIRPAT模型LMDI分解的碳排放脱钩因素 张江艳 (1888)

基于LEAP模型的工业园区碳达峰路径:以南京某国家级开发区为例 李慧鹏, 李荔, 殷茵, 何文大, 宿杰, 赵秋月 (1898)

高校碳排放核算与分析:以北京A高校为例 曹睿, 封莉, 张立秋 (1907)

北京市制造业减排降碳协同效应分析和驱动因素 俞珊, 韩玉花, 牟洁, 张双, 张增杰 (1917)

碳排放权交易价格与全要素生产率:来自中国的证据 吴雪萍 (1926)

中国城市PM_{2.5}和PM₁₀时空分布特征和影响因素分析 李江苏, 段良荣, 张天娇 (1938)

2017~2021年苏皖鲁豫交界区域PM_{2.5}和O₃时空变化特征及影响因素 陈伟, 徐学哲, 刘文清 (1950)

疫情管控期西安PM_{2.5}和O₃污染特征及成因分析 原晓红, 张强, 李琦, 谢文豪, 刘跃廷, 樊亭亭, 姜旭朋 (1963)

苏南五市秋冬季PM_{2.5}化学组成特征和空间差异 冯蔚, 丁峰, 尚玥, 谢鸣捷 (1975)

湖北咸宁细颗粒物PM_{2.5}来源 罗怡, 朱宽广, 陈璞琬, 田军, 谢旻, 战杨志豪, 赵润琪 (1983)

邢台氨减排对京津冀PM_{2.5}改善的溢出效益 边泽君, 闻超玉, 郎建垒, 范晓茜, 夏祥晨, 周颖 (1994)

聊城市冬季PM_{2.5}载带金属元素污染特征、风险评价及来源分析 张敬巧, 朱瑶, 曹婷, 燕丽, 王淑兰, 刘铮 (2003)

高原城市拉萨典型VOCs排放源成分谱特征 郭淑政, 叶春翔, 林伟立, 陈熠, 曾立民, 尹晴晴, 刘雪莉 (2011)

北京市工业园区VOCs污染特征及健康风险评估案例:高新技术产业的环境影响 王洁, 姚震, 王敏燕, 陈速敏, 龙腾, 王海滨, 李红, 郭秀锐, 郝江虹, 聂磊 (2019)

高温极端天气影响下的成都平原一次典型臭氧污染过程分析 雷丽娟, 张懿, 罗伊娜, 张潇, 冯森 (2028)

水环境中抗病毒毒物的存在、行为与风险 葛林科, 李璇艳, 曹胜凯, 郑金帅, 张蓬, 朱超, 马宏瑞 (2039)

黄河小浪底水库地表水中重金属的时空变化与概率健康风险 王亮, 邓雪娇, 王潇磊, 李明, 刘奕尧, 姜亚敏, 涂响, 张坤锋 (2054)

藏东多曲河流域总富集水化学特征及控制因素 李敬杰, 连晟, 王明国, 张智印, 张涛 (2067)

西北内陆区降水稳定同位素时空分布特征及其水汽来源 张炎炎, 辛存林, 郭小燕, 张博, 陈宁, 史延飞 (2080)

基于水化学和氢氧同位素的泰安城区岩溶地下水补给来源及演化过程 孟令华 (2096)

丹江流域山区地表水-地下水水化学特征及其影响因素 张子燕, 伏永朋, 王宁涛, 谭建民, 刘亚磊 (2107)

金塔盆地鸳鸯池灌区地下水水化学特征及控制因素 王晓燕, 韩双宝, 张梦南, 尹德超, 吴玺, 安永会 (2118)

德阳市平原区浅层地下水水化学特征与健康风险评价 刘楠, 陈盟, 高东东, 吴勇, 王橦橦 (2129)

典型城市河网沉积物微塑料时空分布特征 许万璐, 范一凡, 钱新 (2142)

抚仙湖流域尺度氮排放清单构建及关键源解析 王延杰, 梁启斌, 王艳霞, 侯磊, 陈奇伯, 王伟, 李晓琳, 高俊淑 (2150)

过氧化钙/海泡石海藻酸钠缓释凝胶复合材料的制备及其对内源磷的控制性能 曲思彤, 单苏洁, 王崇铭, 吴玲子, 李大鹏, 黄勇 (2160)

矿物超细颗粒的形成机制、结构特征及其环境行为和效应 刘振海, 张展华, 袁语欣, 朱盼盼, 陈威, 张彤 (2171)

生物炭固定化菌复合材料在环境修复中的应用研究进展 孙淑玉, 黄梦鑫, 孔强, 张焕新, 刘继伟 (2185)

微塑料对沸石吸附水体氨氮的影响及其机制 练建军, 谢诗婷, 吴培, 孟冠华, 陈波 (2195)

紫外老化作用对纳米生物炭吸附环丙沙星的影响机制 马锋锋, 薛之一, 赵保卫 (2203)

土地利用影响下永定河流域浮游植物群落与环境因子响应 郭善嵩, 胡思, 丁一桐, 张嘉渭, 孙长顺, 卢悦, 潘保柱 (2211)

鄱阳湖湿地细菌群落多样性和可培养细菌功能基因丰度 喻江, 王淳, 龙永, 刘贵花, 李春杰, 范国权, 于镇华 (2223)

典农河沉积物细菌群落结构特征及其与重金属的关系 刘双羽, 蒙俊杰, 邱小琼, 周瑞娟, 李霖 (2233)

污水处理厂尾水排放对受纳河流细菌和真菌微生物群落的影响 郭有顺, 余仲, 郝文彬, 孟凡刚 (2246)

宏基因组学分析深度处理阶段污水中细菌的赋存特征及其功能 胡健双, 王燕, 周政, 汪雅琴, 王秉政, 李激 (2259)

大别山区生境质量时空特征及自然-人为因素驱动机制 郑亚平, 张俊华, 田惠文, 朱航成, 刘舒, 丁亚鹏 (2268)

基于连续小波变换、SHAP和XGBoost的土壤有机质含量高光谱反演 叶森, 朱琳, 刘旭东, 黄勇, 陈蓓蓓, 李欢 (2280)

秸秆还田、覆膜和施氮对旱地麦田土壤质量的影响 叶子壮, 王松燕, 陆潇, 史多鹏, 吕慎强, 李嘉, 杨泽宇, 王林科 (2292)

长期施用有机肥对土壤微塑料赋存及迁移特征的影响 王长远, 马啸驰, 郭德杰, 刘新红, 马艳, 罗佳 (2304)

土壤盐分变化对N₂O排放影响:基于Meta分析 黄艺华, 余冬立, 史祯琦, 胡磊, 潘永春 (2313)

基于土地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量评价与预测 郑慧玲, 郑辉峰 (2321)

基于InVEST模型的伏牛山地区生态系统碳储量时空变化模拟 张哲, 时振钦, 朱文博, 孙梓欣, 赵体侠, 邓文萍, 刘志强 (2332)

防护林建设过程中土壤微生物养分限制与有机碳组分之间的关系 徐凤璟, 黄懿梅, 黄倩, 申继凯 (2342)

长期秸秆还田褐土有机碳矿化特征及其驱动力 赵宇航, 殷浩凯, 胡雪纯, 解文艳, 刘志平, 周怀平, 杨振兴 (2353)

冬绿肥覆盖对土壤团聚体及有机碳和AMF多样性的影响 鲁泽让, 陈佳钰, 李智贤, 李永梅, 罗志章, 杨锐, 田明洋, 赵吉霞, 范茂攀 (2363)

辽河流域氮素时空分布及其对土地利用和降雨的响应 周波, 李晓光, 童思陈, 吕旭波, 郭朝臣, 雷坤 (2373)

高强度农业种植区不同景观池塘氧化亚氮排放特征 张欣悦, 肖启涛, 谢晖, 刘臻婧, 邱银国, 罗菊花, 徐向华, 段洪涛 (2385)

生物炭与不同类型氮肥施肥对菜地土壤反硝化细菌群落的影响 柳晓婉, 刘杏认, 高尚洁, 李贵春 (2394)

大岳山不同林龄人工油松林土壤微生物特征 马义淑, 曹亚鑫, 牛敏, 张明昱, 程曼, 文永莉 (2406)

基于稀疏样点的土壤重金属含量模拟方法 张佳琦, 潘瑜春, 高世臣, 赵亚楠, 景胜强, 周艳兵, 郇允兵 (2417)

基于特定源-风险评估模型的兰州黄河风情线绿地土壤重金属污染优先控制源分析 李军, 李旭, 李开明, 焦亮, 台喜生, 臧飞, 陈伟, 脱新颖 (2428)

西南不同类型紫色土pH变化、重金属累积与潜在生态风险评估 张海琳, 张雨, 王顶, 谢军, 张跃强, 张宇亭, 王洁, 石孝均 (2440)

重庆某铁矿周边耕地土壤重金属污染评价及来源解析 廖泽源, 李杰芹, 沈智杰, 李彩霞, 罗程钟, 梅楠, 张成, 王定勇 (2450)

金属矿区周边农田土壤与农作物重金属健康风险评估 魏洪斌, 罗明, 向奎, 查理思 (2461)

赤泥基纳米零价铁对多金属污染土壤修复效果 刘龙宇, 杨世利, 赵黄诗雨, 常凯威, 余江 (2473)

施锌对碱性土壤-小麦幼苗体系累积镉的影响 张瑶, 王天齐, 牛硕, 杨阳, 陈卫平 (2479)

聊城市冬季PM_{2.5}载带金属元素污染特征、风险评价及来源分析

张敬巧¹, 朱瑶¹, 曹婷¹, 燕丽², 王淑兰¹, 刘铮^{1*}

(1. 中国环境科学研究院, 北京 100012; 2. 生态环境部环境规划院, 北京 100043)

摘要: 为研究聊城市冬季环境空气中PM_{2.5}载带金属元素的污染特征、风险评价及来源, 分别于2018年和2019年的1月采集了环境空气PM_{2.5}样品并分析了其中19种金属元素的浓度. 结果表明, 采样期间聊城市冬季 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 和金属元素浓度平均值分别为 $(87.7 \pm 39.9) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(6.92 \pm 2.91) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 金属元素中 $\rho(\text{Ca})$ 和 $\rho(\text{Al})$ 最高, 分别为 $1.97 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $1.35 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 其他元素浓度相对偏低, 相较于清洁天, 污染天时 $\rho(\text{Ca})$ 、 $\rho(\text{Al})$ 、 $\rho(\text{Fe})$ 及 $\rho(\text{Ti})$ 有所降低, 而其他元素浓度均有所升高. 地累积指数(I_{geo})结果表明, 聊城市冬季Cd、Zn、Pb、Sn和Cu的 I_{geo} 均高于2.5, 受污染程度均在重度污染以上, 其他元素 I_{geo} 均小于1, 属于轻度污染或无污染程度. 潜在生态风险评价结果显示金属元素的RI指数高达10 114.2, 潜在危害较强, 其中Cd的 E_i 最高为9 802.2, 其次为Pb、As和Cu, Cd贡献率达到了96.9%, 是聊城市冬季金属元素潜在生态风险的关键因子, 且清洁天时潜在生态风险较高; 对于人群健康风险评估, Mn、Cr、Pb、Ni、As、Co、Cd、V和Ba这9种元素的综合效应具有一定的非致癌风险及致癌风险, 致癌风险最高的为As, R值为 1.16×10^{-5} , 其次为Cr(VI), 污染天相关元素的非致癌及致癌风险均明显高于清洁天. 富集因子结果及主成分分析结果显示, Cd、Pb、Zn和Sn元素富集程度显著, 除Ca元素外, 其他元素污染天富集因子均明显升高, 金属元素的主要来源包括交通源、燃烧源、扬尘源及煤炭燃烧源, 贡献率分别为37.5%、22.5%、17.5%和7.2%. 整体看聊城市冬季PM_{2.5}载带金属元素受人为源影响较大, 其中交通源和燃烧源为重点管控源类.

关键词: PM_{2.5}; 金属元素; 地累积指数; 风险评价; 来源分析

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2024)04-2003-08 DOI: 10.13227/j.hjlx.202304217

Characteristics, Risk Assessment, and Sources of the Polluted Metallic Elements in PM_{2.5} During Winter in Liaocheng City

ZHANG Jing-qiao¹, ZHU Yao¹, CAO Ting¹, YAN Li², WANG Shu-lan¹, LIU Zheng^{1*}

(1. Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China; 2. Chinese Academy of Environmental Planning, Beijing 100043, China)

Abstract: In order to study the pollution characteristics, risk assessment, and sources of the metallic elements in ambient PM_{2.5} during winter in Liaocheng City, PM_{2.5} measurements were conducted daily for two consecutive years in January 2018 and 2019. The results showed that the average PM_{2.5} and metallic element concentrations were $(87.7 \pm 39.9) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ and $(6.92 \pm 2.91) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, respectively, during the sampling period in winter in Liaocheng City. The concentrations of Ca and Al, $1.97 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ and $1.35 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, respectively, were highest, and the concentrations of other elements were relatively low. Additionally, the concentrations of Ca, Al, Fe, and Ti decreased on polluted days compared with those on clean days, whereas the concentrations of other elements increased. The results of the ground accumulation index (I_{geo}) showed that the I_{geo} of Cd, Zn, Pb, Sn, and Cu were all higher than 2.5, which was above the heavy pollution level, and the I_{geo} of other elements were less than 1, which belonged to the degree of light pollution or no pollution. The potential ecological risk assessment results showed that the RI index of metallic elements was 10 114.2, and the potential harm was strong. The E_i of Cd was 9 802.2 with a contribution of 96.9%, followed by Pb, As, and Cu; thus, Cd was the key factor of the potential ecological risk of metallic elements, and it was higher on clean days. For population health risk assessment, the combined effects of nine elements, namely Mn, Cr, Pb, Ni, As, Co, Cd, V, and Ba, had certain non-carcinogenic risks and carcinogenic risks. The highest carcinogenic risk element was As, with an R value of 1.16×10^{-5} , followed by Cr(VI). The potential ecological, non-carcinogenic, and carcinogenic risks on polluted days were higher than those on clean days of related elements. The results of enrichment factor and principal component analysis showed that the enrichment degree of the Cd, Pb, Zn, and Sn elements were significant, and the enrichment factors of other elements increased to some extent on polluted days, except for Ca. The main sources of metallic elements included traffic sources, combustion sources, dust sources, and coal combustion sources, with contributions of 37.5%, 22.5%, 17.5%, and 7.2%, respectively. As a whole, the metallic elements of PM_{2.5} were greatly affected by human sources in Liaocheng City in winter, among which traffic sources and combustion sources were the key control sources.

Key words: PM_{2.5}; metallic element; geo-accumulation index; risk assessment; source apportionment

大气污染是我国近年来的热点话题之一, 近年来我国在大气污染防治方面做了大量工作并取得了显著成效, 但当前PM_{2.5}依然是影响环境空气质量的首要污染物, 尤其在北方的秋冬季^[1-3]. PM_{2.5}作为大气污染的主要污染物之一, 不仅会降低能见度和影响气候, 还会直接影响人体健康^[4,5]. PM_{2.5}的主要组分包括水溶性离子、碳组分和金属元素, 金属元素

虽然在颗粒物中含量较低, 但具有难以降解、高反应活性和毒性大等特点, 很大一部分金属或类金属元素(如Pb、Cd、Cr和As等)具有致癌或潜在致癌

收稿日期: 2023-04-25; 修订日期: 2023-07-17

基金项目: 大气重污染成因与治理攻关项目(DQGG0107-21)

作者简介: 张敬巧(1985-), 女, 硕士, 高级工程师, 主要研究方向为大气颗粒物污染特征及来源解析, E-mail: zhangjq@caes.org.cn

* 通信作者, E-mail: liuzheng@caes.org.cn

作用,对人体健康有极大潜在危害^[6-8].Duan等^[9]总结了我国不同城市大气颗粒物重金属的污染特征;白雯宇等^[10]在淄博开展的研究中发现Cd、Zn、Pb、Cu和As受污染程度较高,Cd存在极强的生态危害风险,土壤扬尘、机动车尾气、燃煤和冶金行业是淄博PM_{2.5}中金属元素的主要来源;陆平等^[11]研究发现临沂Cu、Zn、Pb和Sb表现为冬季浓度最高,Cd、Sb和Bi元素富集程度显著,PM_{2.5}中元素来源主要有燃煤和铜冶炼的混合源、市政垃圾焚烧源、扬尘源、机动车排放和工业源;徐静等^[12]在北京研究发现,北京城区Pb、As、Zn、Ni和Cu金属元素来自人为活动,Ni的地累积指数(I_{geo})值为0.79,受到人为和自然源的共同影响,北京城郊生态风险指数极强,对于元素单项污染物生态风险,Cd的风险极强;李雪梅等^[13]在山西大学城研究发现,对人群具有非致癌风险的元素为Mn,PM_{2.5}中元素的主要来源包括天然矿物粉尘和城市扬尘、燃煤和交通源.

聊城市位于山东省西部,与河北省接壤,是中原经济区重要的运输通道.目前针对聊城市颗粒物的研究主要集中在质量浓度、水溶性离子及来源解析^[14-16],针对金属元素的风险评价及来源分析相对较少,为此,本研究分别于2018年和2019年的1月在聊城市区开展了PM_{2.5}样品采集,并对其中19种金属元素组分进行了分析,深入分析了聊城市冬季金属元素的浓度水平、潜在风险及来源情况,并对清洁天与污染天的污染特征进行了对比,以期聊城市冬季PM_{2.5}中金属元素的风险管理及污染控制提供数据支撑及科学依据.

1 材料与方 法

1.1 样品采集

本研究采样点位于聊城市主城区市政府4楼楼顶平台(115.980°E, 36.457°N, 具体见图1),距离地面约12 m,采样点周围为行政管理机构和商业区,周围无明显障碍物及污染源.采样仪器为武汉天虹生产的90TH-150C系列智能中流量总悬浮微粒采样仪(切割头为PM_{2.5}),现场工作流量为100 L·min⁻¹.采样膜为聚丙烯纤维滤膜($\varphi = 90$ mm).采样前,将聚丙烯纤维滤膜在60°C马弗炉中烘烤,去除膜内影响称量和分析精度的物质^[17].在采样前后,滤膜在恒温恒湿条件下平衡24 h后(温度25°C,相对湿度50%),使用精度为0.1 mg的天平(梅特勒,

XP105)进行称量,称量前对滤膜进行除静电操作,分析前滤膜样品需置于-18°C的冰箱中保存.

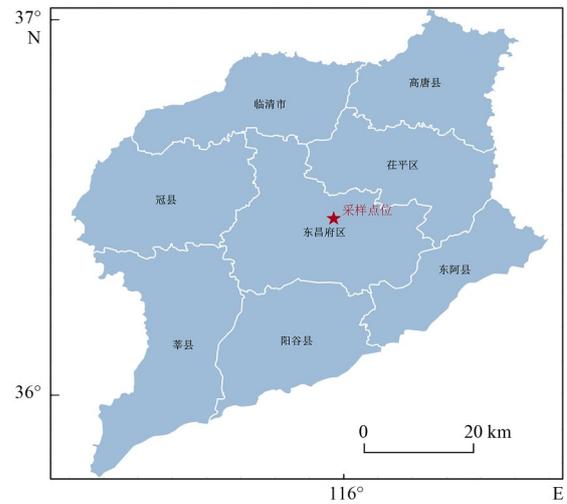


图1 采样点位示意

Fig. 1 Location of sample site

1.2 样品分析方法及质控措施

取1/4聚丙烯纤维滤膜样品,使用安捷伦公司生产的7700 Series ICP-MS和PerkinElmer公司生产的8300 ICP-AES分别测定Ca、Fe、K、Mg、Na、Zn、Mn、Cu、Cr、Pb、Ni、As、Sn、Co、Cd、V、Ba和Al元素.具体分析方法和质控方法参考文献^[15].

1.3 数据分析方法

1.3.1 地累积指数

地累积指数(I_{geo})通常称为Muller指数,该指数同时考虑了自然地质过程造成的背景值和人为活动两个方面对重金属污染的影响^[18].因此,该指数常被作为区分自然源和人为活动影响的重要参数,近年来被广泛应用于评价颗粒物中金属元素污染程度^[19,20].地累积指数计算公式为:

$$I_{geo} = \log_2 [C_i / (k \times B_i)] \quad (1)$$

式中, C_i 为样品中金属元素*i*的含量,mg·kg⁻¹; B_i 为*i*金属元素的地质背景值,本研究取山东省A层土壤元素背景值^[21],具体取值如表1所示; k 为因成岩运动可能引起背景值变动而设定的常数,依据前人研究成果^[22]取1.5.本研究中地累积指数分级如下^[23]: $I_{geo} < 0$,无污染; $0 \leq I_{geo} < 1$,轻度污染; $1 \leq I_{geo} < 2$,中度污染; $2 \leq I_{geo} < 3$,偏重度污染; $3 \leq I_{geo} < 4$,重度污染; $4 \leq I_{geo} < 5$,偏严重污染; $I_{geo} \geq 5$,严重污染.

1.3.2 潜在生态风险评价

潜在生态风险评价法是1980年由瑞典学者

表1 山东省A层土壤元素背景值^[21]/mg·kg⁻¹

Table 1 Background values of soil elements in layer A of Shandong province/mg·kg⁻¹

元素	Ca	Al	Fe	K	Mg	Na	Zn	Mn	Cu	Cr	Pb	Ni	As	Sn	Co	Cd	V	Ti	Ba
背景值	16 700	66 200	27 200	19 300	8 000	15 400	63.5	644	24.5	66	25.8	29.4	9.3	3	14	0.084	80	3 500	502

Hakanson 提出的^[24], 该方法的原理是沉积物中金属的潜在生态危害指数与金属污染程度正相关, 多种金属污染的生态危害具有加和性. 潜在生态风险指数的计算公式如下.

$$RI = \sum_{i=1}^n E_r^i = \sum_{i=1}^n T_r^i \times (C_i / B_i) \quad (2)$$

式中, RI为颗粒物中多种金属元素潜在生态风险指数加和; E_r^i 为颗粒物中金属元素*i*的潜在生态风险指数; T_r^i 为金属元素*i*的毒性系数, 反映其毒性水平和生物对其污染的敏感性; C_i 为样品中金属元素*i*的含量, $\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$; B_i 取值与1.3.1节中一致; 表2列出了8种重金属元素的毒性系数^[25].

表2 重金属的毒性系数

Table 2 Toxicity coefficient of heavy metals

元素	Zn	Mn	Pb	Cu	Cr	As	Ni	Cd
毒性系数	1	1	5	5	2	10	5	30

本研究中的8种重金属元素毒性系数的最大值来自Cd, T_r 为30, 根据Hakanson对单因子潜在生态风险指数(E_r)污染等级划分规则, 进行了 E_r 等级划分的调整; 后又根据马建华等^[26]的研究成果, 对RI进行了等级划分的调整. 调整后的潜在生态风险评价指标分级见表3.

表3 潜在生态风险评价分级

Table 3 Potential ecological risk assessment index is graded

E_r	单因子生态危害程度	RI	总的潜在生态危害程度
<30	轻微	<70	轻微
30~60	中等	70~140	中等
60~120	较强	140~280	较强
120~240	强	280~560	很强
≥240	极强	>560	极强

1.3.3 潜在健康风险评价

吸附在PM_{2.5}上的有害重金属主要以呼吸暴露途径进入人体并对人体机能带来负面影响^[27], 故本研究只考虑呼吸途径造成的人群健康风险, 包括As、Ba、Cd、Co、Cr、Mn、Ni和V的非致癌效应及As、Cd、Co、Cr、Ni和Pb的致癌效应.

本研究利用US EPA推荐的风险评估模型计算PM_{2.5}载带重金属的风险, 计算公式如下.

(1)非致癌风险:

$$ADC_i = c_i \times EF \times ED / AT \quad (3)$$

$$HQ_i = ADC_i / (RfC_i \times 1\,000 \mu\text{g} \cdot \text{mg}^{-1}) \quad (4)$$

$$HI = \sum HQ_i \quad (5)$$

式中, ADC_i 为元素*i*的日均暴露浓度($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$); c_i 为该地区大气细颗粒物中重金属元素的浓度平均值($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$); EF为暴露频率, 本研究采用 $350 \text{ d} \cdot \text{a}^{-1}$ ^[28];

ED为暴露持续时间, 30 a; AT为平均暴露时间($ED \times 365 \text{ d} \cdot \text{a}^{-1}$); HQ_i 为重金属元素*i*的非致癌风险; RfC_i 为重金属元素*i*的参考剂量($\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$). 当 $HQ \leq 1$ 时, 表示非致癌风险处于可接受水平; $HQ > 1$ 表示可能产生非致癌风险. 危害指数(hazard index, HI)为所有重金属元素危害商值(HQ)的总和, 用来评价所有重金属元素的累计风险.

(2)致癌风险:

$$LADC_i = c_i \times EF \times ED / LT \quad (6)$$

$$R_i = LADC_i \times IUR_i \quad (7)$$

$$CR = \sum R_i \quad (8)$$

式中, $LADC_i$ 为元素*i*的终生日均暴露浓度($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$); LT为终身暴露时间, 本研究选取该地区一般人群预期寿命($74.57 \text{ a} \times 365 \text{ d} \cdot \text{a}^{-1}$); R_i 为重金属元素*i*的终身致癌风险; IUR_i 为重金属元素*i*的单位浓度呼吸风险($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)⁻¹; CR为不同重金属元素*i*的致癌风险总和; 当CR值 $< 1 \times 10^{-6}$ (为10⁶人群中发生1位致癌患者概率)时, 表明致癌风险可以忽略, 当CR的值 $> 1 \times 10^{-4}$ 时, 则致癌风险较大.

2 结果与讨论

2.1 PM_{2.5}及金属元素污染水平

聊城市冬季PM_{2.5}及其载带金属元素的浓度变化特征如图2所示. 观测期间聊城市冬季 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 平均值为 $(87.7 \pm 39.9) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 为我国环境空气质量二级标准值(GB 3095-2012, $75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)的1.17倍, 超标 $12.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 观测期间, PM_{2.5}载带19种重金属元素的浓度总和为 $(6.92 \pm 2.91) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 单一元素金属元素的质量浓度从高到低依次为: $\text{Ca} > \text{Al} > \text{K} > \text{Fe} > \text{Na} > \text{Mg} > \text{Zn} > \text{Ti} > \text{Mn} > \text{Pb} > \text{Cu} > \text{Ba} > \text{Cr} > \text{As} > \text{Ni} > \text{Sn} > \text{V} > \text{Cd} > \text{Co}$, 其中 $\rho(\text{Ca})$ 和 $\rho(\text{Al})$ 最高, 分别为 $1.97 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $1.35 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, $\rho(\text{As})$ 和 $\rho[\text{Cr}(\text{VI})]$ (按总Cr的1/6计算)^[29, 30]平均值分别为 $7.04 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $1.23 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 分别是GB 3095-2012标准限值($0.025 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)的0.17倍和49.2倍, 而 $\rho(\text{Cd})$ 和 $\rho(\text{Pb})$ 平均值分别为 $2.25 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $49.53 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 未超过GB 3095-2012的标准限值($5 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $500 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$).

为分析不同污染状况下PM_{2.5}载带金属的浓度特征, 来源及风险评估, 以环境空气质量二级标准浓度限值 $75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 为标准, 将采样期间的天气状况分为清洁天和污染天, 其中清洁天和污染天分别为28个和29个. 结果显示(图2和表4), 清洁天 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 和金属元素浓度平均值分别为 $(55.4 \pm 14.2) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(7.3 \pm 3.32) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 污染天为 $(118.8 \pm 30.7) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(6.49 \pm 2.45) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 污染天PM_{2.5}浓

度是清洁天的2.14倍,对于各金属元素浓度,清洁天与污染天浓度排名基本一致,Ca、Al、Fe、K、Na、Mg、Ti和Zn为浓度相对较高的物种,其他元

素浓度相对较低,另外污染天Ca、Al、Fe及Ti受地壳物质影响较大的元素浓度有所降低,而K、Zn和Pb等受人为影响较大的元素浓度均有所升高。

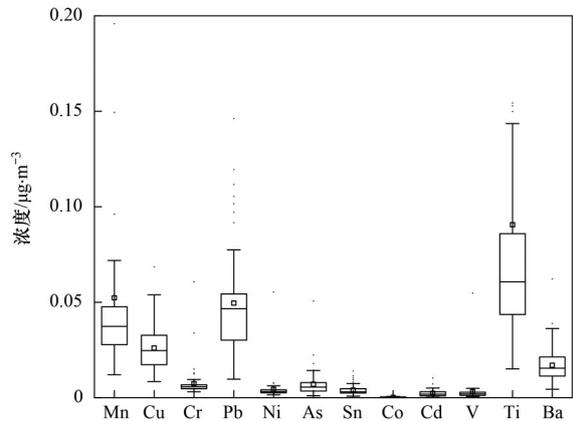
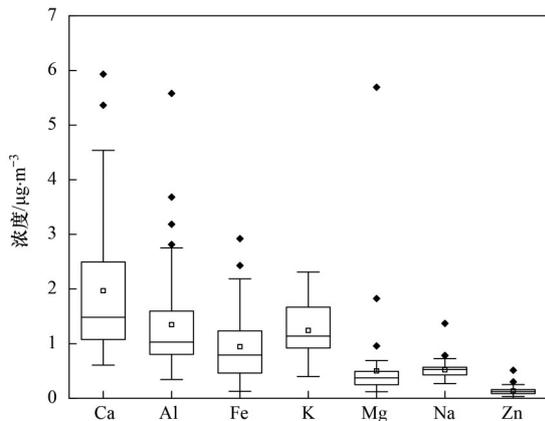


图2 聊城冬季PM_{2.5}载带金属元素浓度特征

Fig. 2 Mass concentration of metallic elements in PM_{2.5} during winter in Liaocheng City

地累积指数可以用来评价PM_{2.5}载带金属元素的污染水平,聊城冬季PM_{2.5}载带金属元素I_{geo}结果如图3所示.结果显示,聊城冬季Cd的I_{geo}值最高,为7.77,属于严重污染;其次为Zn的4.12,属于偏严重污染;Pb、Sn和Cu的I_{geo}值分别为3.92、3.57和3.21,为重度污染;As的I_{geo}值为2.57,为偏重度污染,而其他元素的I_{geo}值均小于1,属于轻度污染或无污染程度.研究结果与淄博^[10]、临沂^[11]和新乡^[31]等地基本一致.整体看,Cd、Zn、Pb、Sn、Cu和As受人为活动影响较大,为重点关注元素种类.清洁天与污染天时,各元素的地累积指数变化数值有所变化(具体见表4),但排序基本一致,从I_{geo}值来看,污染天Pb、As、Sn和Cd的I_{geo}值有所升高,其他元素的有所降低,表明污染天时Pb、As、Sn和Cd等受人为影响较大的元素污染程度有所加重。

表4 清洁天与污染天PM_{2.5}载带金属元素浓度及I_{geo}结果
Table4 Concentration and I_{geo} results of metallic elements in PM_{2.5} on clean and pollution days

元素	浓度/µg·m ⁻³		I _{geo}	
	清洁天	污染天	清洁天	污染天
Ca	2.465 1	1.489 8	0.631 0	-1.113 2
Al	1.669 6	1.037 0	-1.949 4	-3.639 8
Fe	1.039 7	0.853 3	-1.395 2	-2.757 4
K	0.950 3	1.523 9	-0.789 6	-1.184 8
Mg	0.447 4	0.552 0	-0.779 8	-1.869 9
Na	0.458 8	0.581 6	-1.474 4	-2.256 9
Zn	0.099 2	0.165 3	4.135 1	3.800 2
Mn	0.038 0	0.066 0	-0.625 3	-1.263 5
Cu	0.022 5	0.029 3	3.368 4	2.686 3
Cr	0.005 4	0.009 3	-0.039 6	-0.704 7
Pb	0.032 3	0.066 2	3.768 4	3.798 5
Ni	0.003 4	0.005 3	0.419 7	-0.495 1
As	0.003 9	0.010 1	2.147 7	2.382 9
Sn	0.002 5	0.005 4	3.336 8	3.446 3
Co	0.000 3	0.000 3	-1.933 6	-3.385 6
Cd	0.001 7	0.002 8	7.345 6	7.423 1
V	0.002 3	0.003 8	-1.705 8	-2.799 4
Ti	0.105 3	0.076 3	-1.914 5	-3.392 7
Ba	0.017 1	0.016 9	-1.381 0	-2.591 3

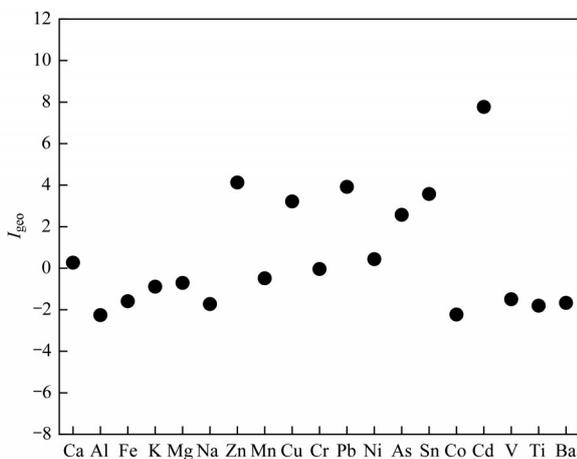


图3 聊城冬季PM_{2.5}载带金属元素I_{geo}结果

Fig. 3 The I_{geo} results of metallic elements in PM_{2.5} during winter in Liaocheng City

2.2 PM_{2.5}载带重金属元素风险评价

2.2.1 潜在生态风险评价

为了解金属元素污染可能造成的生态风险,根据已有报道的金属元素毒性系数和工业化前背景地壳元素丰度,对聊城市冬季地累积指数偏高的8种元素(Zn、Mn、Cu、Cr、Pb、Ni、As和Cd)进行了潜在生态风险评价,评价结果如表5所示.从单因子生态危害程度来看,Cd的潜在生态风险指数(E_r)最高,为9 802.2,其次为Pb、As和Cu,三者的E_r分

别为 113.3、89.0 和 69.5, Zn 的 E_r 略低, 为 26.2, 而 Ni、Cr 和 Mn 的 E_r 相对较低, 分别为 10.1、2.9 和 1.1. 污染天时, 除 As 外, 各元素的生态危害程度数值均有所降低, 可能与污染天时金属元素浓度占比相对

偏低有关. 整体来看, 金属元素的潜在危害较强, RI 指数高达 10 114.2, 其中 Cd 贡献达到 96.9%, 其次为 Pb 的 1.12%, 其他元素贡献均在 1% 以下, 因此 Cd 是聊城市冬季金属元素潜在生态风险的关键因子.

表 5 聊城市冬季大气 PM_{2.5} 中金属元素潜在生态风险指数 (E_r)

Table 5 Potential ecological risk index of metals in PM_{2.5} during winter in Liaocheng City (E_r)

元素种类	Zn	Mn	Cu	Cr	Pb	Ni	As	Cd	RI
清洁天	28.6	1.1	85.9	3.1	116.1	11.2	79.0	10 955.6	11 280.7
污染天	23.8	1.0	53.8	2.7	110.5	9.1	98.6	8 688.5	8 988.0
整体情况	26.2	1.1	69.5	2.9	113.3	10.1	89.0	9 802.2	10 114.2
单因子生态危害程度	轻微	轻微	较强	轻微	较强	轻微	较强	极强	极强

2.2.2 人群健康风险评估

根据 US EPA 推荐的健康风险评估模型, 计算了聊城市冬季大气 PM_{2.5} 载带的 Mn、Cr、Pb、Ni、As、Co、Cd、V 和 Ba 这 9 种金属元素的非致癌和致癌健康风险, 其中 RfC 和 IUR 的取值均来自于毒理数据库^[32-39], RfC 和 IUR 值具体见表 6 所示. 结果表明, 对于非致癌风险, 聊城市冬季 Mn、Ni、As 和 Cd 的 HQ 值高于 1, 表明存在一定的非致癌风险, 而 Cr(VI)、Co、V 和 Ba 的 HQ 值均小于 1, 表明不存在非致癌风险. 从金属元素的综合效应来看, 9 种元素的 HI 值为 19.79, 表明这 9 种元素的综合效应具有一定的非致癌风险. 另外, 污染天时 HI 值为 25.56, 明显高于清洁天的 13.81, 污染天时 9 种元素的非致癌风险有所升高.

对于致癌风险, Cr(VI)、Pb、Ni、Co 和 Cd 的 R 值分别为 5.6×10^{-6} 、 2.28×10^{-7} 、 4.01×10^{-7} 、 1.03×10^{-6} 和 1.55×10^{-6} , Pb 和 Ni 的 R 值低于 1.0×10^{-6} , 表明致癌风险可以忽略, Cr(VI)、Co 和 Cd 的 R 值虽然大于 10^{-6} , 但均小于 10^{-4} , 可认为具有一定的致癌风险, 但致癌风险不大, 而 As 的 R 值为 1.16×10^{-5} , 虽然高于其他元素, 但亦低于 1.0×10^{-4} , 表明 As 存在一定的致癌风险但致癌风险同样不大. 污染天时, 除 Co 外, 其他元素的 R 值明显升高. 从 6 种元素的综合效应看, 聊城市冬季 PM_{2.5} 载带金属元素的 R 值之和为 2.05×10^{-5} , 污染天的 R 值 2.743×10^{-5} 明显高于清洁天的 1.330×10^{-5} , 表明聊城市冬季金属元素存在一定的致癌风险, 但致癌风险不大, 致癌风险最高的为 As, 其次为 Cr(VI), 并且污染天时致癌风险明显升高.

表 6 聊城市冬季大气 PM_{2.5} 中金属元素的非致癌及致癌效应风险指数¹⁾

Table 6 Risk index of non-carcinogenic and carcinogenic effects of metals in PM_{2.5} during winter in Liaocheng City

元素	非致癌系数 (RfC)/(ng·m ⁻³)	致癌系数 (IUR)/(ng·m ⁻³) ⁻¹	非致癌风险(HQ)			致癌风险(R)		
			清洁天	污染天	整体情况	清洁天	污染天	整体情况
Mn	5.00×10^1	—	7.296	12.66	10.025	—	—	—
Cr(VI)	1.00×10^2	1.20×10^{-5}	0.009	0.015	0.012	4.162×10^{-6}	7.103×10^{-6}	5.658×10^{-6}
Pb	—	1.20×10^{-8}	—	—	—	1.49×10^{-7}	3.05×10^{-7}	2.28×10^{-7}
Ni	1.40×10^1	2.40×10^{-7}	2.316	3.622	2.98	3.11×10^{-7}	4.87×10^{-7}	4.01×10^{-7}
As	1.50×10^1	4.30×10^1	2.466	6.467	4.502	6.362×10^{-6}	$1.668 5 \times 10^{-5}$	$1.161 4 \times 10^{-5}$
Co	6.00×10^0	9.00×10^{-6}	0.053	0.043	0.048	1.151×10^{-6}	0.920×10^{-6}	1.033×10^{-6}
Cd	1.00×10^1	1.80×10^{-6}	1.613	2.687	2.159	1.161×10^{-6}	1.935×10^{-6}	1.555×10^{-6}
V	1.00×10^2	—	0.022	0.037	0.029	—	—	—
Ba	5.00×10^2	—	0.033	0.032	0.033	—	—	—
合计	—	—	13.807	25.562	19.787	1.330×10^{-5}	2.743×10^{-5}	2.049×10^{-5}

1)“—”表示没有相关数值

2.3 金属元素来源分析

2.3.1 富集因子

富集因子(enrichment factor, EF)法被广泛用来评价金属元素的污染程度、来源以及其是否受到人类活动的影响^[40]. 富集因子的计算公式为:

$$EF = (X_i / X_r)_{\text{sample}} / (X_i / X_r)_{\text{baseline}} \quad (9)$$

式中, X_i 为元素 i 的质量浓度, X_r 为选定的参比元素的质量浓度, sample 和 baseline 分别表示 PM_{2.5} 样品和背景. 一般认为, 当 $EF \leq 10$ 时, 可认为该元素是非富集的, 主要来源于地壳或岩石风化等自然源; 当 $EF > 10$ 时, 则认为该元素被富集了, 主要来源于人为污染.

本研究中选取在土壤中比较稳定且人为污染较小的惰性元素 Fe 为参比元素, 背景值见文献[21]. 研究期间金属元素在 PM_{2.5} 中的富集因子如图 4 所示. 结果显示, Fe、K、Mg、Na、Mn、Cr、Co、V、Ti 和 Ba 等元素的 EF 值小于 10, 表明其主要受自然来源影响, 可能主要是土壤或岩石风化的尘刮入大气中造成的; Cu、Ni 和 As 的富集因子在 10~100 之间, 这 3 种元素主要来源于人为源, 城区交通源较多, Cu 主要来自刹车片磨损和柴油发动机^[41], Ni 主要来自石油燃烧^[42], As 是燃煤燃烧的特征元素^[43], 与冬季燃煤供暖密切相关; Pb、Zn 和 Sn 的富集因子在 100~1 000 之间, Pb 和 Zn 亦是煤燃烧的特征元素^[44], Sn 可能与机动车金属零件磨损、尾气和刹车片磨损有关^[45]; Cd 强烈富集, 富集因子达到 2 000 以上, Cd 的主要来源是燃烧源和交通源^[46], 整体受人为源影响较大. 另外, 在污染天时, 除 Ca 元素外其他金属元素污染天富集因子均明显升高, 表明污染天时金属元素受人为源影响增强.

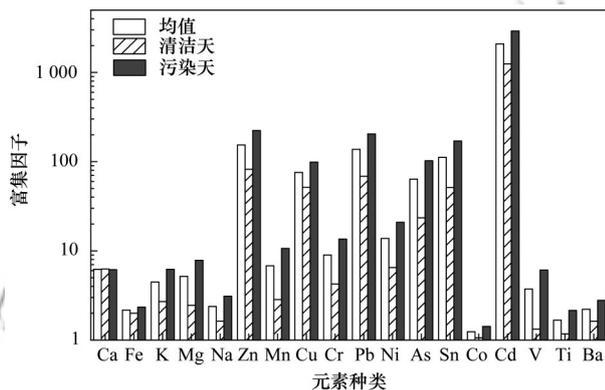


图 4 聊城市冬季 PM_{2.5} 载带金属元素富集因子 (EF) 结果

Fig. 4 Metallic element EF results in PM_{2.5} during winter in Liaocheng City

2.3.2 主成分分析

为进一步了解聊城冬季 PM_{2.5} 载带金属元素的来源, 使用数理统计软件 SPSS 18.0 对 19 种金属元素进行主成分分析, 提取特征值大于 1 的因子, 并采用最大方差法使不同组分的因子载荷差异化便于因子识别, 结果如表 7 所示. 共提取了 4 个因子, 共解释了总变量的 84.7%, 4 个因子分别解释了总变量的 37.5%、22.5%、17.5% 和 7.2%.

因子 1 贡献率最高, 为 37.5%. 因子 1 中载荷较高的元素较多, 主要为 Na、Zn、Mn、Cr、Ni、As 和 V, 有研究表明 Mn 是汽油中的重要添加剂^[47], 用来提升汽油辛烷值, Zn 和 Ni 等与机动车尾气排放和车辆机械磨损有关, V 主要来自燃油排放^[48], 因此因子 1 识别为交通源; 因子 2 贡献率为 22.5%, K、Cu、Pb 和 As 载荷较高, K 是生物质燃烧的标志性元

素^[49], As 和 Pb 亦与煤炭燃烧有关, 因此因子 2 识别为燃烧源; 因子 3 贡献率为 17.5%, 其中 Ca、Al、Fe 和 Co 元素载荷较高, Ca 和 Al 等常作为建筑扬尘、土壤扬尘及道路扬尘的标志物, 而 Co 主要来自于土壤扬尘^[50], 以上元素均为扬尘源的示踪元素, 因此因子 3 识别为扬尘源; 因子 4 贡献率较低, 为 7.2%, 各元素中 Cd 的载荷较高, 一般认为 Cd 主要来自于煤炭的燃烧^[46], 该因子与 Pb 和 As 的载荷亦高于其他元素^[43], 因此该因子识别为煤炭燃烧源.

表 7 PM_{2.5} 载带金属元素主成分分析结果

Table 7 Result of principal component analysis of metallic element in PM_{2.5}

金属元素	主成分载荷			
	因子 1	因子 2	因子 3	因子 4
Ca	0.066	-0.091	0.943	0.024
Al	-0.079	-0.152	0.848	-0.078
Fe	-0.007	0.122	0.667	-0.217
K	0.062	0.850	-0.018	0.162
Mg	0.339	0.128	0.155	0.027
Na	0.666	0.595	0.198	-0.096
Zn	0.662	0.570	0.089	0.143
Mn	0.935	0.247	0.093	0.005
Cu	0.430	0.719	-0.006	-0.234
Cr	0.899	0.151	0.065	0.084
Pb	0.110	0.825	-0.031	0.413
Ni	0.976	0.145	-0.048	-0.001
As	0.746	0.886	-0.108	0.314
Sn	0.391	0.444	-0.032	0.097
Co	0.317	0.121	0.887	0.049
Cd	0.108	0.276	-0.197	0.874
V	0.968	0.146	0.032	0.032
Ti	0.534	-0.045	0.486	0.037
Ba	0.552	0.244	0.327	0.058
贡献率/%	37.5	22.5	17.5	7.2
累计贡献率/%	37.5	60.0	77.5	84.7

3 结论

(1) 采样期间聊城市冬季 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 和金属元素浓度平均值为 $(87.7 \pm 39.9) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(6.92 \pm 2.91) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 金属元素中 $\rho(\text{Ca})$ 和 $\rho(\text{Al})$ 浓度最高, 分别为 $1.97 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $1.35 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 其他元素浓度相对偏低, 污染天时 $\rho(\text{Ca})$ 、 $\rho(\text{Al})$ 、 $\rho(\text{Fe})$ 及 $\rho(\text{Ti})$ 有所降低, 而其他元素浓度均有所升高.

(2) 聊城市冬季 Cd 的 I_{geo} 值最高, 为 7.77, 属于严重污染; 其次为 Zn 的 4.12, 属于偏严重污染; Pb、Sn 和 Cu 的 I_{geo} 值分别为 3.92、3.57 和 3.21, 为重度污染; As 的 I_{geo} 值为 2.57, 为偏重度污染, 而其他元素的 I_{geo} 值均小于 1, 属于轻度污染或无污染程度.

(3) 潜在生态风险评价结果金属元素的 RI 指数高达 10 114.2, 潜在危害较强, 其中 Cd 的 E_i 最高为

9 802.2, 其次为 Pb、As、Cu, Cd 的贡献达到 96.9%, 是聊城市冬季金属元素潜在生态风险的关键因子; 对于人群健康风险评估, Mn、Ni、As 和 Cd 的 HQ 值高于 1, 表明存在一定的非致癌风险, 6 种元素的致癌风险 *R* 值之和为 2.05×10^{-5} , 表明聊城市冬季金属元素存在一定的致癌风险, 但风险不大, 致癌风险最高的为 As, 其次为 Cr(VI). 清洁天相关元素的潜在生态风险较高, 但污染天时非致癌及致癌风险高于清洁天.

(4) 富集因子结果及主成分分析结果显示, Cd、Pb、Zn、Sn 元素富集程度显著, 除 Ca 元素外, 其他元素污染天富集因子均明显升高, 金属元素的主要来源包括交通源、燃烧源、扬尘源及煤炭燃烧源, 贡献率分别为 37.5%、22.5%、17.5% 和 7.2%, 整体看聊城市冬季 PM_{2.5} 载带金属元素受人为源影响较大, 其中交通源和燃烧源为重点管控源类.

参考文献:

- [1] Xiao C C, Chang M, Guo P K, *et al.* Analysis of air quality characteristics of Beijing-Tianjin-Hebei and its surrounding air pollution transport channel cities in China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2020, **87**: 213-227.
- [2] Zhang Y Y, Lang J L, Cheng S Y, *et al.* Chemical composition and sources of PM₁ and PM_{2.5} in Beijing in autumn [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **630**: 72-82.
- [3] 李名升, 任晓霞, 于洋, 等. 中国大陆城市 PM_{2.5} 污染时空分布规律 [J]. *中国环境科学*, 2016, **36**(3): 641-650.
Li M S, Ren X X, Yu Y, *et al.* Spatiotemporal pattern of ground level fine particulate matter (PM_{2.5}) pollution in mainland China [J]. *China Environmental Science*, 2016, **36**(3): 641-650.
- [4] Zhang X Y, Xu X D, Ding Y H, *et al.* The impact of meteorological changes from 2013 to 2017 on PM_{2.5} mass reduction in key regions in China [J]. *Science China Earth Sciences*, 2019, **62**(12): 1885-1902.
- [5] Zhang L, Gao Y, Wu S L, *et al.* Global impact of atmospheric arsenic on health risk: 2005 to 2015 [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2020, **117**(25): 13975-13982.
- [6] Zhang N, Han B, He F, *et al.* Characterization, health risk of heavy metals, and source apportionment of atmospheric PM_{2.5} to children in summer and winter: an exposure panel study in Tianjin, China [J]. *Air Quality, Atmosphere & Health*, 2015, **8**(4): 347-357.
- [7] Sha Q E, Lu M H, Huang Z J, *et al.* Anthropogenic atmospheric toxic metals emission inventory and its spatial characteristics in Guangdong province, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **670**: 1146-1158.
- [8] Wu C F, Wu S Y, Wu Y H, *et al.* Cancer risk assessment of selected hazardous air pollutants in Seattle [J]. *Environment International*, 2009, **35**(3): 516-522.
- [9] 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.
- [10] 白雯宇, 徐勃, 郭丽瑶, 等. 淄博市冬季 PM_{2.5} 载带金属元素污染特征、生态风险评价及来源分析 [J]. *环境科学*, 2022, **43**(5): 2336-2342.
- Bai W Y, Xu B, Guo L Y, *et al.* Characteristics, ecological risk assessment, and sources of the polluted metallic elements in PM_{2.5} during winter in Zibo city [J]. *Environmental Science*, 2022, **43**(5): 2336-2342.
- [11] 陆平, 赵雪艳, 殷宝辉, 等. 临沂市 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 中元素分布特征及来源解析 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(5): 2036-2043.
Lu P, Zhao X Y, Yin B H, *et al.* Distribution characteristics and source apportionment of elements bonded with PM_{2.5} and PM₁₀ in Linyi [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(5): 2036-2043.
- [12] 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.
- [13] 李雪梅, 牟玲, 田妹, 等. 山西大学城 PM_{2.5} 中元素特征、来源及健康风险评估 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(11): 4825-4831.
Li X M, Mu L, Tian M, *et al.* Characteristics, sources, and health risks of elements in PM_{2.5} in Shanxi university town [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(11): 4825-4831.
- [14] 衣雅男, 侯战方, 孟静静, 等. 聊城市冬季 PM_{2.5} 中水溶性化合物的昼夜变化特征及来源解析 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(10): 4319-4329.
Yi Y N, Hou Z F, Meng J J, *et al.* Diurnal variations and source analysis of water-soluble compounds in PM_{2.5} during the winter in Liaocheng city [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(10): 4319-4329.
- [15] 张敬巧, 吴亚君, 张萌, 等. 聊城冬季一重污染过程 PM_{2.5} 污染特征及成因分析 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(9): 4026-4033.
Zhang J Q, Wu Y J, Zhang M, *et al.* PM_{2.5} pollution characterization and cause analysis of a winter heavy pollution event, Liaocheng city [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(9): 4026-4033.
- [16] 刘晓迪, 孟静静, 侯战方, 等. 聊城市冬季 PM_{2.5} 中正构烷烃和糖类的污染特征及来源解析 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(2): 548-557.
Liu X D, Meng J J, Hou Z F, *et al.* Pollution characteristics and source analysis of n-alkanes and saccharides in PM_{2.5} during the winter in Liaocheng city [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(2): 548-557.
- [17] 温新欣. 济南市环境空气细颗粒物 (PM₁₀ 和 PM_{2.5}) 污染特征研究 [D]. 济南: 山东大学, 2009.
Wen X X. Study on the pollution characteristics of airborne fine particulate matter (PM₁₀ and PM_{2.5}) in Ji'nan [D]. Ji'nan: Shandong University, 2009.
- [18] Muller G. Index of geoaccumulation in sediments of the Rhine River [J]. *GeoJournal*, 1969, **2**(3): 108-118.
- [19] 胡月琪, 郭建辉, 张超, 等. 北京市道路扬尘重金属污染特征及潜在生态风险 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(9): 3924-3934.
Hu Y Q, Guo J H, Zhang C, *et al.* Pollution characteristics and potential ecological risks of heavy metals in road dust in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(9): 3924-3934.
- [20] 李晓霞, 廖祖文, 赵红, 等. 高速公路沿线 PM_{2.5} 中重金属污染特征 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(9): 3916-3923.
Li X B, Liao Z W, Zhao H, *et al.* Pollution characteristics of heavy metals in PM_{2.5} near highway [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(9): 3916-3923.
- [21] 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.

- [22] 胡恭任, 戚红璐, 于瑞莲, 等. 大气降尘中重金属形态分析及生态风险评估[J]. 有色金属, 2011, **63**(2): 286-291.
Hu G R, Qi H L, Yu R L, *et al.* Speciation analysis of heavy metal in atmospheric dust and ecological risk assessment [J]. *Nonferrous Metals*, 2011, **63**(2): 286-291.
- [23] 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.
- [24] Hakanson L. An ecological risk index for aquatic pollution control. a sedimentological approach [J]. *Water Research*, 1980, **14**(8): 975-1001.
- [25] 徐争启, 倪师军, 庾先国, 等. 潜在生态危害指数法评价中重金属毒性系数计算 [J]. 环境科学与技术, 2008, **31**(2): 112-115.
Xu Z Q, Ni S J, Tuo X G, *et al.* Calculation of heavy metals' toxicity coefficient in the evaluation of potential ecological risk index [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, **31**(2): 112-115.
- [26] 马建华, 韩昌序, 姜玉玲. 潜在生态风险指数法应用中的一些问题 [J]. 地理研究, 2020, **39**(6): 1233-1241.
Ma J H, Han C X, Jiang Y L. Some problems in the application of potential ecological risk index [J]. *Geographical Research*, 2020, **39**(6): 1233-1241.
- [27] Wang X F, He S L, Chen S C, *et al.* Spatiotemporal characteristics and health risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} in Zhejiang province [J]. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2018, **15**(4), doi: 10.3390/ijerph15040583.
- [28] Zhou S Z, Davy P K, Huang M J, *et al.* High-resolution sampling and analysis of ambient particulate matter in the Pearl River Delta region of southern China: source apportionment and health risk implications [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(3): 2049-2064.
- [29] 周安琪, 刘建伟, 周旭, 等. 北京大气PM_{2.5}载带金属浓度、来源及健康风险的城郊差异 [J]. 环境科学, 2021, **42**(6): 2595-2603.
Zhou A Q, Liu J W, Zhou X, *et al.* Concentrations, sources, and health risks of PM_{2.5} carrier metals in the Beijing Urban area and suburbs [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(6): 2595-2603.
- [30] Brown R J C, Van Aswegen S, Webb W R, *et al.* UK concentrations of chromium and chromium (VI), measured as water soluble chromium, in PM₁₀ [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **99**: 385-391.
- [31] 刘桓嘉, 贾梦珂, 刘永丽, 等. 新乡市大气PM_{2.5}载带金属元素季节分布、来源特征与健康风险 [J]. 环境科学, 2021, **42**(9): 4140-4150.
Liu H J, Jia M K, Liu Y L, *et al.* Seasonal variation, source identification, and health risk of PM_{2.5}-bound metals in Xinxiang [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(9): 4140-4150.
- [32] Cal EPA. Arsenic [EB/OL]. <https://oehha.ca.gov/chemicals/arsenic>, 1987-02-27.
- [33] IRIS. IRIS assessments [EB/OL]. https://iris.epa.gov/AtoZ/?list_type=alpha, 2017-01-19.
- [34] HEAST. Health effects assessment summary table [EB/OL]. <https://epa-heat.ornl.gov/>, 2011-12-01.
- [35] ATSDR. Toxic substances portal [EB/OL]. <https://www.atsdr.cdc.gov/>, 2011-03-03.
- [36] PPRTV. Provisional peer-reviewed toxicity values (PPRTVs) [EB/OL]. <https://www.epa.gov/pprtv>, 2008-08-25.
- [37] Cal EPA. Nickel compounds [EB/OL]. <https://oehha.ca.gov/chemicals/nickel-compounds>, 2016-03-22.
- [38] Cal EPA. lead and lead compounds [EB/OL]. <https://oehha.ca.gov/chemicals/lead-and-lead-compounds>, 2013-11-22.
- [39] ATSDR. Vanadium [EB/OL]. <https://www.cdc.gov/TSP/substances/ToxSubstance.aspx?toxid=50>, 2011-03-03.
- [40] Xu H X, Wang Y, Liu R H, *et al.* Spatial distribution, chemical speciation and health risk of heavy metals from settled dust in Qingdao Urban Area [J]. *Atmosphere*, 2019, **10**(2), doi: 10.3390/atmos10020073.
- [41] Tian H Z, Zhu C Y, Gao J J, *et al.* Quantitative assessment of atmospheric emissions of toxic heavy metals from anthropogenic sources in China: historical trend, spatial distribution, uncertainties, and control policies [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(17): 10127-10147.
- [42] Cong Z Y, Kang S C, Zhang Y L, *et al.* Atmospheric wet deposition of trace elements to central Tibetan Plateau [J]. *Applied Geochemistry*, 2010, **25**(9): 1415-1421.
- [43] 栾孟孝, 姬亚芹, 王伟, 等. 鞍山市秋季大气PM_{2.5}中元素污染特征和来源分析 [J]. 环境化学, 2016, **35**(10): 2197-2203.
Luan M X, Ji Y Q, Wang W, *et al.* Characteristic and sources of the polluted elements in PM_{2.5} during autumn of Anshan [J]. *Environmental Chemistry*, 2016, **35**(10): 2197-2203.
- [44] Okuda T, Katsuno M, Naoi D, *et al.* Trends in hazardous trace metal concentrations in aerosols collected in Beijing, China from 2001 to 2006 [J]. *Chemosphere*, 2008, **72**(6): 917-924.
- [45] 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.
- [46] Yang H H, Dhital N B, Wang L C, *et al.* Chemical characterization of fine particulate matter in gasoline and diesel vehicle exhaust [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2019, **19**(6): 1439-1449.
- [47] Hsu C Y, Chiang H C, Lin S L, *et al.* Elemental characterization and source apportionment of PM₁₀ and PM_{2.5} in the western coastal area of central Taiwan [J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **541**: 1139-1150.
- [48] Bettinelli M, Tittarelli P. Evaluation and validation of instrumental procedures for the determination of nickel and vanadium in fuel oils [J]. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 1994, **9**(7): 805-812.
- [49] Tian Y Z, Wang J, Peng X, *et al.* Estimation of the direct and indirect impacts of fireworks on the physicochemical characteristics of atmospheric PM₁₀ and PM_{2.5} [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14**(18): 9469-9479.
- [50] Nguyen Q T, Skov H, Sørensen L L, *et al.* Source apportionment of particles at Station Nord, north east Greenland during 2008-2010 using COPREM and PMF analysis [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(1): 35-49.

CONTENTS

Spatio-temporal Evolution, Dynamic Transition, and Convergence Trend of Urban Carbon Emission Intensity in China	YANG Qing-ke, WANG Lei, ZHU Gao-li, <i>et al.</i> (1869)
Spatio-temporal Evolution and Trend Prediction of Transport Carbon Emission Efficiency	ZHENG Yan, JIANG Xue-mei, XIAO Yu-jie (1879)
Research on Carbon Emission Decoupling Factors Based on STIRPAT Model and LMDI Decomposition	ZHANG Jiang-yan (1888)
Carbon Peak Pathways of Industrial Parks Based on the LEAP Model: A Case Study of a National Development Zone in Nanjing	LI Hui-peng, LI Li, YIN Yin, <i>et al.</i> (1898)
Accounting and Analysis of Carbon Emissions in Universities: A Case Study of Beijing A University	CAO Rui, FENG Li, ZHANG Li-qiu (1907)
Synergy Effects and Driving Factors of Pollution and Carbon Emission Reduction in Manufacturing Industry in Beijing	YU Shan, HAN Yu-hua, MU Jie, <i>et al.</i> (1917)
Carbon Emissions Trading Prices and Total Factor Productivity: Evidence from China	WU Xue-ping (1926)
Analysis of Spatio-temporal Distribution Characteristics and Influencing Factors of PM _{2.5} and PM ₁₀ in Chinese Cities	LI Jiang-su, DUAN Liang-rong, ZHANG Tian-jiao (1938)
Spatial-temporal Characteristics and Influencing Factors of PM _{2.5} and Ozone in the Border Area of Jiangsu, Anhui, Shandong, and Henan from 2017 to 2021	CHEN Wei, XU Xue-zhe, LIU Wen-qing (1950)
Analysis of the Characteristics and Causes of PM _{2.5} and O ₃ Pollution in Xi'an During the Epidemic Lockdown Period	YUAN Xiao-hong, ZHANG Qiang, LI Qi, <i>et al.</i> (1963)
PM _{2.5} Chemical Composition and Spatial Variability in the Five Cities of Southern Jiangsu During Fall and Winter	FENG Wei, DING Feng, SHANG Yue, <i>et al.</i> (1975)
Source Apportionment of Fine Particles in Xianning, Hubei	LUO Yi, ZHU Kuan-guang, CHEN Pu-long, <i>et al.</i> (1983)
Spillover Benefits of Ammonia Emission Reduction in Xingtai Area to the Improvement of Atmospheric PM _{2.5} Concentration in the Beijing-Tianjin-Hebei Region	BIAN Ze-jun, WEN Chao-yu, LANG Jian-lei, <i>et al.</i> (1994)
Characteristics, Risk Assessment, and Sources of the Polluted Metallic Elements in PM _{2.5} During Winter in Liaocheng City	ZHANG Jing-qiao, ZHU Yao, CAO Ting, <i>et al.</i> (2003)
Composition Characteristics of Typical VOCs Sources in the Highland City of Lhasa	GUO Shu-zheng, YE Chun-xiang, LIN Wei-li, <i>et al.</i> (2011)
VOCs Pollution Characteristics and Health Risk Assessment in Typical Industrial Parks in Beijing: Environmental Impact of High and New Technology Industries	WANG Jie, YAO Zhen, WANG Min-yan, <i>et al.</i> (2019)
Analysis of a Typical Ozone Pollution Process in the Chengdu Plain Under the Influence of High Temperature Extremes	LEI Li-juan, ZHANG Yi, LUO Yi-na, <i>et al.</i> (2028)
Presence, Behavior, and Risk of Antiviral Drugs in the Aqueous Environment	GE Lin-ke, LI Xuan-yan, CAO Sheng-kai, <i>et al.</i> (2039)
Spatio-temporal Variation and Probability Health Risk of Heavy Metals in Surface Water of Xiaolangdi Reservoir in the Yellow River	WANG Liang, DENG Xue-jiao, WANG Xiao-lei, <i>et al.</i> (2054)
Hydrochemical Characteristics and Control Factors of Strontium Enrichment of the Duoqu River Basin in Eastern Xizang	LI Jing-jie, LIAN Sheng, WANG Ming-guo, <i>et al.</i> (2067)
Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation and Its Moisture Sources in the Inland Regions of Northwest China	ZHANG Yan-yan, XIN Cun-lin, GUO Xiao-yan, <i>et al.</i> (2080)
Recharge Source and Evolution Process of Karst Groundwater in Tai'an Urban Area Based on Hydrochemistry and Hydrogen and Oxygen Isotopes	MENG Ling-hua (2096)
Hydrochemical Characteristics and Influencing Factors of Surface Water and Groundwater in the Mountainous Area of Danjiang River Basin	ZHANG Zi-yan, FU Yong-peng, WANG Ning-tao, <i>et al.</i> (2107)
Hydrochemical Characteristics and Control Factors of Groundwater in Yuanyangchi Irrigation Area, Jinta Basin	WANG Xiao-yan, HAN Shuang-bao, ZHANG Meng-nan, <i>et al.</i> (2118)
Hydrochemical Characteristics and Health Risk Assessment of Shallow Groundwater in the Plain Zone of Deyang City	LIU Nan, CHEN Meng, GAO Dong-dong, <i>et al.</i> (2129)
Spatial and Temporal Distribution of Microplastics in the Sediments of Typical Urban River Network	XU Wan-lu, FAN Yi-fan, QIAN Xin (2142)
Construction of Nitrogen Emission Inventory at Sub-basin Scale and Analysis of Key Sources in Fuxian Lake Watershed	WANG Yan-jie, LIANG Qi-bin, WANG Yan-xia, <i>et al.</i> (2150)
Preparation of Lanthanum Crosslinked Calcium Peroxide/Sepiolite/Sodium Alginate Composite Hydrogels and Their Elimination Performance for Endogenous Phosphorus	QU Si-tong, SHAN Su-jie, WANG Chong-ming, <i>et al.</i> (2160)
Formation Mechanism, Structural Characteristics of Ultrafine Mineral Particles, and Their Environmental Effects	LIU Zhen-hai, ZHANG Zhan-hua, YUAN Yu-xin, <i>et al.</i> (2171)
Research Progress in Application of Biochar-immobilized Bacteria Composites in Environmental Remediation	SUN Shu-yu, HUANG Meng-xin, KONG Qiang, <i>et al.</i> (2185)
Effect of Microplastics on Ammonia Nitrogen Adsorption by Zeolite in Water and Its Mechanism	LIAN Jian-jun, XIE Shi-ting, WU Pei, <i>et al.</i> (2195)
Mechanism of Ultraviolet Aging Effect on the Adsorption of Ciprofloxacin by Nano-biochar	MA Feng-feng, XUE Zhi-yi, ZHAO Bao-wei (2203)
Response of Phytoplankton Communities and Environmental Factors Under the Influence of Land Use in the Wuding River Basin	GUO Shan-song, HU En, DING Yi-tong, <i>et al.</i> (2211)
Bacterial Community Diversity and Functional Gene Abundance of Culturable Bacteria in the Wetland of Poyang Lake	YU Jiang, WANG Chun, LONG Yong, <i>et al.</i> (2223)
Bacterial Community Structure and Its Relationship with Heavy Metals in Sediments of Diannong River	LIU Shuang-yu, MENG Jun-jie, QIU Xiao-cong, <i>et al.</i> (2233)
Impacts of Treated Wastewater on Bacterial and Fungal Microbial Communities in Receiving Rivers	GUO You-shun, YU Zhong, HAO Wen-bin, <i>et al.</i> (2246)
Metagenomics Reveals the Characteristics and Functions of Bacterial Community in the Advanced Wastewater Treatment Process	HU Jian-shuang, WANG Yan, ZHOU Zheng, <i>et al.</i> (2259)
Spatio-temporal Characteristics of Habitat Quality and Natural-human Driven Mechanism in Dabie Mountain Area	ZHENG Ya-ping, ZHANG Jun-hua, TIAN Hui-wen, <i>et al.</i> (2268)
Hyperspectral Inversion of Soil Organic Matter Content Based on Continuous Wavelet Transform, SHAP, and XGBoost	YE Miao, ZHU Lin, LIU Xu-dong, <i>et al.</i> (2280)
Effects of Straw Retention, Film Mulching, and Nitrogen Input on Soil Quality in Dryland Wheat Field	YE Zi-zhuang, WANG Song-yan, LU Xiao, <i>et al.</i> (2292)
Effects of Long-term Application of Organic Fertilizer on the Occurrence and Migration Characteristics of Soil Microplastics	WANG Chang-yuan, MA Xiao-chi, GUO De-jie, <i>et al.</i> (2304)
Effect of Different Soil Salinities on N ₂ O Emission: A Meta-analysis	HUANG Yi-hua, SHE Dong-li, SHI Zhen-qi, <i>et al.</i> (2313)
Assessment and Prediction of Carbon Storage Based on Land Use/Land Cover Dynamics in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area	ZHENG Hui-ling, ZHENG Hui-feng (2321)
Simulation of Temporal and Spatial Changes in Ecosystem Carbon Storage in Funiu Mountains Based on InVEST Model	ZHANG Zhe, SHI Zhen-qin, ZHU Wen-bo, <i>et al.</i> (2332)
Relationship Between Microbial Nutrient Limitation and Soil Organic Carbon Fraction During Shelterbelts Construction	XU Feng-jing, HUANG Yi-mei, HUANG Qian, <i>et al.</i> (2342)
Characteristics and Driving Forces of Organic Carbon Mineralization in Brown Soil with Long-term Straw Returning	ZHAO Yu-hang, YIN Hao-kai, HU Xue-chun, <i>et al.</i> (2353)
Effects of Winter Green Manure Mulching on Soil Aggregates, Organic Carbon, and AMF Diversity	LU Ze-rang, CHEN Jia-yan, LI Zhi-xian, <i>et al.</i> (2363)
Spatial and Temporal Distribution of Nitrogen in the Liaohe River Basin and Its Responses to Land Use and Rainfall	ZHOU Bo, LI Xiao-guang, TONG Si-chen, <i>et al.</i> (2373)
Nitrous Oxide Emissions from Ponds in Typical Agricultural Catchment with Intensive Agricultural Activity	ZHANG Xin-yue, XIAO Qi-tao, XIE Hui, <i>et al.</i> (2385)
Effects of Biochar Combined with Different Types of Nitrogen Fertilizers on Denitrification Bacteria Community in Vegetable Soil	LIU Xiao-wan, LIU Xing-ren, GAO Shang-jie, <i>et al.</i> (2394)
Investigation of Soil Microbial Characteristics During Stand Development in <i>Pinus tabulaeformis</i> Forest in Taiyue Mountain	MA Yi-shu, CAO Ya-xin, NIU Min, <i>et al.</i> (2406)
Simulation of Heavy Metal Content in Soil Based on Sparse Sample Sites	ZHANG Jia-qi, PAN Yu-chun, GAO Shi-chen, <i>et al.</i> (2417)
Identification Priority Source of Heavy Metal Pollution in Greenspace Soils Based on Source-specific Ecological and Human Health Risk Analysis in the Yellow River Custom Tourist Line of Lanzhou	LI Jun, LI Xu, LI Kai-ming, <i>et al.</i> (2428)
Heavy Metal Accumulation and Assessment of Potential Ecological Risk Caused by Soil pH Changes in Different Types of Purple Soils in Southwest China	ZHANG Hai-lin, ZHANG Yu, WANG Ding, <i>et al.</i> (2440)
Assessment and Source Analysis of Heavy Metal Pollution in Arable Land Around an Iron Ore Mining Area in Chongqing	LIAO Ze-yuan, LI Jie-qin, SHEN Zhi-jie, <i>et al.</i> (2450)
Health Risk Assessment of Heavy Metals in Farmland Soils and Crops Around Metal Mines	WEI Hong-bin, LUO Ming, XIANG Lei, <i>et al.</i> (2461)
Effect of Red Mud-based Nano Zero-valent Iron on Remediation of Polymetallic Contaminated Soil	LIU Long-yu, YANG Shi-li, ZHAO Huang-shi-yu, <i>et al.</i> (2474)
Effects of Zinc Application on Cadmium Accumulation in Alkaline Soil-Wheat Seedling Systems	ZHANG Yao, WANG Tian-qi, NIU Shuo, <i>et al.</i> (2480)