马肖华,李志勇,朱语哲,等.保定市农村冬季细颗粒物中重金属来源及健康风险的研究 [J]. 中国环境科学, 2025,45(8):4216-4224.
Ma X H, Li Z Y, Zhu Y Z, et al. Sources and health risks of heavy metals in winter fine particulate matter in rural areas of Baoding City [J]. China Environmental Science, 2025,45(8):4216-4224.

保定市农村冬季细颗粒物中重金属来源及健康风险的研究

马肖华[1],李志勇[1,2*],朱语哲[1],邵梓涵[1],方昱顺[1],苗玉玲[1],刘 晨[1],任壮壮[1],陈 岚[1,2],韩 斌[3],田宝娟[1,2],马会春[4],王佳琦[5] (1.华北电力大学(保定),环境科学与工程系,河北省燃煤电站烟气多污染物协同控制重点实验室,河北 保定 071003；2.华北电力大学,环境科学与工程学院,资源与环境系统优化教育部重点实验室,北京 102206；3.中国环境科学研究院,环境基准标准与风险管控全国重点实验室,北京 100012；4.河北省矿产资源与生态环境监测重点实验室,河北 保定 071051；5.中环联合(北京)认证中心有限公司,北京 100029)

摘要：基于 2020~2022 年望都县采暖季的观测数据,评估了 $PM_{2.5}$ 中重金属的来源、源特异性金属及其健康风险等方面的年际变化,旨在评估“煤改气”对农村地区大气质量的影响.“煤改气”持续发挥正面作用,$PM_{2.5}$ 及其 16 种重金属 (Cr、Pb、Tl、Ba、Sb、Sn、Cd、Sr、As、Zn、Cu、Ni、Co、Fe、Mn 和 V)的浓度均呈下降趋势,年均分别下降 30.4%和 43.4%.利用正定矩阵因子(PMF)模型解析重金属来源,燃煤(CC)贡献年均下降 11.8%,而生物质燃烧(BB)逐年上升,并一跃成为 2022 年冬季的最大贡献源(33.7%),农村天然气短缺和供暖成本增加成为主要诱因.CC 标识元素 As 和 Pb 浓度年均减少 20.7%和 48.5%,CC 对其贡献率年均下降 15.6%和 13.5%.相应地,BB 标识元素 K 的浓度和贡献率分别年均增长 20.6%和 7.4%.工业排放(IE)、交通排放(VE)和扬尘(FD)均呈现逐年上升的趋势.健康风险评估结果显示,单一元素仅有 As 和 Cr 致癌风险超过阈值,且 As 和 Cr 来源于 CC 和 IE,因此,CC 和 IE 被识别为致癌风险的主要来源.单一元素均未超过非致癌风险的阈值,但总风险在 2020~2022 年致癌风险持续存在.具体来讲,儿童存在的总致癌风险为 64%,远远高于成人的 36%,成人仅在 2020 年存在非致癌风险,而儿童始终面临非致癌风险.As 作为致癌风险和非致癌风险的主要贡献者,由于煤炭燃烧对 As 排放的年均贡献大幅下降了 15.6%,使得致癌风险和非致癌风险呈现出逐年下降的趋势.

关键词：$PM_{2.5}$；重金属；健康风险；来源解析
中图分类号：X513,X503.1 **文献标识码**：A **文章编号**：1000-6923(2025)08-4216-09

Sources and health risks of heavy metals in winter fine particulate matter in rural areas of Baoding City. MA Xiao-hua[1], LI Zhi-yong[1,2*], ZHU Yu-zhe[1], SHAO Zi-han[1], FANG Yu-shun[1], MIAO Yu-ling[1], LIU Chen[1], REN Zhuang-zhuang[1], CHEN Lan[1,2], HAN Bin[3], TIAN Bao-juan[1,2], MA Hui-chun[4], WANG Jia-qi[5] (1.North China Electric Power University (Baoding), Department of Environmental Science and Engineering, Hebei Key Lab of Power Plant Flue Gas Multi-Pollutants Control, Baoding 071003, China；2.North China Electric Power University, College of Environmental Science and Engineering, Ministry of Edocation Key Laboratory of Resources and Environmental Systems Optimization, Beijing 102206, China；3.State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China；4.Hebei Key Lab of Mineral Resources and Ecological Environmental Monitoring, Baoding 071051, China；5.China Environmental United Certification Center Co., Ltd, Beijing 100029, China). *China Environmental Science*, 2025,45(8)：4216~4224

Abstract：This study evaluated the interannual variations in the sources, source-specific metals, and health risks of $PM_{2.5}$-bound heavy metals (HMs) based on observational data in heating seasons from 2020 to 2022 in Wangdu County, aiming to assess the impact of “coal-to-gas” (CTG) policy on air quality at rural areas. The CTG policy continued to play a positive role, both $PM_{2.5}$ and 16HMs (Cr, Pb, Tl, Ba, Sb, Sn, Cd, Sr, As, Zn, Cu, Ni, Co, Fe, Mn, and V) showed a declining trend year by year with annual average reductions of 30.4% and 43.4%, respectively. Positive Matrix Factorization (PMF) model was used to analyze the sources of HMs and results indicated that the contribution of coal combustion (CC) decreased by an average of 11.8% annually. However, biomass burning (BB) increased year by year and leaped the largest contributor (33.7%) in the winter 2022, primarily driving by natural gas shortages and heating cost rises at rural areas. The concentrations of CC marker elements As and Pb decreased by 20.7% and 48.5% annually, and CC fractions declined by 15.6% and 13.5% per year, respectively. Similarly, the concentrations and fractions of BB marker element K increased by 20.6% and 7.4% annually. Industrial emissions (IE), vehicle emissions (VE), and

收稿日期：2025-01-06
基金项目：国家自然科学基金资助项目(41830965);北京市自然科学基金资助项目(8212034);河北省自然科学基金资助项目(B2023502013);河北省矿产资源与生态环境监测重点实验室开放基金项目(HBMREEM202307)
* 责任作者，副教授, lzy6566@126.com, 52351466@ncepu.edu.cn

fugitive dust (FD) all exhibited upward trends over the years. For health risk assessment: only As and Cr surpassed threshold of carcinogenic risks, and there were derived from CC and IE, therefore, CC and IE were identified as the main contributors to carcinogenic risks. However, individual elements did not exceed the threshold of non-carcinogenic risks, but the total carcinogenic risks persisted from 2020 to 2022. Specially, the total carcinogenic risks for children were 64%, which was much higher than 36% for adults. Together, adults only have non-carcinogenic risks in 2020, while children were always faced with non-carcinogenic risks. As a main contributor to both carcinogenic and non-carcinogenic risks for As, since the annual average contribution of CC to As emissions has dropped significantly by 15.6%, resulting in a year by year decline for carcinogenic and non-carcinogenic risks.

Key words：$PM_{2.5}$；heavy metals；health risks；source apportionment

保定市作为京津冀地区中心城市之一,其空气污染问题也是人们关注的焦点.随着经济的快速扩展,农村地区 $PM_{2.5}$ 中重金属污染问题日益严峻,尤其在冬季采暖季节尤为突出[1].$PM_{2.5}$ 颗粒直径较小,具有强烈的消光、吸湿等特性,能够显著降低空气的能见度[2].此外,$PM_{2.5}$ 颗粒可通过干湿沉降影响生态系统,造成严重的环境危害[3].更为严重的是,$PM_{2.5}$ 中的重金属元素能够通过呼吸系统进入人体肺部,随着医学研究的不断深入,其对人类健康的危害逐渐显现.如今,世界卫生组织已将 $PM_{2.5}$ 列为致癌物质[4].

尽管重金属元素在 $PM_{2.5}$ 质量浓度中的占比较低[5],但由于其强烈的毒性和难以降解的特性,已然成为 $PM_{2.5}$ 中关键的有毒因子[6-7].例如,Cd、Pb 和 As 等有毒金属元素,即使微量存在时,仍被视为致癌物[8].此外,一些对生物必需的金属元素,如 Cu、Fe 和 Zn 等,能够通过催化反应激活人体组织中的炎症反应[9-10].同时,过渡金属元素(如 Ni 和 Zn)能够通过催化氧化作用,加剧雾霾的形成[11-12].研究表明, $PM_{2.5}$ 中重金属主要来源于煤炭与生物质燃烧[13]、工业生产、交通排放及扬尘[14].目前,针对大气 $PM_{2.5}$ 重金属的研究主要集中于城市群,且更多关注工业区的污染特征[15].然而,随着我国“大气十条”(2013~2017)和“打赢蓝天保卫战三年行动计划”(2018~2020)的实施,城市地区的 $PM_{2.5}$ 排放得到了有效控制,农村能源消费在 $PM_{2.5}$ 排放中的贡献日益凸显[16-17].研究发现,农村固体燃料燃烧对我国室内和室外 $PM_{2.5}$ 的贡献分别高达 23%和 71%,并且由此引发的早亡占我国总量的 67%[18].因此,我国在北方农村推行的“煤改气”和“煤改电”清洁供暖政策(2017~2021),必然会引起农村能源消费结构的变化.然而,由于供暖成本和客观条件的限制,固体燃料(如煤和生物质)仍具有一定占比 [19].受天然气供应的限制,一些农村地区生物质燃料的消费量甚至出现反弹[20].同时清洁供暖政策结束后,对清洁能源的替代带来了不确定性.因此,亟需对北方农村地区的重金属排放进行系统长期研究,以优化排放控制政策.

本研究于 2020~2022 年冬季在保定市望都县农村地区采集 $PM_{2.5}$ 样本,分析其中 16 种重金属元素及生物质燃烧标识性金属 K,并运用正定矩阵因子分解模型(PMF)进行源解析.结合源解析结果,从单个金属元素的角度分析了其贡献百分比,并评估了其对人体健康的潜在风险.本研究通过深入分析重金属的污染特征、来源及其健康风险,探讨了农村大气污染物中重金属元素的长期演化特征,旨在提出更为优化的污染治理措施,以保护人体健康.

1　研究方法

1.1　采样地点

研究区域位于河北省保定市望都县(115.06°E, 38.64°N).该区域处于北京、天津和石家庄形成的三角地带,地理位置优越,位于太行山山麓,地势平坦.为响应“2+26”区域大气污染治理战略,望都县于 2017 年冬季完成了“煤改气”工程.然而,随着天然气供应紧张及补贴政策的调整,生物质燃料在取暖过程中逐渐复燃,特别是在淘汰煤炭取暖炉后,生物质燃料的使用得到一定程度的恢复.采样点设立在一座农村房屋的屋顶,距离地面约 5m.周围没有高层建筑,四周被农田环绕,通风条件良好,且采样区域周围无显著人为结构干扰,确保采样的代表性和数据的准确性.

1.2　$PM_{2.5}$ 采样

采用两台中型空气采样器(TH−150C,武汉天虹仪器有限公司),以 100L/min 的流量收集 $PM_{2.5}$.采样工作于 2020~2022 年冬季采暖季进行.2020 年和 2021 年的每日采样分为两个时段: 8:00~17:30 为第

一时段,18:00~次日 7:30 为第二时段.2022 年的采样时段为 9:00~次日 8:00.采样过程中均使用了石英滤膜(QF)和聚四氟乙烯滤膜(TEF),并在采样前对滤膜进行预处理,3 年的预处理过程均保持一致.最终在 2020~2022 年分别收集了 40、88 和 35 份样品.净质量通过检测 TEF 滤膜的前后称重差值计算得到.所收集的滤膜在测量前均保存在−20℃的冰箱中,以确保滤膜的质量稳定性.

1.3 化学分析

将所得的 TEF 膜切成相等的两半,其中一半进行 26 种元素检测.将其再次切成两等份,分别用 ICP−MS (Agilent 7500a,美国)和 ICP−OES (Agilent 5100,美国)分析 19 种元素和 7 种元素[21].实验中所用试剂均为 Merck 公司提供的超纯级试剂.每次分析都包括 1 个试剂空白和 3 个滤膜空白,且处理程序与样品分析相同.所有元素的回收率介于 80%~115%之间,精度均优于 5%(n = 30)[22].

1.4 数据处理

1.4.1 正定矩阵因子模型(PMF) 正定矩阵因子分解(PMF)是由美国环境保护署开发的一种先进的多元因子分析工具,主要通过特征标识物和化学构成来识别污染排放来源及其贡献,目前广泛应用于大气颗粒物的源解析中[17].为探讨 $PM_{2.5}$ 中重金属元素的排放来源,本研究采用 PMF 5.0 版本分析了 16 种重金属元素及生物质燃烧标识性元素 K 的来源.按照 PMF 模型运行要求计算 17 种金属元素的浓度数据文件和不确定度文件[18],其中不确定度的计算方法如下:

$$\mathrm{Unc}=\frac{5}{6}\times \mathrm{MDL}\ \ \mathrm{Conc}\leqslant \mathrm{MDL} \tag{1}$$

$$\mathrm{Unc}=\sqrt{(\mathrm{EF}\times \mathrm{Conc})^2+(0.5\times \mathrm{MDL})^2}\ \ \mathrm{Conc}>\mathrm{MDL} \tag{2}$$

式中:Unc 为元素的不确定度;MDL 为元素的检出值;Conc 为元素的浓度;EF 为元素的误差系数.

1.4.2 潜在源贡献分析法(PSCF) PSCF 是一种用于分析气团在特定地理网格单元内携带高浓度污染物到达采样点可能性的方法.该分析通过计算各网格单元的 PSCF 值实现[20].PSCF 值计算公式如下:

$$\mathrm{PSCF}=\frac{m_{ij}}{n_{ij}} \tag{3}$$

式中:m_{ij} 为经过网格的污染轨迹端点数;n_{ij} 为网格内所有的轨迹端点数.

$$W_{ij}=\begin{cases}1.00(80<n_{ij})\\0.70(20<n_{ij}<<80)\\0.42(10<n_{ij}<<20)\\0.05(n_{ij}<<10)\end{cases} \tag{4}$$

但是由于 PSCF 是一种条件概率,故 PSCF 值会存在一定的不确定性和误差,因此需引入权重函数 W_{ij} 来降低 PSCF 的误差,以上是 W_{ij} 的计算公式.

1.4.3 健康风险评估 在环境健康领域,对重金属进行致癌和非致癌风险评估是重要的环境风险分析方法.针对 6 种重金属(Cr、As、Cd、Ni、Pb 和 Co)进行致癌风险评估.非致癌风险评估则包括更广泛的金属种类(V、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Sr、Cd、Sn、Sb、Ba、Tl、Pb 和 Cr).致癌风险和非致癌风险分别通过癌症风险(CR)和危害商(HQ)来量化,这两个指标的计算考虑了 3 种暴露途径:直接吸入、皮肤接触和摄入.其中,CR 大于 10^{-6} 表示存在致癌风险,HQ 值大于 1 表明存在潜在的非致癌风险[23-24].健康风险的相关计算步骤可参考李等人的相关研究[20].

2 结果与讨论

2.1 $PM_{2.5}$ 和 16 种重金属的年际变化

2020~2022 年供暖季,望都县 $PM_{2.5}$ 平均浓度呈现显著的下降趋势,从 2020 年的 80.7μg/m^3 降至 2021 年的 57.6μg/m^3,再到 2022 年的 39.1μg/m^3.相应地,16 种重金属的总浓度从 1.6μg/m^3 降至 1.0μg/m^3,再降至 0.5μg/m^3,年均下降了 43.4%.根据国家环境空气质量标准(GB3095−2012),$PM_{2.5}$ 的二级限值设定为 75μg/m^3.在 2020 年,有 60%以上的天数超过了此阈值.然而,随着一系列政策的实施,到 2021 年这一比例降至 29.5%,并在 2022 年进一步降至 17.1%.此外,为了更好的了解“煤改气”政策实施后该地 As 和 Pb 的浓度水平,根据现行的中国国家环境空气质量标准(GB3095−2012)和世界卫生组织标准[25],本研究对 As 和 Pb 的浓度进行了评估.与中国国家空气质量标准(GB3095−2012)限定值(As 为 6ng/m^3,Pb 为 48.7ng/m^3)相比,研究期间 As 始终超过了限定值,Pb 仅有 2020 年超过了限定值,且两者浓度均呈逐年下降的趋势.

这表明该地区“2+26”策略实施的积极性和有效性,显著改善了农村地区的空气质量.也表明农村

$PM_{2.5}$ 和重金属浓度的显著下降,可能与能源消费结构的转变有关.

2.2　重金属来源贡献的演化

本研究通过 PMF 对数据进行了分析和拟合,最终确定因子数为 5 时,模型出现过度拟合.因此,基于因子的可解性,确定 5 因子为最优解.所确定的 5 个因子分别为交通排放(VE)、煤炭燃烧(CC)、工业排放(IE)、生物质燃烧(BB)和扬尘(FD).图 1 为 PMF 的解析结果展示.

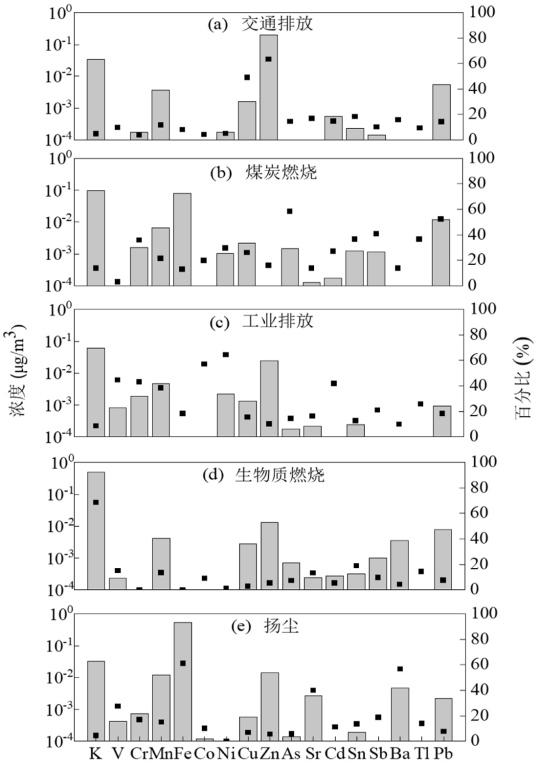


图 1　PMF 解析的因子谱图及因子贡献

Fig.1　Factor spectrum and contribution by PMF modelling

采样期间 5 个来源的贡献百分比及贡献浓度的年际变化情况如图 2 所示. 2020 年,由于 COVID-19 封锁期间的交通限制,VE 贡献百分比降至最低,仅为 15.7%.而到 2022 年,VE 高达 21.7%,高于 2020 年冬季华北平原农村的 17.25%[26],这主要与周边 107 国道的交通排放密切相关.然而,随着“煤改气”政策的实施,重金属浓度整体有所下降,导致 VE 贡献浓度表现出不同的变化趋势.同时,随着交通的增加,扬尘贡献有所上升.

作为一个主要依赖煤炭燃烧进行取暖和烹饪的农村地区,在 2020 年煤炭燃烧的贡献百分比为 31.9%,远低于“煤改气”初期 2017 年太原市农村的 60.66%[27],可见政策在望都县农村地区产生了明显的效果,但煤炭燃烧依旧是重金属来源的主要贡献者.随着政策的持续发力,2020~2022 年期间,煤炭贡献百分比呈现显著下降趋势,从 2020 年的 31.9%降至 2021 年的 21.7%,再进一步降至 2022 年的 8.4%.远远低于“煤改气”政策实施后 2020 年嘉峪关冬季的 45.2%[28]、2021 年天津市冬季的 31.5%[29]、2022 年北京市的 10.8%[15]以及 2022 年郑州市农村冬季的 9.4%[30].

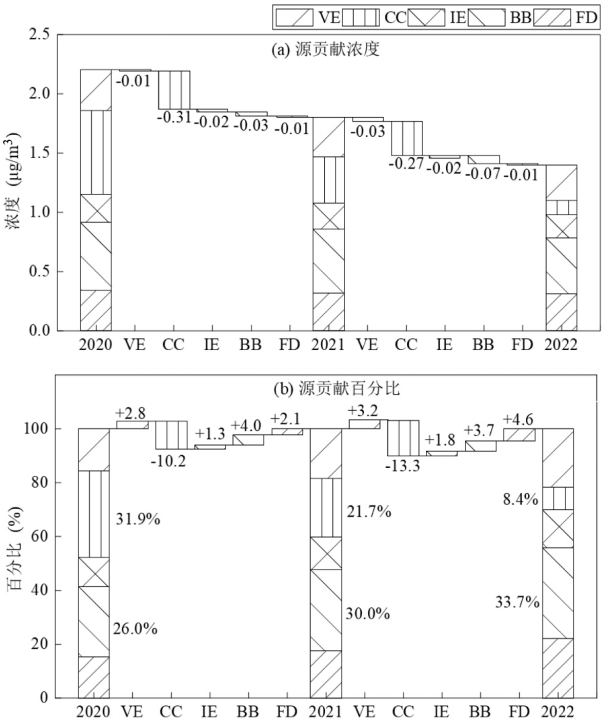


图 2　源贡献浓度和贡献百分比的年际变化

Fig.2　Interannual variation in source contribution concentrations and contribution percentages

这表明“煤改气”政策在当地取得了更为显著的效果,但是距离清洁能源的全面替代目标仍存差距.令人意外的是,BB 的贡献百分比显著上升,在 2022 年达到最大值 33.7%,成为当年重金属来源的主要贡献者.甚至高于 2020 年华北农村地区煤炭燃烧和生物质燃烧的总和 32.11%[26].这是由于受“煤改气”补贴减少和天然气供应短缺的双重影响,当地居民开始转向生物质作为取暖和烹饪的燃料.同时,强制拆除煤炉的政策进一步加剧了这一趋势.值得注意的是,“煤改气”政策有效减少了煤炭使用量,却导致

生物质燃料使用量大幅增加,从而在一定程度上抵消“煤改气”政策对重金属排放减少的预期效果.由于缺乏生物质消费统计数据,本文对 300 户农村居民进行了实地调查,结果表明民用生物质消费量近年来呈现明显增长趋势[31].

自 2013 年以来,受行业努力减排的推动,IE 贡献逐年下降,2019 年新冠疫情进一步导致了 IE 贡献的下降[32],而 2022 年疫情解封则在一定程度上导致了 IE 贡献的上升.因此,2020 年 IE 贡献百分比最低,而在 2022 年达到了 13.9%的峰值.

2.3 源特异性金属的年际变化

源特异性金属指能够通过其来源被明确识别和区分的金属.因此,为了更准确地评估政策实施对能源结构的影响,本文对源特异性金属的浓度和贡献百分比进行了观测,结果如表 1 和图 3 所示.

表 1 源特异性金属的浓度均值

Table1 The mean concentrations of source-depend metals

元素	2020 年 浓度(ng/m^3)	2021 年 浓度(ng/m^3)	2022 年 浓度(ng/m^3)
As	9.7	7.5	6.1
Pb	49.2	26.2	13.6
Co	5.4	10.3	16.4
Ni	8.5	33.3	41.2
K	631.4	808.2	915.8
Cu	6.4	8.7	10.2
Zu	14.2	23.1	34.4
Ba	10.2	16.5	23.3

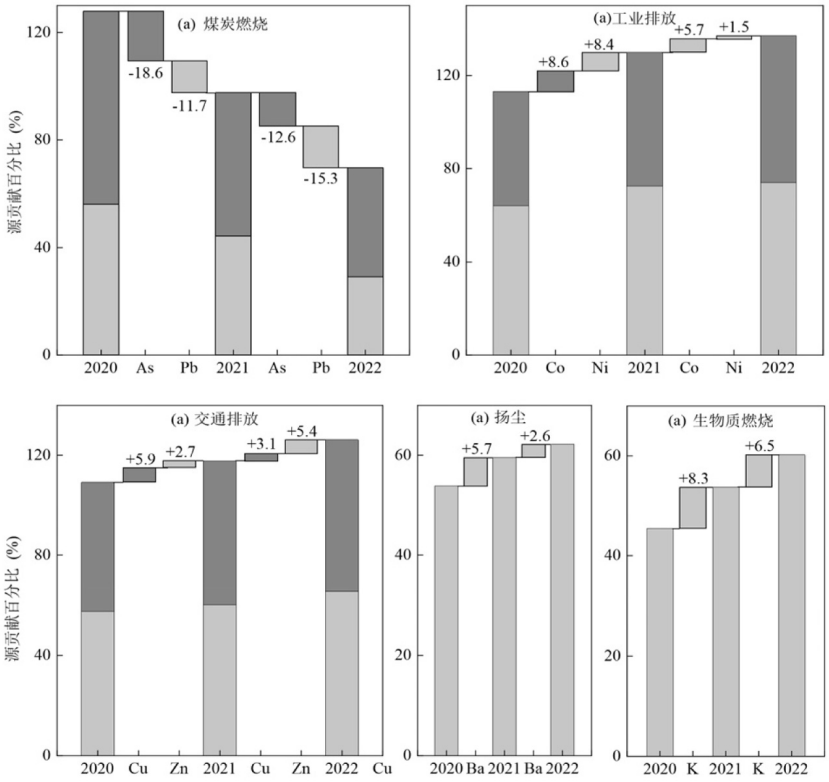


图 3 源特异性金属贡献百分比的年际变化

Fig.3 Interannual variations in contribution percentages of source-specific metals

结合 PMF 解析结果,将 As 和 Pb 归类于 CC[22];Co 和 Ni 归类于 IE[21];K 归类于 BB[33];Cu 和 Zn 归类于 VE[34];Ba 归类于 FD[35].自 20 世纪 80 年代淘汰含 Pb 汽油以来,煤炭燃烧对 Pb 的贡献逐步增加[36],Pb 逐渐成为煤炭燃烧的标识性元素.本文观察到 As 和 Pb 的浓度显著下降,其贡献百分比年均分别下降了 15.6%和 13.5.突显出“煤改气”政策的有效性.并且由于煤炉的拆除以及天然气贡献不足等原因,生物质燃烧的标识性金属 K 浓度逐渐上升,其贡献百分比在 2020~2022 年年均上升了 7.0%,因此生物质燃烧的贡献百分比也呈逐年上升的趋势.另外 Co、Ni、Cu、Zn 和 Ba 浓度及其贡献百分比上升,进一步印证了 VE、IE 和 FD 的贡献百分比的上升.

2.4 潜在源风险分析

本研究利用 TrajStat 软件清晰描绘了 CC、IE、BB、VE 和 FD 的潜在源地理区域分布情况(图 4).

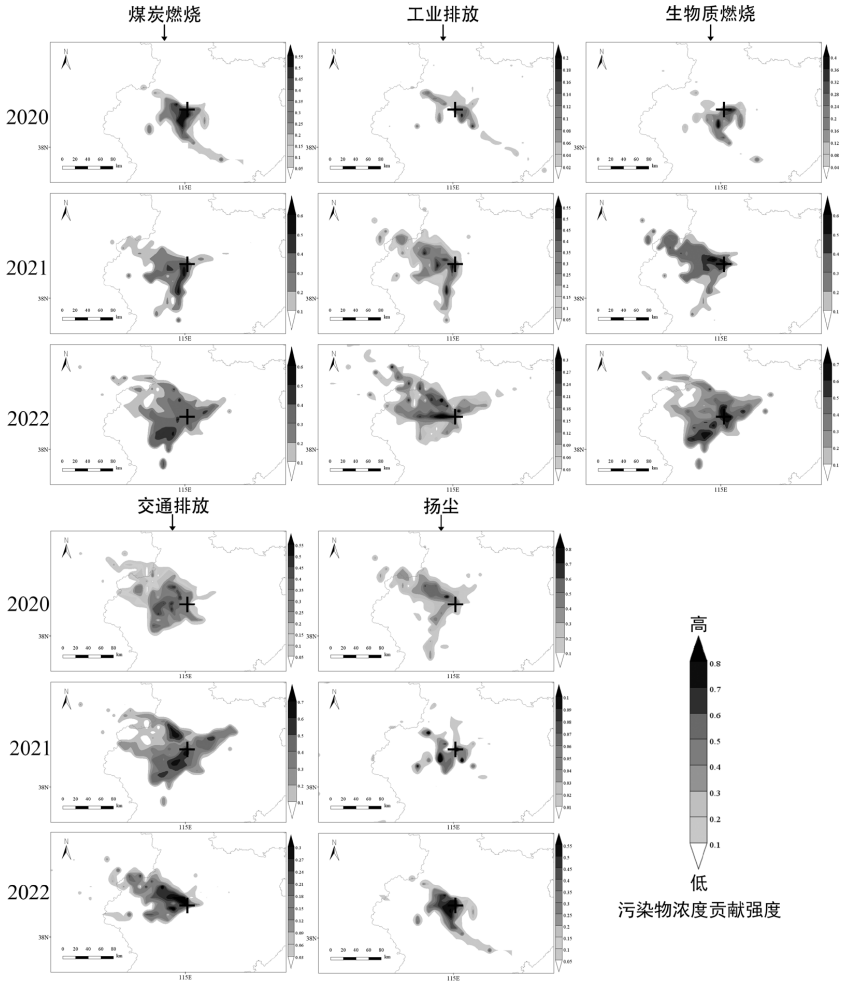


图 4　排放源的 PSCF 分布特征

Fig.4　PSCF distribution characteristics of potential sources

就 CC 而言,区域范围从 2020~2022 年逐渐缩小,且强度逐渐减弱,进一步说明“煤改气”政策的有效性.2020 年,IE 对重金属的影响相对较小,为采样期间的最低水平,这主要与 COVID−19 导致的大规模工厂关闭相关.与 2020 年相比,潜在的 IE 区域在观测地点的西部和西南部有所扩大,这与工业复苏以及 COVID−19 全面解封后排放源的增加密切相关.同时,BB 的区域和强度呈逐年上升的趋势.2021 年,BB 在观测区域的重点更倾向于当地的排放,2022 年进一步验证了这一点,凸显出当地生物质的使用逐年增加,且成为重金属来源的主要贡献者.VE 和 FD 的趋势与 IE 相似,污染源的面积和强度均有所增加,表明交通强度也逐步增强.这些结果为研究各污染源的演变趋势提供了重要依据.

2.5　人类健康风险

2.5.1　致癌风险　在过去 3a 中,对望都县 $PM_{2.5}$ 重金属浓度进行健康风险评估,计算了成人和儿童通过 3 种不同摄入途径的重金属致癌风险,具体结果见图 5.在致癌风险方面:6 种存在致癌风险的重金属元素 3a 间的致癌风险(CR 值)范围在 10^{-11}~10^{-4} 之间.具体来看,Cd、Ni、Pb 和 Co 的致癌风险值均未超过 10^{-6},表明这 4 种重金属的致癌风险可以忽略不计;而 Cr 和 As 的 CR 值在 3a 内均超过了 10^{-6},表明 Cr 和 As 的致癌风险持续存在.值得关注的是,随着“煤改气”政策的推行,煤炭使用量的减少使得 As 的致癌风险呈现出下降趋势[37-38];工业的复苏使 Cr 的致癌风险呈现逐年上升的趋势. 3a 内,成人和儿童均存在致癌风险,由于重金属浓度的持续下降,使得致癌风险也呈现逐年下降趋势.期间儿童的致癌风险始终高于成人,这是因为儿童的活动量大,受到重金属影响的机会更高[39].

2.5.2　基于来源的致癌金属风险分析　众所周知,不同来源的致癌金属对儿童和成人造成的致癌风险影响存在显著差异[40].传统的浓度模型难以有效

区分自然来源与人为来源在健康风险评估中的作用[41-42].为此本文整合了 PMF 结果,以直观呈现 6 种致癌金属对儿童和成人造成的致癌风险比例(图 6).具体而言,Ni、Cr、Cd 和 Co 主要来自工业排放(IE)[21],而 As 和 Pb 则主要源于煤炭燃烧(CC).数据显示,儿童面临的致癌风险显著高于成人,分别占 64.0%和 36.0%,其中 Cr 和 As 是主要的贡献者.与 Ni、Co、Pb 和 Cd 相关的致癌风险相对较低,其中 Pb 的风险最低,这与自 2000 年以来中国逐步淘汰含 Pb 汽油后 Pb 浓度的显著下降有关[36].因此,煤炭燃烧(CC)和工业排放(IE)被认为是致癌风险的关键来源和重要影响因素.由于 2020~2022 年期间,CC 贡献百分比的下降幅度明显高于 IE 贡献百分比的上升幅度,因此该阶段的致癌风险呈现出下降趋势.

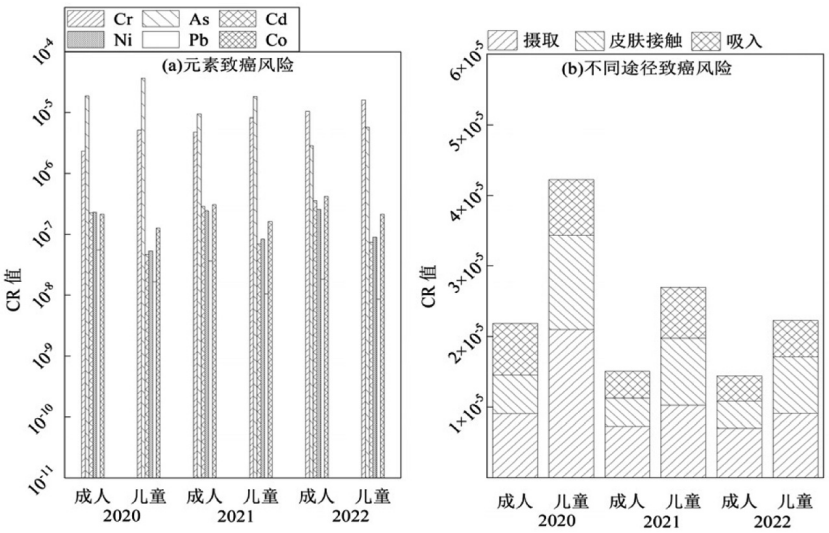


图 5 2020~2022 年成人与儿童 3 种暴露途径下的重金属致癌风险

Fig.5 Carcinogenic risks from heavy metals posed by three pathways for adults and children from 2020 to 2022

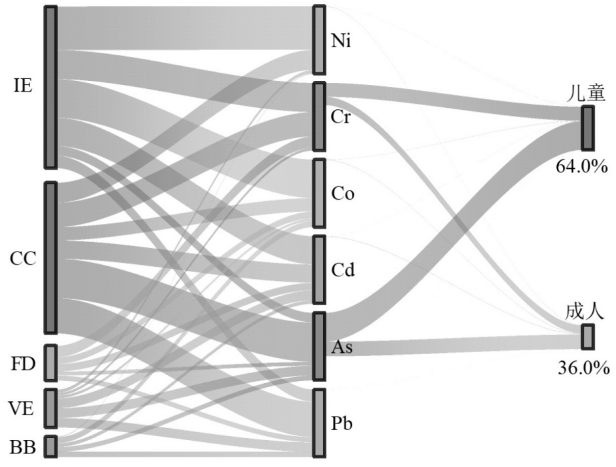


图 6 儿童和成人致癌风险的来源解析

Fig.6 Source apportionment of carcinogenic risks for adults and children

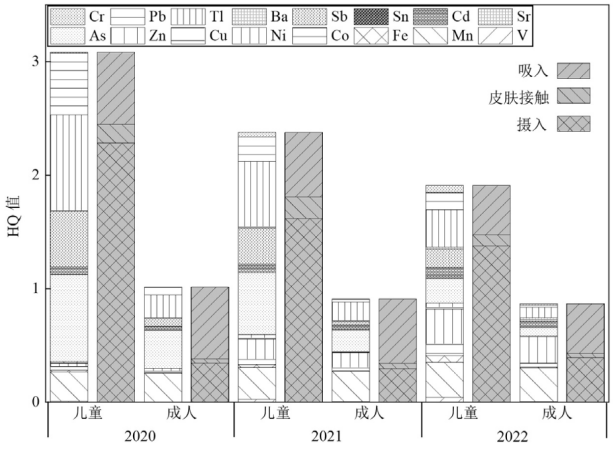


图 7 2020~2022 年成人与儿童通过 3 种途径的重金属非致癌风险比较

Fig.7 Comparison of non-carcinogenic risks of heavy metals via three exposure pathways for adults and children from 2020 to 2022

2.5.3 非致癌风险 本研究运用危害商(HQ)方法对非致癌风险进行了评估[43].依据《皮肤风险评估补充指南》,$PM_{2.5}$ 中重金属元素的可接受非致癌风险阈值设定为 HQ=1.若某元素的 HQ 值不超过 1,则其非致癌风险属于可接受范围内[44].

图 7 展示了通过摄入、皮肤接触和吸入 3 种途径对儿童和成人的健康风险评估结果,显示 16 种单个重金属的 HQ 值均未超过 1,表明单个金属对成人和儿童的非致癌风险较低.然而,从总的非致癌风险 HQ 值来

看,儿童在 3a 期间的风险持续存在,而成人仅在 2020 年面临风险.研究发现,儿童的非致癌风险普遍高于成人,且通过摄入途径的非致癌风险在 2020~2022 年分别占到 74.1%、70.1%和 72.1%,表明摄入是儿童非致癌风险的主要来源.这一结果与西安的相关研究相符[45],这可能是由于儿童生理发育未成熟,对重金属更敏感所致[46].此外,考虑到儿童可能存在饮食卫生问题,实际通过摄入途径的非致癌风险可能更高[47].研究结果为制定针对性的风险缓解策略提供了重要数据依据,尤其是减少重金属高风险暴露的措施.

3　结论

3.1　随着“煤改气”政策的实施, 重金属浓度显著下降:从2020年的1.6μg/m^{3}降至2021年的1.0μg/m^3,并进一步降至 2022 年的 0.5μg/m^3,年均下降了 43.4%,同时 $PM_{2.5}$ 的浓度年均下降了 30.4%.

3.2　煤炭燃烧源的贡献百分比在 2021 年和 2022 年分别下降了 10.2%和 13.3%.然而,生物质燃烧的贡献率在 2022 年上升至 33.7%,并成为重金属排放的主要来源.同时工业排放、车辆排放和扬尘的贡献也有所增加,但由于重金属总浓度的逐年下降,其浓度贡献呈下降趋势.年度源组分和区域分析进一步揭示了污染源的演变趋势.

3.3　健康风险评估结果显示,儿童的致癌风险(64.0%)显著高于成人(36.0%),其中 Cr 和 As 是主要贡献者,主要来源于 IE 和 CC.因此,IE 和 CC 被识别为致癌风险的主要来源.儿童在这 3a 期间一直面临非致癌风险,而成人仅在 2020 年超过了安全阈值,两组人群的非致癌风险均呈下降趋势,反映出“煤改气”政策的积极影响.

参考文献:

[1] Zhang Z Z, Wang W X, Cheng M M, et al. The contribution of residential coal combustion to $PM_{2.5}$ pollution over China's Beijing–Tianjin–Hebei region in winter [J]. Atmospheric Environment, 2017, 159(31):147–161.

[2] 牛晓东,解姣姣,李远鹏,等.保定市污染天气 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子的特征和源解析 [J]. 环境化学, 2022,41(5):1661–1672.
Niu X D, Xie J J, Li Y P, et al. Characteristics and source apportionment of $PM_{2.5}$ water soluble ions in Baoding City under pollution weather conditions [J]. Environmental Chemistry, 2022, 41(5):1661–1672.

[3] Wright L P, Zhang L M, Cheng I, et al. Impacts and effects indicators of atmospheric deposition of major pollutants to various ecosystems: a review [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2018,18(8):1953–1992.

[4] Huang C, Moran A E, Coxson P G, et al. Potential Cardiovascular and Total Mortality Benefits of Air Pollution Control in Urban China [J]. Circulation, 2017,136(17):1575–1584.

[5] Liu S H, Tian H Z, Luo L N, et al. Health impacts and spatiotemporal variations of fine particulate and its typical toxic constituents in five urban agglomerations of China [J]. The Science of the Total Environment, 2022,806(4):15145.

[6] 彭　晓,杨　萌,王笑欢,等.大连市 $PM_{2.5}$ 中重金属的污染特征、来源及健康风险评价 [J]. 生态毒理学报, 2024,19(4):294–310.
Peng X, Yang M, Wang X H, et al. Characteristics, sources and health risk assessment of $PM_{2.5}$ bound metal elements in Dalian [J]. Asian Journal of Eco toxicology, 2024,19(4):294–310.

[7] Park S Y, Jeon J I, Jung Y, et al. $PM_{2.5}$ and heavy metals in urban and agro−industrial areas: health risk assessment considerations[J]. Asian Journal of Atmospheric Environment, 2024,18(1):16.

[8] 韦　丽,唐彦钊,孙凤霞,等.南京市大气 $PM_{2.5}$ 中金属污染特征及慢性健康风险评价 [J]. 环境与健康杂志, 2024,41(4):328–331.
Wei L, Tang Y Z, Sun F X, et al. Pollution characteristics and chronic health risk of heavy metals in atmospheric environment $PM_{2.5}$ in Nanjing city [J]. Environment Science, 2024,41(4):328–331.

[9] Bruno A, Isabelle S, Olivier P, et al. Zn impacts Cu coordination to amyloid−β, the Alzheimer's peptide, but not the ROS production and the associated cell toxicity [J]. Chemical communications (Cambridge, England), 2013,49(12):1214–1216.

[10] Saffari A, Daher N, Shafer M M, et al. Global perspective on the oxidative potential of airborne particulate matter: a synthesis of research findings [J]. Environmental science & technology, 2014,48 (13):7576–7583.

[11] 吕泽峰,赵海龙,马勤学.城市雾霾污染的成因及治理措施研究 [J]. 皮革制作与环保科技, 2024,5(16):121–123.
Lu Z F, Zhao H L, Ma Q X, et al. Study on causes of urban haze pollution and treatment measures [J]. Leather Manufacture and Environmental Technology, 2024,5(16):121–123.

[12] Guo J, Tilgner A, Yeung C P, et al. Atmospheric peroxides in a polluted subtropical environment: seasonal variation, sources and sinks, and importance of heterogeneous processes [J]. Environmental science & technology, 2014,48(3):1443–1450.

[13] 张晓茹,孔少飞,银　燕,等.亚青会期间南京大气 $PM_{2.5}$ 中重金属来源及风险 [J]. 中国环境科学, 2016,36(1):1–11.
Zhang X R, Sun S F, Yin Y, et al. Sources and risk assessment of heavy metals in ambient $PM_{2.5}$ during Youth Asian Game period in Nanjing [J]. China Environment Science, 2016,36(1):1–11.

[14] 靳朝喜.洛阳市大气 $PM_{2.5}$ 中重金属元素特征来源及潜在生态风险评价 [J]. 环保科技, 2020,26(6):11–15.
Jin C X. Heavy metal characteristic sources and ecological risk assessment of atmospheric $PM_{2.5}$ in Luoyang City [J]. Environment Protection and Technology, 2020,26(6):11–15.

[15] 张　炜,吕　童,刘建伟,等.北京市 $PM_{2.5}$ 载带重金属污染特征、来源及健康风险变化与政策效果评估 [J]. 环境科学, 2024,45(11): 6229–6237.
Zhang W, Lu T, Liu J W, et al. Characteristics, sources, and health risk changes of heavy metal pollution carried by $PM_{2.5}$ in Beijing and evaluation of policy effectiveness [J]. Environment Science, 2024, 45(11):6229–6237.

[16] Cheng J, Su J P, Cui T, et al. Dominant role of emission reduction in $PM_{2.5}$ air quality improvement in Beijing during 2013~2017: a model−based decomposition analysis [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019,19(24):6125–6146.

[17] Shen G F, Ru M Y, Du W, et al. Impacts of air pollutants from rural Chinese households under the rapid residential energy transition [J].

Nature Communications, 2019,10(1):1–8.
[18] Yun X, Shen G F, Shen H Z, et al. Residential solid fuel emissions contribute significantly to air pollution and associated health impacts in China [J]. Science advances, 2020,6(44):7621.
[19] Song C B, Liu B W, Cheng K, et al. Attribution of air quality benefits to clean winter heating policies in China: Combining machine learning with causal inference [J]. Environmental science & technology, 2023, 57(8):17707–17717.
[20] Li Z Y, Ren Z Z, Liu C, et al. Heterogeneous variations in wintertime $PM_{2.5}$ sources, compositions and exposure risks at urban/suburban rural/remote rural areas in the post COVID-19/Clean-Heating period [J]. Atmospheric Environment, 2024,326:120463.
[21] Li Z Y, Liu J X, Zhai Z, et al. Heterogeneous changes of chemical compositions, sources and health risks of $PM_{2.5}$ with the "Clean Heating" policy at urban/suburban/industrial sites [J]. The Science of the total environment, 2022,854:158871.
[22] Tao J, Gao J, Zhang L, et al. $PM_{2.5}$ pollution in a megacity of southwest China: source apportionment and implication [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2014,14(4):5147–5196.
[23] Megido L, Suárez-Peña B, Negral L, et al. Suburban air quality: Human health hazard assessment of potentially toxic elements in PM_{10} [J]. Chemosphere, 2017,177:284–291.
[24] 吴凯章,刘 明,罗中华,等.大宝山多金属矿区周边大气重金属来源解析与风险评估 [J]. 中国环境科学, 2023,43(12):6270-6280.
Wu K Z, Liu M, Luo Z H, et al. Sources apportionment and risk assessment of atmospheric heavy metals in the vicinity of Dabao Mountain polymetallic mining area [J]. China Environment Science, 2023,43(12):6270–6280.
[25] 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.
[26] Wang W J, Wang M Y, Wang M S, et al. Quantifying the health risks of $PM_{2.5}$-bound heavy metals for rural populations with different energy use types during the heating season [J]. Exposure and Health, 2023,16(3):759–774.
[27] Liu K K, Shang Q M, Wan C Y, et al. Characteristics and sources of heavy metals in $PM_{2.5}$ during a typical haze episode in rural and urban areas in Taiyuan, China [J]. Atmosphere, 2017,9(1):2.
[28] Xiao K, Yao X Q, Ren X C, et al. Transmission characteristics, source apportionment and health risk assessment of $PM_{2.5}$ in a typical industrial city in Northwest China [J]. Urban Climate, 2023,47.
[29] Zhang J W, Feng L H, Liu Z H, et al. Source apportionment of heavy metals in $PM_{2.5}$ samples and effects of heavy metals on hypertension among schoolchildren in Tianjin [J]. Environment Geochemistry and Health, 2023,45:8451–8472.
[30] Liu J W, Chen H, Qiao S, et al. Indoor/outdoor relationships of $PM_{2.5}$-associated toxic metals/metalloids at a rural residence in North China: Sources and probabilistic health risks [J]. Atmospheric Pollution Research, 2023,14(5):101753.
[31] Li Z Y, Liu C, Ren Z Z, et al. Unintended side effect of the coal-to-gas policy in North China Plain: Migration of the sources and health risks of ambient PAHs [J]. Science of the Total Environment, 2025,958:178050.
[32] Dong D M, Qiu T, Du S S et al. The chemical characterization and source apportionment of $PM_{2.5}$ and PM_{10} in a typical city of Northeast China [J]. Urban Climate, 2023,47:101373.
[33] Kong S F, Li L, Li X X, et al. The impacts of firework burning at the Chinese Spring Festival on air quality: insights of tracers, source evolution and aging processes [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015,15(4):2167–2184.
[34] Xu H, Xiao Z M, Chen K, et al. Spatial and temporal distribution, chemical characteristics, and sources of ambient particulate matter in the Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. Science of the Total Environment, 2018,658:280–293.
[35] Si R R, Xin J Y, Zhang W Y, et al. Environmental and health benefits of establishing a coal banning area in the Beijing-Tianjin-Hebei region of China [J]. Atmospheric Environment, 2021,247.
[36] Das R, Mohtar A T B M, Rakshit D, et al. Sources of atmospheric lead in and around an Indian megacity [J]. Atmospheric Environment, 2018,193:57–65.
[37] 骆善彩,张 雯,陈国才,等.淮安市 2020~2022 年 $PM_{2.5}$ 中重金属污染的来源解析和健康风险评估 [J]. 现代预防医学, 2024,51(11):1962-1967.
Luo S C, Zhang W, Chen G C et al. Source analysis and health risk assessment of heavy metal pollution in $PM_{2.5}$ in Huai'an city from 2020 to 2022 [J]. Modern Preventive Medicine, 2024,51(11):1962–1967.
[38] Qi X, Han Y, Che H X, et al. Characteristics and health risks assessment of $PM_{2.5}$-bound heavy metals during winter in urban areas of northern China: A case study in Kaifeng [J]. Science of the Total Environment, 2024,955:177050.
[39] 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]. The Science of the total environment, 2018,621:558–577.
[40] M J J, Yan Y, Chen X J, et al. Incorporating bioaccessibility and source apportionment into human health risk assessment of heavy metals in urban dust of Xiamen, China [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2021,228:112985.
[41] Sun J X, Zhao M L, Huang J L, et al. Determination of priority control factors for the management of soil trace metal(loid)s based on source-oriented health risk assessment [J]. Journal of Hazardous Materials, 2022,423(PA):127116.
[42] 张云峰,于瑞莲,胡恭任,等.泉州市大气 $PM_{2.5}$ 中有毒金属元素的环境风险评价 [J]. 地球与环境, 2018,46(5):456–462.
Zhang Y F, Yu R L, Hu G R, et al. Environmental risk assessment of toxic metal elements in $PM_{2.5}$ of Quanzhou City [J]. Earth and Environment, 2018,46(5):456–462.
[43] Wang Y S, Chang L C, Chang F J, et al. Explore regional $PM_{2.5}$ features and compositions causing health effects in Taiwan [J]. Environmental Management, 2021,67:176–191.
[44] Guo F J, Tang M L, Wang X F, et al. Characteristics, sources, and health risks of trace metals in $PM_{2.5}$ [J]. Atmospheric Environment, 2022,289.
[45] 袁宏林,杨梦妮,张 颖,等.西安市冬季大气颗粒物中重金属污染特征及健康风险评价 [J]. 环境工程, 2019,37(1):176-181.
Yuan H L, Yang M N, Yang Y, et al. Assessment of pollution characteristics and health risks of heavy metals in winter atmospheric particulate matters in Xi'an [J]. Environmental Engineering, 2019,37 (1):176–181.
[46] Özkaynak H, Glen G, Cohen J, et al. Model based prediction of age-specific soil and dust ingestion rates for children [J]. Journal of Exposure Science & Environmental Epidemiology, 2022,32(3):472–480.
[47] Jayant N, Diksha H, Akanksha S, et al. Concentrations, transport characteristics, and health risks of $PM_{2.5}$-bound trace elements over a national park in central India [J]. Journal of Environmental Management, 2021,293:112904.

致谢： 本研究的样品检测工作由河北省矿产资源与生态环境监测重点实验室协助完成,在此表示感谢.

作者简介： 马肖华(2000-).男,河北保定人,华北电力大学硕士研究生,研究方向为大气污染与防控.发表论文 2 篇.1025076704@qq.com.