

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第38卷 第2期

Vol.38 No.2

2017

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

北京大气颗粒物和重金属铅干沉降通量及季节变化	姚利, 刘进, 潘月鹏, 田世丽, 王振波, 韦霞, 张国忠, 周保华, 王跃思 (423)
海西城市群 PM _{2.5} 中重金属元素的污染特征及健康风险评价	陈衍婷, 杜文娇, 陈进生, 徐玲玲 (429)
峨边地区大气 PM _{2.5} 中汞形态污染及其与碳组分的关系	程娜, 钱冠磊, 段炼, 赵梦飞, 修光利 (438)
泰山夏季 PM _{2.5} 中二元羧酸类 SOA 的分子组成及来源	孟静静, 侯战方, 刘晓迪, 邢继钊 (445)
南京北郊大气 BTEX 变化特征和健康风险评估	张玉欣, 安俊琳, 王健宇, 王俊秀, 师远哲, 刘静达, 梁静舒 (453)
长株潭城市群人为源 VOCs 排放清单及其对环境的影响	尤翔宇, 罗达通, 刘湛, 苏艳蓉 (461)
南京城市交通甲烷排放特征	张雪, 胡凝, 刘寿东, 王淑敏, 高韵秋, 赵佳玉, 张圳, 胡勇博, 李旭辉, 张国君 (469)
2003~2014 年东北三省气溶胶光学厚度变化分析	张宸赫, 赵天良, 王富, 徐祥德, 苏航, 程兴宏, 谭成好 (476)
基于增强回归树的城市 PM _{2.5} 日均值变化分析: 以常州为例	葛跃, 王明新, 孙向武, 齐今笛 (485)
重庆市燃煤电厂汞排放特征及排放量	张成, 张雅惠, 王永敏, 王定勇, 徐凤, 杨熹, 何秀清 (495)
几种可能来源对广东某地空气中二噁英的影响	付建平, 韩静磊, 于晓巍, 杨艳艳, 尹文华, 冯桂贤, 张素坤, 黄锦琼, 任明忠 (502)
养鸡场空气中抗性基因和条件致病菌污染特征	高敏, 仇天雷, 秦玉成, 王旭明 (510)
百年来滇池沉积物中不同形态氮分布及埋藏特征	吴亚林, 李帅东, 江俊武, 沈胤胤, 黄昌春, 黄涛, 杨浩, 余艳红, 罗玉 (517)
岩溶地下河补给的地表溪流溶解无机碳及其稳定同位素组成的时空变化	李丽, 蒲俊兵, 李建鸿, 张陶 (527)
三峡水库大宁河支流浮游植物演变过程及其驱动因素	张佳磊, 郑丙辉, 刘德富, 王丽婧, 谭纤茹 (535)
分层型水库夏季水质对极端厄尔尼诺事件的响应	邱晓鹏, 黄廷林, 曾明正, 史建超, 曹占辉 (547)
淹水-落干与季节性温度升高耦合过程对消落带沉积物氮矿化影响	林俊杰, 刘丹, 张帅, 于志国, 何立平, 余顺慧 (555)
湖泊水体中铁(III)-草酸络合物驱动有机磷光解释放磷酸根	蒋永参, 彭云霄, 刘广龙, 周易勇, 朱端卫 (563)
高效磷吸附剂 Mg/Al-LDO 的制备及除磷机制	王卫东, 郝瑞霞, 张晓娴, 万京京, 钟丽燕 (572)
改性沸石湿地脱氮除磷效能及机制	吴鹏, 陆爽君, 徐乐中, 梁奇奇, 沈耀良 (580)
几种水陆交错带植物对底质氮磷释放的抑制作用	姚程, 胡小贞, 卢少勇, 耿荣妹 (589)
模拟三峡库区消落带优势植物根系低分子量有机酸对土壤中铅的解吸动力学	何沅洁, 刘江, 江韬, 黄京晶, 成晴, 陈宏 (600)
TiO ₂ /膨润土复合材料对 Hg ²⁺ 的吸附性能研究	唐兴萍, 周雄, 张金洋, 张成, 王定勇 (608)
氨氮及 H ₂ O ₂ 对溴酸盐和消毒副产物控制的影响	王永京, 杜旭, 金萌, 冯思捷, 杨凯, 张明露, 于建伟 (616)
配水管网细菌活性影响因素	王晓丹, 赵新华 (622)
施氏矿物的化学合成及其对含 Cr(VI) 地下水吸附修复	朱立超, 刘元元, 李伟民, 牟海燕, 王婉玉, 石德智, 王涛 (629)
臭氧-混凝耦合工艺污水深度处理特性及其机制	侯瑞, 金鑫, 金鹏康, 王晓昌 (640)
单级和多级 A/O 工艺中氮的去除效果及 N ₂ O 的产生特性	郭昌梓, 张凤燕, 刘富宇, 朱超, 裴立影 (647)
有机碳源作用下厌氧氨氧化系统的脱氮效能	管勇杰, 于德爽, 李津, 齐泮晴, 魏思佳 (654)
完全混合式曝气系统运行特性及微生物群落结构解析	王硕, 徐巧, 张光生, 李激 (665)
颗粒+絮体污泥 CANON 工艺的启动与 SRT 影响研究	孙延芳, 韩晓宇, 张树军, 李星, 曹相生 (672)
游离氨调控对污泥高含固厌氧消化反应器性能的影响	戴晓虎, 何进, 严寒, 李宇, 丁月玲, 董滨, 戴翎翎 (679)
利用卷枝毛霉成球特性高效收获微藻	顾琼, 金文标, 陈远清, 郭仕达, 万超凡 (688)
零价铁对污泥高温厌氧消化过程中四环素抗性基因及第一类整合子的消减影响	魏欣, 薛顺利, 杨帆, 李响, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (697)
沈抚新城不同土地利用类型多环芳烃含量、来源及人体健康风险评价	王静, 刘明丽, 张士超, 鲁垠涛, 姚宏 (703)
河南某市驾校地表灰尘多环芳烃组成、来源与健康风险	陈轶楠, 马建华, 段海静, 魏林恒 (711)
外源微生物对植物根系修复十溴联苯醚污染底泥的强化作用	杨雷峰, 尹华, 彭辉, 李跃鹏 (721)
微生物修复油污土壤过程中氮素的变化及菌群生态效应	叶茜琼, 吴蔓莉, 陈凯丽, 李炜, 袁婧 (728)
沼泽红假单胞菌 PSB06 对辣椒根际微生物群落结构的影响	罗路云, 金德才, 左晖, 张卓, 谭新球, 张德咏, 卢向阳, 刘勇 (735)
再生水补水对河道底泥细菌群落组成与功能的影响	邱琰茗, 王广煊, 黄兴如, 郭逍宇 (743)
矿区不同植被复垦模式对土壤细菌群落结构的影响	贺龙, 李艳琴, 李彬春, 李君剑 (752)
稻田土壤固碳功能微生物群落结构和数量特征	刘琼, 魏晓梦, 吴小红, 袁红朝, 王久荣, 李裕元, 葛体达, 吴金水 (760)
不同温度制备的生物质炭对土壤有机碳及其组分的影响: 对土壤腐殖物质组成及性质的影响	赵世翔, 于小玲, 李忠徽, 杨艳, 张霞, 王旭东, 张阿凤 (769)
复合菌剂秸秆堆肥对土壤碳氮含量和酶活性的影响	聂文翰, 戚志萍, 冯海玮, 孙玉静, 支月娥, 张进忠, 张丹 (783)
秸秆/生物炭施用对关中地区小麦-玉米轮作系统净增温潜势影响的对比分析	成功, 陈静, 刘晶晶, 张阿凤, 王旭东, 冯浩, 赵英 (792)
1 株氨基高效降解菌的分离鉴定及降解特性	叶杰旭, 林彤晖, 骆煜昊, 陈东之, 陈建孟 (802)
1 株异养反硝化硫细菌的分离鉴定及代谢特性	谭文勃, 马晓丹, 黄聪, 陈川, 王爱杰 (809)
连续施用污泥堆肥土壤剖面中重金属积累迁移特征及对小麦吸收重金属的影响	孙娜, 商和平, 茹淑华, 苏德纯 (815)
施氮对小麦(Ⅵ)吸收、转运和分配的影响	陈玉鹏, 彭琴, 梁东丽, 宋卫卫, 雷凌明, 喻大松 (825)
长期暴露下纳米二氧化钛对典型淡水藻体增殖与生物转化的影响	李金丽, 王振红, 严雅萌, 黄兵, 罗专溪 (832)
不同热解温度制备的玉米芯生物炭对对硝基苯酚的吸附作用	马锋锋, 赵保卫 (837)
《环境科学》征稿简则(526) 《环境科学》征订启事(720) 信息(678, 696, 844)	

海西城市群 $PM_{2.5}$ 中重金属元素的污染特征及健康风险评价

陈衍婷^{1,2}, 杜文娇^{1,2,3}, 陈进生^{1,2*}, 徐玲玲^{1,2}

(1. 中国科学院城市环境研究所, 中国科学院城市大气环境研究卓越创新中心, 厦门 361021; 2. 中国科学院城市环境研究所, 城市环境与健康重点实验室, 厦门 361021; 3. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 采集 2010 ~ 2011 年海西城市群 $PM_{2.5}$ 样品, 用粒子激发-X 射线发射技术 (PIXE) 方法测试样品中痕量重金属 (Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As) 的浓度, 分析痕量重金属的污染特征、富集程度和来源, 并进行重金属对人体健康风险的评价。结果表明, $PM_{2.5}$ 中重金属总浓度的时空分布特征与 $PM_{2.5}$ 的不一致, 这与 $PM_{2.5}$ 的某些主要贡献源 (如建筑尘和扬尘等) 并非痕量重金属的贡献源有关。 $PM_{2.5}$ 中 Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As 等重金属的 EF 值均高于 10, 呈明显的人为源富集现象。主成分-多元线性回归 (PCA-MLR) 解析结果显示, $PM_{2.5}$ 中痕量重金属主要有 3 种来源, 即燃煤和机动车尾气 (70.59%)、混合源 (燃煤、燃油和冶炼行业, 17.55%) 以及其他工业源 (11.86%)。健康风险评价结果显示, $PM_{2.5}$ 中致癌重金属 (Ni、Cr、As) 的风险值高于非致癌重金属 (Zn、Cu、Pb、Mn) 风险值, 但均低于一般可接受风险水平 (10^{-6}), 说明海西城市群大气环境 $PM_{2.5}$ 中重金属未对人体健康造成危害。

关键词: 海西城市群; 痕量重金属元素; 富集因子; 主成分-多元线性回归 (PCA-MLR); 人体健康风险评价

中图分类号: X513; X820.4 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2017)02-0429-09 DOI: 10.13227/j.hjks.201606077

Pollution Characteristics of Heavy Metals in $PM_{2.5}$ and Their Human Health Risks Among the Coastal City Group Along Western Taiwan Straits Region, China

CHEN Yan-ting^{1,2}, DU Wen-jiao^{1,2,3}, CHEN Jin-sheng^{1,2*}, XU Ling-ling^{1,2}

(1. Center for Excellence in Urban Atmospheric Environment, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China; 2. Key Laboratory of Urban Environment and Health, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China; 3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: $PM_{2.5}$ samples were collected from 11 sampling sites in the coastal city group along western Taiwan Straits region, China, and these heavy metal elements (Zn, Cu, Pb, Ni, Cr, As) were detected using particle-induced X-ray emission (PIXE) method. The pollution characteristics, enrichment factors and source apportionment of heavy metals in $PM_{2.5}$ were analyzed, and furthermore, their human health risks were determined. The result showed concentration distribution was obviously different between $PM_{2.5}$ and heavy metals in the city group, for the main sources (e.g. construction dust and ground dust) for $PM_{2.5}$ were not the main contribution to these heavy metals. The enrichment factors of Zn, Cu, Pb, Mn, Ni, Cr, As exceeded 10, which suggested these metals were enriched and significantly impacted by anthropogenic pollution. Three main groups of heavy metals in $PM_{2.5}$ were identified by principal component analysis (PCA-MLR), such as coal combustion and traffic emissions (70.59%), multiple sources (coal and oil combustion, pyrometallurgical process, 17.55%) and other industry (11.86%). The risk levels for carcinogenic heavy metals (Ni, Cr, As) and non-carcinogenic heavy metals (Zn, Cu, Pb, Mn) were lower than the average level of risk acceptance (10^{-6}), which suggested these heavy metals did not cause harm to human health in these cities.

Key words: western Taiwan Straits region; trace heavy metal elements; enrichment factor; principal component analysis (PCA-MLR); risk assessment for human health

随着我国雾-霾事件的频繁发生, $PM_{2.5}$ 已成为大气复合型污染最重要的特征污染物, 并且引起了国内外学者的重视。 $PM_{2.5}$ 不仅影响大气能见度^[1, 2], 而且严重威胁到人类的健康, 尤其是 $PM_{2.5}$ 具有病理学和毒理性的痕量重金属元素, 如 Pb、Mn、Ni、Cr、Cd、As、Hg 等。有研究表明, $PM_{2.5}$ 中的痕量重金属可引起呼吸系统疾病^[3], 并且对暴露

人群有致癌风险^[4]。因此, $PM_{2.5}$ 中痕量重金属的相关研究引起越来越多的重视, 我国在《环境空气质量标准 GB 3095-2012》明确规定 Pb 的标准浓度限

收稿日期: 2016-06-13; 修订日期: 2016-09-09

基金项目: 国家自然科学基金委员会-福建省人民政府促进海峡两岸科技合作联合基金项目 (U1405235)

作者简介: 陈衍婷 (1985 ~), 女, 硕士, 主要研究方向为大气环境化学, E-mail: ytchen@iue.ac.cn

* 通信作者, E-mail: jschen@iue.ac.cn

值,而 Cd、Hg、As 等金属元素仅有参考限值. 国内 PM_{2.5}中痕量有毒重金属的相关研究已广泛展开,但主要集中在污染特征和来源解析^[5, 9~13]. 虽然对环境中空气中 PM_{2.5}中重金属人体健康风险的相关评价在天津、上海和南京等地也有一定的基础^[5~8],但缺乏系统性地区域研究. 随着特大城市群的经济持续发展、城市规模迅速扩张,城市群效应越来越明显,使得目前国内空气污染表现出显著的复杂性和区域性特征^[14~16]. 因此,全面系统性地开展我国区域性 PM_{2.5}中痕量有毒有害重金属的污染特征以及不同人群暴露水平的健康风险水平评价具有一定的迫切性和重要意义.

本文以海峡西岸经济区(“海西”)主要的 6 个沿海城市为研究对象,在 Xu 等^[17]对海西城市群 PM_{2.5}中元素组分进行全面系统性研究分析的基础上,着重分析研究海西城市群 PM_{2.5}中 Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As 等 7 种痕量有毒有害重金属的污染分布特征,并结合富集因子法和主成分-多元线性回归(PCA-MLR)模型解析这些重金属的来源,以及利用 EPA 健康风险模型评价重金属通过呼吸系统对不同人群(成年男性、成年女性和儿童)健康的影响. 本研究通过了解海西城市群细颗粒中有毒有害重金属对人体健康的影响,以期对海西城市群大气

重金属风险防控提供理论依据.

1 材料与方法

1.1 采样点

以海峡西岸主要城市群,包括 6 个主要沿海城市 11 个采样点为研究对象,从北往南采集宁德蕉城、福州晋安、福州福清、福州平潭、莆田荔城、莆田秀屿、泉州丰泽、泉州石狮、厦门集美、厦门思明和漳州龙文大气颗粒物 PM_{2.5}样品(各采样点具体信息见表 1).

采样时间为 2010 年秋季、2010 年冬季、2011 年春季和 2011 年夏季 4 个季节分别连续采集 10 d,各站点同时采样,以 24 h 为一个周期进行气溶胶颗粒物的采集. 采用中流量采样仪(TH-150C 型,武汉天虹公司,中国),流速为 100 L·min⁻¹. 采样期间每天上午 09:00 点至次日上午 08:00 点进行大气颗粒物样品采集. 采样滤膜为聚丙烯纤维滤膜(PPFs, Φ90 mm, Whatma 公司,英国). 采样前后滤膜放入恒温恒湿箱中平衡 24 h [温度(25 ± 2)℃,湿度(52 ± 2)%],采用电子分析天平(T-114 型, Sartorius 公司,德国)称重获得大气颗粒物重量,进而计算大气颗粒物浓度. 采样后的滤膜用铝箔纸封装后放入冰箱低温保存以待进一步分析.

表 1 采样站点情况
Table 1 Specific description of sampling sites

城市	区域	采样站点	经度/(°)	纬度/(°)	站点描述
宁德市	蕉城区	宁德市监测站	119.54	26.66	城市中心位置,属商业居民混住区
	晋安区	紫阳监测站	119.32	26.08	城市中心位置,属交通居民区,测点背面约 30 m 为主干道福马路,受道路及附近紫阳立交桥影响较大
福州市	福清市	福清市监测站	119.38	25.73	城市中心位置,属商业居民混住区
	平潭县	平潭三十六角湖	119.76	25.48	平潭县三十六角湖水库管理站,周围为水库水面及低矮坡地
莆田市	荔城区	莆田市监测站	119.00	25.46	城市中心位置,属商业居民混住区,周围为城市中心广场及市政干道
	秀屿区	莆田秀屿区政府	119.10	25.32	商业居民混住区,离海边较近
泉州市	丰泽区	泉州市环保局	118.60	24.90	泉州市环保局楼顶,属商业居民混住区
	石狮市	石光华侨中学	118.66	24.73	离海边较近,常年风力在 5~8 级,周围较开阔
厦门市	集美区	中科院城环所	118.06	24.61	周围小区绿地和杏林湾水面,测点东北侧约 30 m 为主干道海翔大道和集美大道
	思明区	瑞景小学	118.15	24.48	周围为商住区,测点北侧约 100 m 为城市主干道莲前路
漳州市	龙文区	蓝田村委会	117.72	24.51	周围为工业商住混合区,附近可见冒烟的烟囱,周围大量平房,对面为蓝田工业园,交通量大,测点北侧约 30 m 为城市主干道迎宾大道

1.2 元素成分分析

采用粒子激发-X 射线发射技术 (particle induced X-ray emission, PIXE) 测试 PM_{2.5}中各元素的浓度. 将样品架放置于与加速器相连的 PIXE 分析靶室内,用分子泵将加速器和靶室系统抽至高真空.

加速器将加速到能量为 2.5 MeV 的质子轰击样品,使样品中元素的原子产生内壳电离,发射特征 X 射线. 用 AXIL 程序对 X 射线能谱进行离线处理,获取样品中各种元素的特征 X 射线峰面积计数. 通过与在相同实验条件下,测量由美国微物质公司

(Micromatter)生产的标准样品获得的特征 X 射线峰面积进行比较,得到了 Mg、Al、Si、P、S、Cl、K、Ca、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Ni、Cu、Zn、As、Se、Br、Rb、Sr、Pb 等 22 个元素的浓度值. 22 种元素的仪器检测限范围是 $3.0 \times 10^{-4} \sim 5.4 \times 10^{-2} \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$. 本文只选取 Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As 等 7 种有毒痕量重金属元素进行分析讨论.

1.3 富集因子评价方法

元素的富集因子(EF)可用于评价人为源和自然源的影响以及人为源对环境的贡献程度^[18],EF 被定义为:

$$EF_x = \frac{(c_x/c_R)_{\text{air}}}{(c_x/c_R)_{\text{crust}}} \quad (1)$$

式中, c_x 为所研究元素的浓度; c_R 为参考元素的浓度. 下标 air 和 crust 分别表示元素在大气颗粒物 PM_{2.5}和地壳中的浓度. 本研究以 Al 为参考元素,地壳中元素的浓度参考中国东部大陆地壳中的地壳化学元素丰度^[19]. 若元素富集系数 $EF < 1$,则说明该元素以自然源为主;若大气颗粒物中元素富集系数 $EF > 10$,即认定该元素以人为源为主^[5, 20, 21].

1.4 主成分-多元线性回归

采用 SPSS 19.0 统计软件对 PM_{2.5}中的重金属成分与来源进行主成分-多元线性回归(PCA-MLR)分析. 主成分分析是利用“降维”的方法,将原有多个变量线性变换后,转化为数目较少的新变量(主成分). 依据主成分在重金属各组分上的载荷,推断该主成分所反映的重金属元素污染来源. 而多元线性回归的目的是在源识别的基础上,通过最小二乘法多元线性回归,进一步确定不同污染源的贡献率^[22~25].

1.5 健康风险评价模型

采用美国环保署 USEPA 推荐的健康风险评价模型,根据实际情况对模型中的部分参数进行了修改. 利用修改后的评价模型对海西城市群 PM_{2.5}中 Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As 等 7 种重金属元素通过呼吸途径进入人体(成年男性、成年女性和儿童青少年)的健康风险进行评价. 根据 EPA 综合风险信息数据库(IRIS)和国际癌症研究机构(IARC)的相关研究成果,污染物可以分为致癌物质和非致癌物质. 本文研究的 Zn、Cu、Pb、Mn 属于非致癌重金属,而 Ni、Cr 和 As 属于致癌重金属.

1.5.1 非致癌重金属风险评价计算

非致癌重金属暴露量计算公式如下.

$$ADD = (c \times IR \times ED) / (BW \times AT_{ADD}) \quad (2)$$

式中,ADD 为非致癌物质日均暴露剂量

$[\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}]$, c 为污染物的浓度 $(\text{mg} \cdot \text{m}^{-3})$, IR 为呼吸速率 $(\text{m}^3 \cdot \text{d}^{-1})$, ED 为暴露持续时间(d), BW 为体重(kg), AT_{ADD} 为非致癌重金属平均暴露时间(d).

呼吸速率 IR 、暴露持续时间 ED 和平均暴露时间 AT 均采用美国环保局的推荐数值. 成年男性、成年女性和儿童青少年的呼吸速率 IR 分别为 15.2 、 11.3 和 $8.7 \text{ m}^3 \cdot \text{d}^{-1}$; 暴露持续时间 ED 分别为 30×365 、 30×365 和 18×365 ; 非致癌重金属平均暴露时间 AT_{ADD} 为 30×365 、 30×365 和 18×365 . 考虑中国人群体质(体重)与西方人群的差异,本文的体重 BW 数据采用全国平均值:成年男性(20~59岁)为 69 kg,成年女性(20~59岁)为 57 kg,儿童青少年(7~19岁)为 44 kg^[26].

非致癌重金属风险评价计算公式如下.

$$R = (ADD \times 10^{-6}) / (RfD \times 75.76) \quad (3)$$

式中, R 为人群年均超额危险度,无量纲; RfD 为人群寿命的参考剂量 $[\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}]$,非致癌重金属 Zn、Cu、Pb、Mn 的 RfD 分别为 1.0×10^{-2} 、 2.0×10^{-3} 、 4.3×10^{-4} 、 $3.0 \times 10^{-4} \text{ mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$; 75.76 为福建省 2010 年平均期望寿命(福建统计年鉴,2015).

1.5.2 致癌重金属风险评价计算

致癌重金属暴露量率计算公式如下.

$$LADD = (c \times IR \times ED) / (BW \times AT_{LADD}) \quad (4)$$

式中, $LADD$ 为预期人群致癌物质终生暴露剂量 $[\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}]$, c 为污染物的浓度 $(\text{mg} \cdot \text{m}^{-3})$, IR 为呼吸速率 $(\text{m}^3 \cdot \text{d}^{-1})$, ED 为暴露持续时间(d), BW 为体重(kg), AT_{LADD} 为致癌重金属终生暴露时间(d). 致癌重金属平均暴露时间 AT_{LADD} 均为 70×365 . 致癌重金属的 IR 、 ED 、 BW 等参数取值同非致癌重金属.

致癌重金属风险评价计算公式如下.

$$R = [1 - \exp(-LADD/SF)] / 75.76 \quad (5)$$

式中, R 为人群年均超额危险度,无量纲; SF 为致癌物质的致癌强度系数 $[\text{mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}]$, Cr、Ni、As 的 SF 分别为 56.00、1.19 和 $20.70 \text{ mg} \cdot (\text{kg} \cdot \text{d})^{-1}$.

2 结果与讨论

2.1 海西城市群 PM_{2.5}质量浓度分布特征

图 1 为海西城市群 PM_{2.5}质量浓度分布. 从中可知,海西城市群 PM_{2.5}年均值为 $(57.21 \pm 21.41) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,高于 2016 年实施的国家空气质量二级标准(年均值 $35 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$),说明该地区 PM_{2.5}受到污

染. 但海西区域 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度值在全国范围处于中等污染水平, 其浓度值低于京津冀区域 $\text{PM}_{2.5}$ 的浓度 (北京 $127 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 天津 $156 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 石家庄 $196 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[27] 和长三角区域主要城市 (上海 $94.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 南京 $122.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[28], 而高于珠三角区域主要城市 (如深圳 $54.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 珠海 $45.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)^[29]. 海西城市群 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度季节性变化明显, 表现为春季 $[(75.38 \pm 33.17) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 冬季 $[(72.86 \pm 25.97) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 秋季 $[(52.55 \pm 29.70) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 夏季 $[(28.24 \pm 22.74) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$. 春季由于风速大, 大气活跃, 大气颗粒物受自然影响较大, 如沙尘、扬尘和浮尘等天气现象的影响, 导致海西城市群 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的增加; 冬季大气条件稳定, 逆温现象频繁, 不利于污染物的扩散, 此外, 冬季海峡西岸城市群受到来自长三角甚至更远北方污染气团的贡献, 带来大量的气溶胶颗粒物, 导致 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度较高; 海西城市群夏季受到来自海洋洁净气团不断地稀释大气污染物, 再加上夏季雨水较多, 雨水的冲刷作用也有利于颗粒物的湿沉降, 因此表现为 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的低值.

$\text{PM}_{2.5}$ 浓度分布表现出明显的区域性特征, 11 个采样点 $\text{PM}_{2.5}$ 年均值从大到小依次为: 漳州龙文 $[(100.82 \pm 18.83) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 厦门集美 $[(70.91 \pm$

$16.79) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 宁德蕉城 $[(60.86 \pm 8.06) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 福州晋安 $[(59.14 \pm 11.92) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 莆田秀屿 $[(57.12 \pm 14.21) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 厦门思明 $[(51.23 \pm 11.26) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 泉州丰泽 $[(48.05 \pm 17.86) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 泉州石狮 $[(47.48 \pm 9.00) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 福州福清 $[(45.58 \pm 11.97) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 莆田荔城 $[(44.09 \pm 9.09) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}] >$ 福州平潭 $[(37.76 \pm 10.64) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$. $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度 4 个季节最低值均出现在福州平潭, 这与平潭采样点所处的地理位置有直接的关系, 该采样点位于平潭三十六角湖, 周围均为水面或者矮坡, 无工业源及人为活动, 因此 $\text{PM}_{2.5}$ 本地源的贡献微乎其微. 此外, 该采样点所处地理位置视野开阔, 且常年风速较大, 有利于污染物的扩散. $\text{PM}_{2.5}$ 浓度 4 个季节最高值均出现在漳州龙文, 且最高值出现在春季, $\text{PM}_{2.5}$ 浓度高达 $(122.53 \pm 19.41) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 这与漳州龙文采样点位于工业商住混合区, 受交通源和人为源 $\text{PM}_{2.5}$ 的污染贡献较大有关. 其次为厦门集美, 该采样点虽紧邻杏林湾, 有海风的稀释作用, 但受到集美新城建设的影响, $\text{PM}_{2.5}$ 浓度值较高, 春季 $\text{PM}_{2.5}$ 为 $(92.39 \pm 18.63) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 冬季为 $(91.00 \pm 22.12) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 因此工业化和城市化进程, 以及地理特征是影响 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的关键因素.

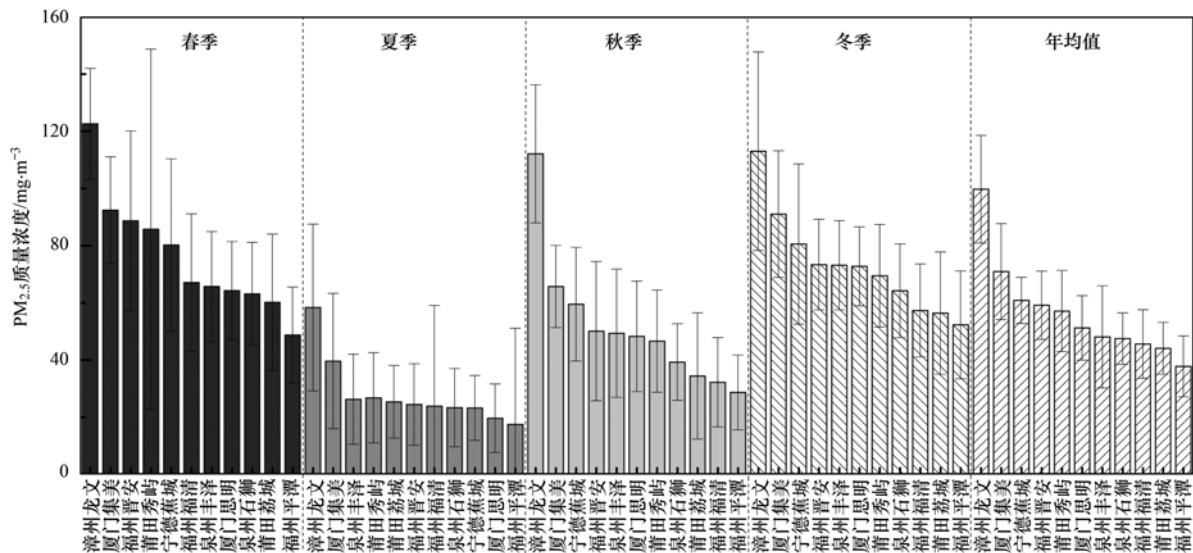


图1 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度分布

Fig. 1 Concentration distribution of $\text{PM}_{2.5}$

2.2 海西城市群 $\text{PM}_{2.5}$ 中重金属分布特征

图2为海西城市群大气 $\text{PM}_{2.5}$ 重金属浓度分布. 从中可知, 海西城市群 $\text{PM}_{2.5}$ 中 7 种重金属元素浓度平均值大小表现为 $\text{Zn}[(470.52 \pm 285.69) \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}] >$ $\text{Pb}[(108.85 \pm 46.71) \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}] >$ $\text{Cu}[(82.62 \pm$

$69.72) \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}] >$ $\text{Mn}[(50.71 \pm 20.43) \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}] >$ $\text{As}[(20.05 \pm 10.33) \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}] >$ $\text{Cr}[(16.89 \pm 8.35) \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}] >$ $\text{Ni}[(14.43 \pm 9.64) \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}]$. 海西城市群 $\text{PM}_{2.5}$ 中 Zn 、 Cu 、 Pb 、 Mn 、 Ni 、 Cr 、 As 重金属元素浓度范围为 $61.93 \sim 1764.36 \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$, 仅占

$PM_{2.5}$ 的 0.35% ~ 5.16%。海西城市群 $PM_{2.5}$ 中 Pb 浓度范围为 13.65 (福州平潭) ~ 238.68 $ng \cdot m^{-3}$ (漳州龙文), 与《环境空气质量标准 GB 3095-2012》中规定 Pb 一级和二级标准限值相比较, 可知海西城市群 $PM_{2.5}$ 中 Pb 浓度未超标, 但漳州龙文采样点 Pb 的来源应引起重视。

海西城市群 $PM_{2.5}$ 中 Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As 重金属元素浓度呈明显的季节性分布, 总体表现为秋季 $[(905.14 \pm 538.04) ng \cdot m^{-3}] >$ 冬季 $[(880.10 \pm 431.33) ng \cdot m^{-3}] >$ 春季 $[(727.08 \pm 496.01) ng \cdot m^{-3}] >$ 夏季 $[(548.29 \pm 534.46) ng \cdot m^{-3}]$ 。应注意, 海西城市群痕量重金属浓度时空分布特征与 $PM_{2.5}$ 的不一致, 如厦门集美 $PM_{2.5}$ 浓度仅次于漳州龙文, 但其痕量重金属浓度却相对较低。这与厦门集美采样点 $PM_{2.5}$ 的贡献主要来自于建筑尘和扬尘有直接的关系, 建筑尘和扬尘主要贡献的重金属元素为 Ca、Si、Al、Ti 等^[17, 30]。夏季海西城市群受到东南季风的影响, 有利于污染物的扩散, 因此夏季重金属元素含量表现最低值, 尤其平潭的重金属元素总含量仅为 61.93 $ng \cdot m^{-3}$, 而夏季 $PM_{2.5}$ 重金属元素最高值漳州龙文 (1475.70 $ng \cdot m^{-3}$) 是其 23.83 倍。这首先与其采样点的地理位置有关, 福州平潭采样点周边无重污染的工业且人为活动较为稀少, 无明显 Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As 重金属排放源; 而漳州龙文是新兴的商贸中心和重要的物质集散地, 重要的港口地区和工业区,

人为活动频繁, 因此即使是夏季, 其 $PM_{2.5}$ 中重金属元素含量仍然处于较高水平。

海西城市群 $PM_{2.5}$ 中重金属的季节性变化规律不一致, 其中 Zn、Pb、Mn、As 总体表现为秋、冬高, 春、夏低的特征。导致海西城市群秋冬季节 Zn、Pb、Mn、As 等重金属浓度高的主要原因有: 首先由于秋冬季节本地污染物排放量增大, 其次秋冬季节大气层较为稳定, 不利于污染物的扩散, 同时来自于长三角地区或者更北方城市远距离输送的污染气团的贡献。Cu 则表现为秋季 > 夏季 > 冬季 > 春季, 夏季 $PM_{2.5}$ 中 Cu 的高值与漳州龙文 (307.04 $ng \cdot m^{-3}$, 年均值 3.72 倍)、莆田荔城 (117.69 $ng \cdot m^{-3}$, 为年均值 1.42 倍) 和泉州石狮 (156.03 $ng \cdot m^{-3}$, 年均值 1.89 倍) 的贡献有直接关系, 说明这些城市受到来自 Cu 污染源的影响。Ni 表现为冬季较高值 (28.84 $ng \cdot m^{-3}$), 夏季 (12.10 $ng \cdot m^{-3}$)、秋季 (8.53 $ng \cdot m^{-3}$)、春季 (8.25 $ng \cdot m^{-3}$) 近似的特征, 而 Cr 季节性变化特征不明显。总体上, 海西城市群 $PM_{2.5}$ 中 Zn、Pb、Mn、Ni、Cr、As 高浓度均出现在宁德蕉城、漳州龙文和福州晋安, 而 Cu 的高浓度则出现在漳州龙文、泉州石狮和莆田荔城。漳州龙文、莆田荔城和泉州石狮地处经济开发区, 快速城市化进程和工业化是其重金属元素浓度高的主要原因, 而福州晋安主要是由于地处中心城区, 三面环山, 大气稳定度较高, 不利于污染物的扩散, 因此其重金属元素浓度也较高。

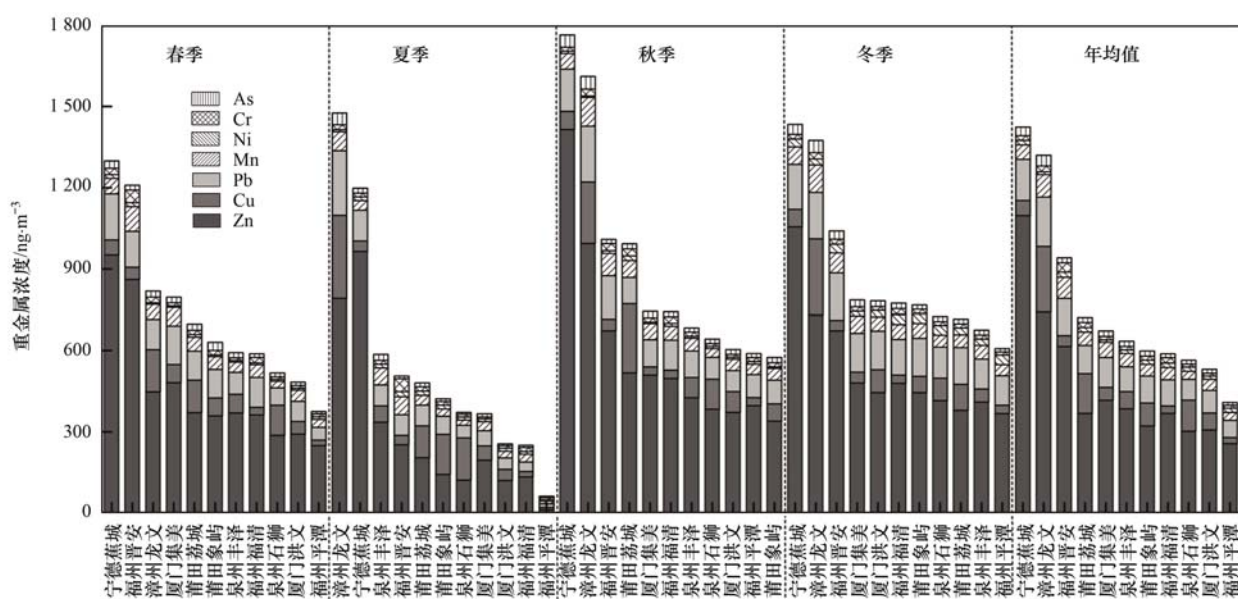


图2 $PM_{2.5}$ 中痕量重金属浓度分布

Fig. 2 Distribution of trace heavy metals in $PM_{2.5}$

2.3 海西城市群 $PM_{2.5}$ 中重金属的富集因子

图3为海西城市群 $PM_{2.5}$ 中痕量重金属 EF 季节性分布. 从中可知, 海西城市群 $PM_{2.5}$ 中有毒痕量重金属 Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As 的富集因子 EF 均高于 10 (分别为 9 433.76、4 776.74、11 819.73、88.33、1 066.24、334.03、12 312.91), 说明这些重金属均不同程度受到人为源的贡献.

海西城市群 $PM_{2.5}$ 中痕量重金属表现为春季富集因子 EF 最低 (然而 $PM_{2.5}$ 最高), 冬季最高. 这首先与春季多沙尘贡献导致 $PM_{2.5}$ 浓度较高, 沙尘贡献的主要为 Ca、Si、Mg 等元素^[17, 30]; 冬季污染源排放增多且天气形势不利于污染物的扩散, 导致痕量重金属的富集 (富集程度较低的 Mn, 冬季的 EF 值达 175.08). 此外, 海西城市群 $PM_{2.5}$ 中作为参比元素 Al 在春季浓度均值为 (408.56 ± 290.07)

$ng \cdot m^{-3}$, 冬季为 $(107.27 \pm 202.20) ng \cdot m^{-3}$, 春季 Al 浓度为冬季的 3.81 倍, 因此春季 $PM_{2.5}$ 中痕量重金属的 EF 表现为较低值.

厦门集美 $PM_{2.5}$ 和痕量重金属浓度均高于厦门洪文采样点, 但集美的元素富集因子 EF 却低于厦门洪文, 这与两个采样点城市化进程的差异有直接关系. 从城市化进程看, 厦门集美为发展初期, 大范围的集美新城建设, 导致建筑尘和扬尘对 $PM_{2.5}$ 的贡献明显增加. Xu 等^[17] 研究表明, 由于城市建设的贡献, 厦门集美 $PM_{2.5}$ 中 Ca 元素的浓度为集美洪文的 2 倍. 鉴于建筑尘以及扬尘对 $PM_{2.5}$ 中参比元素 Al 的贡献, 而对 Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As 等重金属元素的贡献较小, 因此厦门集美 $PM_{2.5}$ 中痕量重金属的富集因子低于集美洪文.

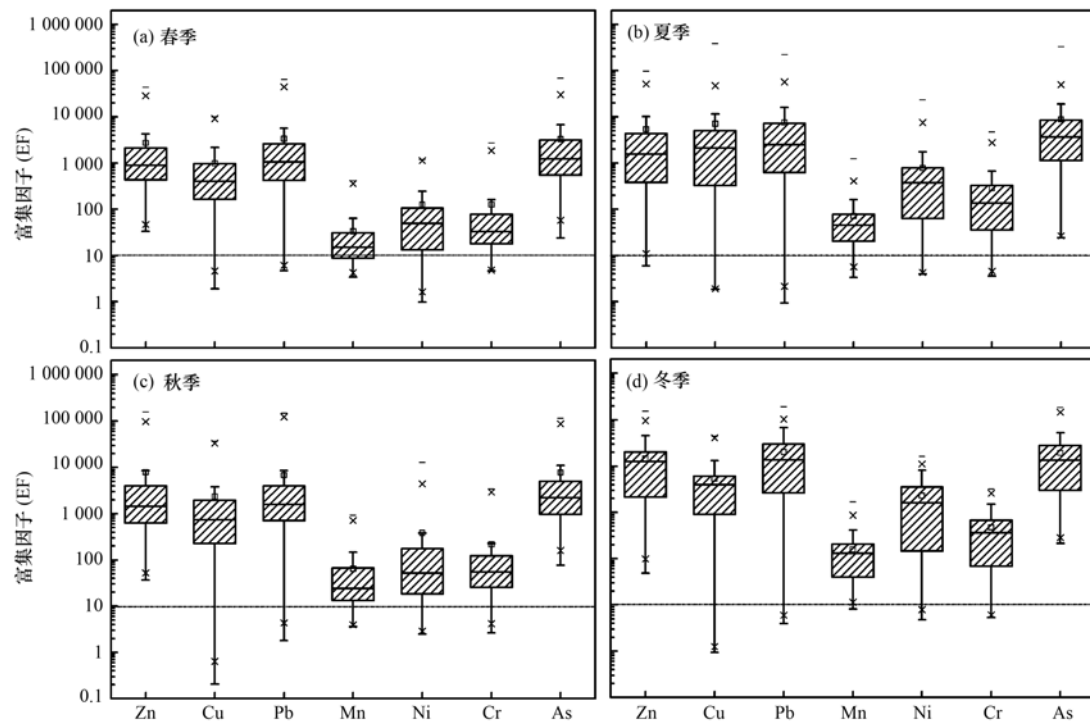


图3 $PM_{2.5}$ 中痕量重金属 EF 季节性分布

Fig. 3 Seasonal distribution of EF of trace heavy metals in $PM_{2.5}$

2.4 海西城市群 $PM_{2.5}$ 中痕量重金属 PCA-MLR 模型

表2为海西城市群 $PM_{2.5}$ 中痕量重金属 PCA-MLR 模型分析结果. 从中可知, 通过 PCA 模型可以提取出 3 个因子与海西城市群 $PM_{2.5}$ 中痕量重金属污染源关系密切. 3 个主要因子的因子载荷累积方差贡献率为 79.36%, 能反映数据表中的绝大部分信息.

主成分 1 中 Zn、Pb、As 和 Mn 载荷系数较高

(>0.724), 其方差贡献率为 52.25%. Zn、Pb、As、Mn 均可作为燃煤的标识物^[31], 此外, Zn、Pb 和 As 也是机动车尾气的重要标识物^[31], 因此因子 1 可认为是燃煤和机动车尾气的混合贡献, 贡献率为 70.59%. 主成分 2 中 Ni 和 Cr 的载荷系数分别为 0.851 和 0.652, 方差贡献率为 16.09%. Ni 和 Cr 同时是机动车、燃煤、燃油^[21] 以及有色金属冶炼^[17] 的标识物, 因此主成分 2 可认为是混合源的贡献, 贡

献率为 17.55%。主成分 3 中 Cu 的载荷系数较高 (为 0.921), 其方差贡献率为 11.02%。Cu 是其他工业排放的主要标识物^[5], 因此主成分 3 可认为是其他工业源的贡献, 贡献率为 11.86%。

表 2 PM_{2.5} 中痕量重金属 PCA-MLR 结果¹⁾
Table 2 Results of PCA-MLR of trace heavy metals in PM_{2.5}

元素	F ₁	F ₂	F ₃
Zn	0.917	0.103	-0.003
Pb	0.843	0.151	0.154
As	0.821	0.013	0.356
Mn	0.724	0.398	0.398
Ni	0.010	0.851	-0.171
Cr	0.360	0.652	0.333
Cu	0.192	-0.038	0.921
来源	燃煤和机动车	混合源	其他工业排放
方差贡献/%	52.25	16.09	11.02
污染源贡献率/%	70.59	17.55	11.86

1) 表中黑体字为影响较大的因子载荷 (>0.65)

2.5 海西城市群 PM_{2.5} 中重金属健康风险评价

图 4 为海西城市群 PM_{2.5} 中痕量重金属健康风险评价结果。本文所用评价方法主要是针对痕量重金属通过呼吸对人体健康危害的风险水平。由图 4 可知, 海西城市群致癌重金属 (Ni、Cr、As) 风险值范围为 $5.42 \times 10^{-11} \sim 1.30 \times 10^{-7}$, 非致癌重金属 (Zn、Cu、Pb、Mn) 的风险值范围为 $2.30 \times 10^{-13} \sim$

7.12×10^{-10} , 均低于一般可接受的风险水平 1×10^{-6} ^[5], 且致癌重金属的风险值高于非致癌重金属的风险值。与上海研究结果^[7]相比较, 上海市儿童 Pb 的风险值较高, 比海西城市群高出 1 个数量级; 而致癌重金属 Cr, 上海市则比海西城市群高出 2 个数量级。海西城市群 PM_{2.5} 中致癌重金属风险水平与天津市^[5]处于同一数量级, 风险值近似; 而非致癌重金属风险值却比天津市风险值低 1~2 数量级。海西城市群 PM_{2.5} 非致癌重金属风险值表现为成年男性 > 成年女性 ≈ 儿童, 而致癌重金属的风险值则表现为男性 > 成年女性 > 儿童。由于成年男性户外暴露时间以及呼吸速率普遍高于成年女性以及儿童, 因此其通过重金属通过呼吸途径在成年男性中累计水平相对更高。

海西城市 PM_{2.5} 中重金属风险值空间分布与各站点点城市化和工业化程度有直接关系, 如位于平潭采样点城市化和工业化进程最低, 该采样点 PM_{2.5} 中重金属的风险值均显示为最低值。而 PM_{2.5} 中重金属风险值较高的采样点分别为漳州龙文、宁德蕉城和福州晋安。漳州龙文工业化进程较高, 因此该站点 PM_{2.5} 中重金属的风险值较高, 对人体健康影响更大。宁德蕉城和福州晋安采样点均位于城市中心位置, 受到人为源以及交通源的影响, 因此 PM_{2.5} 中重金属的风险值相对较高。

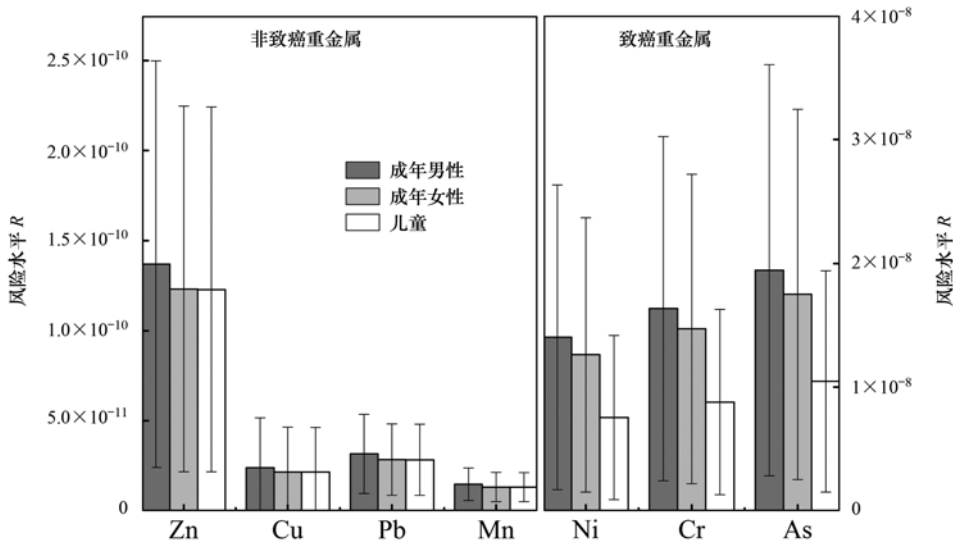


图 4 PM_{2.5} 中痕量重金属健康风险评价
Fig. 4 Risk associated with trace heavy metals in PM_{2.5}

3 结论

(1) 海西城市群 PM_{2.5} 中 Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As 重金属元素总和范围为 61.93 ~ 1 764.36

ng·m⁻³, 仅占 PM_{2.5} 的 0.35% ~ 5.16%。海西城市群 PM_{2.5} 中 Pb 浓度范围为 13.65 (福州平潭) ~ 238.68 ng·m⁻³ (漳州龙文), 均未超标。海西城市群痕量重金属浓度时空分布特征与 PM_{2.5} 的不一致, 这与

PM_{2.5}的某些贡献源(如建筑尘和扬尘等,主要贡献Ca、Si、Al、Ti等重金属元素)并非痕量重金属的主要贡献源有关。

(2) 海西城市群PM_{2.5}中有毒痕量重金属Zn、Cu、Pb、Mn、Ni、Cr、As的富集因子EF均高于10,说明这些重金属均不同程度受到了人为源的贡献。

(3) 主成分-多元线性回归(PCA-MLR)解析出PM_{2.5}中7种痕量重金属主要有3种来源,即燃煤和机动车尾气、混合源以及其他工业源,贡献率分别为70.59%、17.55%和11.86%。

(4) 海西城市群致癌重金属(Ni、Cr、As)和非致癌重金属(Zn、Cu、Pb、Mn)的风险值均低于一般可接受的健康风险水平 1×10^{-6} 。并且,整体上致癌重金属的风险值均高于非致癌重金属的风险值。成年男性的重金属风险值大于成年女性和儿童。海西城市PM_{2.5}中重金属风险值空间分布与各站点点城市化和工业化程度有直接关系,如工业化程度高的漳州龙文、城市化程度高的宁德蕉城和福州晋安采样点PM_{2.5}中重金属风险水平均相对较高。

参考文献:

- [1] Deng J J, Zhang Y R, Hong Y W, *et al.* Optical properties of PM_{2.5} and the impacts of chemical compositions in the coastal city Xiamen in China[J]. *Science of the Total Environment*, 2016, **557-558**: 665-675.
- [2] 杨毅红, 瞿群, 李随心, 等. 夏季珠江三角洲地区PM_{2.5}化学组分特征及其对大气能见度的影响[J]. *环境科学*, 2015, **36**(8): 2758-2767.
Yang Y H, Qu Q, Liu S X, *et al.* Chemical compositions in PM_{2.5} and its impact on visibility in summer in Pearl River Delta, China[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(8): 2758-2767.
- [3] 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.
- [4] 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.
- [5] Chen P F, Bi X H, Zhang J Q, *et al.* Assessment of heavy metal pollution characteristics and human health risk of exposure to ambient PM_{2.5} in Tianjin, China[J]. *Particuology*, 2015, **20**: 104-109.
- [6] Hu X, Zhang Y, Ding Z H, *et al.* Bioaccessibility and health risk of arsenic and heavy metals (Cd, Co, Cr, Cu, Ni, Pb, Zn and Mn) in TSP and PM_{2.5} in Nanjing, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **57**: 146-152.
- [7] 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.
- [8] 张恒, 周自强, 赵海燕, 等. 青奥会前后南京PM_{2.5}重金属污染水平与健康风险评估[J]. *环境科学*, 2016, **37**(1): 28-34.
Zhang H, Zhou Z Q, Zhao H Y, *et al.* Pollution level and health risk assessment of heavy metals in atmospheric PM_{2.5} in Nanjing before and after the Youth Olympic Games[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(1): 28-34.
- [9] Sun Y Y, Hu X, Wu J C, *et al.* Fractionation and health risks of atmospheric particle-bound As and heavy metals in summer and winter[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **493**: 487-494.
- [10] Zhai Y B, Liu X T, Chen H G, *et al.* Source identification and potential ecological risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} from Changsha[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **493**: 109-115.
- [11] 陶俊, 张仁建, 段菁春, 等. 北京城区PM_{2.5}中致癌重金属季节变化特征及其来源分析[J]. *环境科学*, 2014, **35**(2): 411-417.
Tao J, Zhang R J, Duan J C, *et al.* Seasonal variation of carcinogenic heavy metals in PM_{2.5} and source analysis in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(2): 411-417.
- [12] 林海鹏, 武晓燕, 战景明, 等. 兰州市某城区冬夏季大气颗粒物及重金属的污染特征[J]. *中国环境科学*, 2012, **32**(5): 810-815.
Lin H P, Wu X Y, Zhan J M, *et al.* Analysis of atmospheric particles and heavy metals character at the area of Lanzhou City in summer and winter[J]. *China Environmental Science*, 2012, **32**(5): 810-815.
- [13] 王晴晴, 谭吉华, 马永亮, 等. 佛山市冬季PM_{2.5}中重金属元素的污染特征[J]. *中国环境科学*, 2012, **32**(8): 1384-1391.
Wang Q Q, Tan J H, Ma Y L, *et al.* Characteristics of heavy metals in PM_{2.5} during winter in Foshan City [J]. *China Environmental Science*, 2012, **32**(8): 1384-1391.
- [14] Parrish D D, Zhu T. Climate change. Clean air for megacities [J]. *Science*, 2009, **326**(5953): 674-675.
- [15] Chang D, Song Y, Liu B. Visibility trends in six megacities in China 1973-2007 [J]. *Atmospheric Research*, 2009, **94**(2): 161-167.
- [16] Niu Z C, Wang S, Chen J S, *et al.* Source contributions to carbonaceous species in PM_{2.5} and their uncertainty analysis at typical urban, peri-urban and background sites in southeast China[J]. *Environmental Pollution*, 2013, **181**: 107-114.
- [17] Xu L L, Yu Y K, Yu J S, *et al.* Spatial distribution and sources identification of elements in PM_{2.5} among the coastal city group in the Western Taiwan Strait region, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2013, **442**: 77-85.
- [18] Huang S S, Tu J, Liu H Y, *et al.* Multivariate analysis of trace element concentrations in atmospheric deposition in the Yangtze River Delta, East China[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(36): 5781-5790.
- [19] 迟清华, 鄢明才. 应用地球化学元素丰度数据手册[M]. 北京: 地质出版社, 2007. 82-83.
Chi Q H, Yan M C. Handbook of elemental abundance for applied geochemistry [M]. Beijing: Geological Publishing

- House, 2007. 82-83.
- [20] 王新, 聂燕, 陈红, 等. 兰州城区大气 $PM_{2.5}$ 污染特征及来源解析[J]. 环境科学, 2016, **37**(5): 1619-1628.
- Wang X, Nie Y, Chen H, *et al.* Pollution characteristics and source apportionment of $PM_{2.5}$ in Lanzhou City [J]. Environmental Science, 2016, **37**(5): 1619-1628.
- [21] Torfs K, Van Grieken R. Chemical relations between atmospheric aerosols, deposition and stone decay layers on historic buildings at the mediterranean coast[J]. Atmospheric Environment, 1997, **31**(15): 2179-2192.
- [22] Almeida S M, Pio C A, Freitas M C, *et al.* Source apportionment of fine and coarse particulate matter in a sub-urban area at the Western European Coast [J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(17): 3127-3138.
- [23] Wahid N B A, Latif M T, Suratman S. Composition and source apportionment of surfactants in atmospheric aerosols of urban and semi-urban areas in Malaysia [J]. Chemosphere, 2013, **91**(11): 1508-1516.
- [24] Wang Z S, Wu T, Shi G L, *et al.* Potential source analysis for PM_{10} and $PM_{2.5}$ in autumn in a Northern City in China [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2012, **12**(1): 39-48.
- [25] Larsen III R K, Baker J E. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere: a comparison of three methods[J]. Environmental Science & Technology, 2003, **37**(9): 1873-1881.
- [26] 国家体育总局. 2010 年国民体质监测报告[R]. 北京: 人民体育出版社, 2011.
- General Administration of Sport. Report on national physical fitness surveillance[R]. Beijing: People's Education Publishing Company, 2011.
- [27] 张霖琳, 王超, 刀诤, 等. 京津冀地区城市环境空气颗粒物及其元素特征分析[J]. 中国环境科学, 2014, **34**(12): 2993-3000.
- Zhang L L, Wang C, Dao X, *et al.* Characterization of elements in air particulate matters in Beijing-Tianjin-Hebei megacities, China[J]. China Environmental Science, 2014, **34**(12): 2993-3000.
- [28] 樊曙先, 樊建凌, 郑有飞, 等. 南京市市区与郊区大气 $PM_{2.5}$ 中元素含量的对比分析[J]. 中国环境科学, 2005, **25**(2): 146-150.
- Fan S X, Fan J L, Zheng Y F, *et al.* Compared analysis of element content in atmospheric $PM_{2.5}$ in Nanjing urban and suburban area [J]. China Environmental Science, 2005, **25**(2): 146-150.
- [29] Lai S C, Zou S C, Cao J J, *et al.* Characterizing ionic species in $PM_{2.5}$ and PM_{10} in four Pearl River Delta cities, South China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2007, **19**(8): 939-947.
- [30] Querol X, Alastuey A, Rodriguez S, *et al.* PM_{10} and $PM_{2.5}$ source apportionment in the Barcelona Metropolitan area, Catalonia, Spain [J]. Atmospheric Environment, 2001, **35**(36): 6407-6419.
- [31] Song Y, Xie S D, Zhang Y H, *et al.* Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing using principal component analysis/absolute principal component scores and UNMIX[J]. Science of the Total Environment, 2006, **372**(1): 278-286.

CONTENTS

Atmospheric Dry Deposition Fluxes and Seasonal Variations of Particulate Matter and Lead in Urban Beijing	YAO Li, LIU Jin, PAN Yue-peng, <i>et al.</i> (423)
Pollution Characteristics of Heavy Metals in PM _{2.5} and Their Human Health Risks Among the Coastal City Group Along Western Taiwan Straits Region, China	CHEN Yan-ting, DU Wen-jiao, CHEN Jin-sheng, <i>et al.</i> (429)
Correlation of Speciated Mercury with Carbonaceous Components in Atmospheric PM _{2.5} in Shengsi Region	CHENG Na, QIAN Guan-lei, DUAN Lian, <i>et al.</i> (438)
Compositions and Sources of Summertime Dicarboxylic Acids and Related SOA in PM _{2.5} from Mt. Taishan	MENG Jing-jing, HOU Zhan-fang, LIU Xiao-di, <i>et al.</i> (445)
Variation Characteristics and Health Risk Assessment of BTEX in the Atmosphere of Northern Suburb of Nanjing	ZHANG Yu-xin, AN Jun-lin, WANG Jian-yu, <i>et al.</i> (453)
Inventory and Environmental Impact of VOCs Emission from Anthropogenic Source in Chang-Zhu-Tan Region	YOU Xiang-yu, LUO Da-tong, LIU Zhan, <i>et al.</i> (461)
Characteristics of Methane Emission from Urban Traffic in Nanjing	ZHANG Xue, HU Ning, LIU Shou-dong, <i>et al.</i> (469)
Variations in Aerosol Optical Depth over Three Northeastern Provinces of China, in 2003-2014	ZHANG Chen-he, ZHAO Tian-liang, WANG Fu, <i>et al.</i> (476)
Variation Analysis of Daily PM _{2.5} Concentrations Based on Boosted Regression Tree: A Case Study in Changzhou	GE Yue, WANG Ming-xin, SUN Xiang-wu, <i>et al.</i> (485)
Characteristics of Mercury Emissions from Coal-fired Power Plants in Chongqing	ZHANG Cheng, ZHANG Ya-hui, WANG Yong-min, <i>et al.</i> (495)
Possible Sources of PCDD/Fs in Atmosphere of a Certain District in Guangdong	FU Jian-ping, HAN Jing-lei, YU Xiao-wei, <i>et al.</i> (502)
Sources and Pollution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes and Conditional Pathogenic Bacteria in Concentrated Poultry Feeding Operations	GAO Min, QIU Tian-lei, QIN Yu-cheng, <i>et al.</i> (510)
Distribution and Burial Characteristics of Nitrogen Forms in Sediment of Dianchi Lake During Last Century	WU Ya-lin, LI Shuai-dong, JIANG Jun-wu, <i>et al.</i> (517)
Temporal and Spatial Variations of Dissolved Inorganic Carbon and Its Stable Isotopic Composition in the Surface Stream of Karst Groundwater Recharge	LI Li, PU Jun-bing, LI Jian-hong, <i>et al.</i> (527)
Succession Pattern of Phytoplankton of Daning River in the Three Gorges Reservoir and Its Driving Factors	ZHANG Jia-lei, ZHENG Bing-hui, LIU De-fu, <i>et al.</i> (535)
Response of the Water Quality of a Stratified Reservoir to an Extreme El Niño Event During Summer	QIU Xiao-peng, HUANG Ting-lin, ZENG Ming-zheng, <i>et al.</i> (547)
Effect of Coupling Process of Wetting-Drying Cycles and Seasonal Temperature Increasing on Sediment Nitrogen Minerization in the Water Level Fluctuating Zone	LIN Jun-jie, LIU Dan, ZHANG Shuai, <i>et al.</i> (555)
Photo-induced Phosphate Release from Organic Phosphorus Decomposition Driven by Fe(III)-oxalate Complex in Lake Water	JIANG Yong-can, PENG Yun-xiao, LIU Guang-long, <i>et al.</i> (563)
Preparation and Phosphorus Removal Mechanism of Highly Efficient Phosphorus Adsorbent Mg/Al-LDO	WANG Wei-dong, HAO Rui-xia, ZHANG Xiao-xian, <i>et al.</i> (572)
Efficiency and Mechanism of Nitrogen and Phosphorus Removal in Modified Zeolite Wetland	WU Peng, LU Shuang-jun, XU Le-zhong, <i>et al.</i> (580)
Repression of Nitrogen and Phosphorus Release from Lakeshore Sediment by Five Littoral-zone Plants	YAO Cheng, HU Xiao-zhen, LU Shao-yong, <i>et al.</i> (589)
Simulated Desorption Kinetics of Lead by the Dominant Plant Roots Released Low Molecular Weight Organic Acids from the Water-Level-Fluctuating Zone in the Three Gorges Reservoir	HE Yuan-jie, LIU Jiang, JIANG Tao, <i>et al.</i> (600)
Experimental Research of Hg ²⁺ Removal by TiO ₂ /Bentonite Composite	TANG Xing-ping, ZHOU Xiong, ZHANG Jin-yang, <i>et al.</i> (608)
Impact of Ammonia and H ₂ O ₂ on Bromate and Disinfection By-products Control	WANG Yong-jing, DU Xu, JIN Meng, <i>et al.</i> (616)
Influencing Factors of Bacterial Activity in Water Distribution Networks	WANG Xiao-dan, ZHAO Xin-hua, <i>et al.</i> (622)
Adsorptive Remediation of Cr(VI) Contaminated Groundwater with Chemically Synthesized Schwertmannite	ZHU Li-chao, LIU Yuan-yuan, LI Wei-min, <i>et al.</i> (629)
Characteristics and Mechanism of Hybrid Ozonation-Coagulation Process in Wastewater Reclamation	HOU Rui, JIN Xin, JIN Peng-kang, <i>et al.</i> (640)
Nitrogen Removal Effect and Conversion Characteristics of Nitrous Oxide in Single-stage and Multi-stage A/O Processes	GUO Chang-zi, ZHANG Feng-yan, LIU Fu-yu, <i>et al.</i> (647)
Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX with Different Organic Carbon Sources	GUAN Yong-jie, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (654)
Operational Performance and Microbial Community Structure in a Completely Mixed Aeration System	WANG Shuo, XU Qiao, ZHANG Guang-sheng, <i>et al.</i> (665)
Start-up of Combined Floc-granule CANON Process and the Effects of SRT on Reactor Performance	SUN Yan-fang, HAN Xiao-yu, ZHANG Shun-jun, <i>et al.</i> (672)
Effects of Free Ammonia Regulation on the Performance of High Solid Anaerobic Digesters with Dewatered Sludge	DAI Xiao-hu, HE Jin, YAN Han, <i>et al.</i> (679)
Highly Efficient Bioflocculation of Microalgae Using <i>Mucor circinelloides</i>	GU Qiong, JIN Wen-biao, CHEN Yuan-qing, <i>et al.</i> (688)
Effect of Zero Valent Iron on the Decline of Tetracycline Resistance Genes and Class 1 Integrons During Thermophilic Anaerobic Digestion of Sludge	WEI Xin, XUE Shun-li, YANG Fan, <i>et al.</i> (697)
Concentration, Sources and Ecological Risks of PAHs of Different Land Use Types in Shenfu New City	WANG Jing, LIU Ming-li, ZHANG Shi-chao, <i>et al.</i> (703)
Compositions, Sources and Health Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Surface Dusts from Driving-schools in a City of Henan Province, China	CHEN Yi-nan, MA Jian-hua, DUAN Hai-jing, <i>et al.</i> (711)
Remediation of Decabromodiphenyl Ether Contaminated Sediment Through Plant Roots Enhanced by Exogenous Microbes	YANG Lei-feng, YIN Hua, PENG Hui, <i>et al.</i> (721)
Impacts of Bioremediation on Microbial Communities and Different Forms of Nitrogen in Petroleum Contaminated Soil	YE Xi-qiong, WU Man-li, CHEN Kai-li, <i>et al.</i> (728)
Effects of <i>Rhodopseudomonas palustris</i> PSB06 on Pepper Rhizosphere Microbial Community Structure	LUO Lu-yun, JIN De-cai, ZUO Hui, <i>et al.</i> (735)
Effect of Reclaimed Water on Bacterial Community Composition and Function in Urban River Sediment	DI Yan-ming, WANG Guang-xuan, HUANG Xing-ru, <i>et al.</i> (743)
Effects of Different Vegetation Types and Reclamation Years on Soil Bacterial Community Structure in Reclaimed Mine Areas	HE Long, LI Yan-qin, LI Bin-chun, <i>et al.</i> (752)
Characteristic of Abundances and Diversity of Carbon Dioxide Fixation Microbes in Paddy Soils	LIU Qiong, WEI Xiao-meng, WU Xiao-hong, <i>et al.</i> (760)
Effects of Biochar Pyrolyzed at Varying Temperatures on Soil Organic Carbon and Its Components: Influence on the Composition and Properties of Humic Substances	ZHAO Shi-xiang, YU Xiao-ling, LI Zhong-hui, <i>et al.</i> (769)
Straw Composts with Composite Inoculants and Their Effects on Soil Carbon and Nitrogen Contents and Enzyme Activity	NIE Wen-han, QI Zhi-ping, FENG Hai-wei, <i>et al.</i> (783)
Comparative Analysis on Effect of Wheat Straw and Its Biochar Amendment on Net Global Warming Potential Under Wheat-Maize Rotation Ecosystem in the Guanzhong Plain	CHENG Gong, CHEN Jing, LIU Jing-jing, <i>et al.</i> (792)
Isolation and Identification of a Chlorobenzene-degrading Bacterium and Its Degradation Characteristics	YE Jie-xu, LIN Tong-hui, LUO Yu-hao, <i>et al.</i> (802)
Isolation, Identification and Metabolic Characteristics of a Heterotrophic Denitrifying Sulfur Bacterial Strain	TAN Wen-bo, MA Xiao-dan, HUANG Cong, <i>et al.</i> (809)
Effects of Continuous Application of Sewage Sludge Compost on Heavy Metals Accumulation and Mobility Characteristics in Soil Profile and on Heavy Metals Uptake of Wheat	SUN Na, SHANG He-ping, RU Shu-hua, <i>et al.</i> (815)
Effects of Nitrogen Application on Selenium Uptake, Translocation and Distribution in Winter Wheat	CHEN Yu-peng, PENG Qin, LIANG Dong-li, <i>et al.</i> (825)
Accumulation and Biotransformation in Typical Freshwater Algae Species Influenced by Titanium Dioxide Nanoparticles Under Long-term Exposure	LI Jin-li, WANG Zhen-hong, YAN Ya-meng, <i>et al.</i> (832)
Sorption of <i>p</i> -Nitrophenol by Biochars of Corn cob Prepared at Different Pyrolysis Temperatures	MA Feng-feng, ZHAO Bao-wei, <i>et al.</i> (837)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2017年2月15日 第38卷 第2期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 38 No. 2 Feb. 15, 2017

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees.ac.cn http://www.hjkx.ac.cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees.ac.cn http://www.hjkx.ac.cn
出 版	科学出版社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印刷装订	北京宝昌彩色印刷有限公司	Printed	by	Beijing Baochang Color Printing Co., Ltd.
发 行	科学出版社 电话:010-64017032 E-mail: journal@mail.sciencep.com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@mail.sciencep.com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易集团有限公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 140.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行人

ISSN 0250-3301



9 770250 330172