

# 上海市浦东新区大气PM<sub>2.5</sub>中铅及其同位素特征

胡燕, 苏峰丽, 杨敏娟, 王文朋, 沈惠平

**摘要:**

[目的] 了解上海市浦东新区大气PM<sub>2.5</sub>中铅的浓度及同位素特征。

[方法] 2015年3月—2016年2月从浦东新区5个采样点采集410份大气PM<sub>2.5</sub>样本。应用电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)测定PM<sub>2.5</sub>样本中的铅质量浓度及其同位素比值, 探讨铅随季节和PM<sub>2.5</sub>水平不同的变化特征。采用潜在生态危害指数评估铅危害程度。利用铅同位素比值特征初步解析铅的污染来源。

[结果] PM<sub>2.5</sub>的年质量浓度中位数( $P_{25}$ ,  $P_{75}$ )为60.2(41.7, 90.9)μg/m<sup>3</sup>, 铅的年质量浓度中位数( $P_{25}$ ,  $P_{75}$ )为0.032(0.018, 0.053)μg/m<sup>3</sup>。PM<sub>2.5</sub>质量浓度与Pb质量浓度呈正相关( $r=0.815$ ,  $P<0.05$ )。PM<sub>2.5</sub>质量浓度( $\chi^2=40.78$ )和铅质量浓度( $\chi^2=56.77$ )均存在季节差异( $P<0.05$ ), 冬季高于夏季。不同采样点间铅质量浓度差异无统计学意义( $P>0.05$ )。铅的潜在生态危害指数为107, 显示危害程度为较强。样品<sup>204</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb、<sup>207</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb、<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb分别为0.05479±0.00028、0.85732±0.00293、2.09891±0.00841。不同季节铅同位素比值均值之间的差异与同位素比值测量偏差无明显区别。不同空气质量情况下,<sup>204</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb均值差异、<sup>207</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb均值差异与同位素比值测量偏差均无明显区别。<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb均值在空气质量为污染时(2.10159~2.10207)高于空气质量为优和良(2.09713和2.09732)时。

[结论] 上海市浦东新区PM<sub>2.5</sub>污染水平较高, 但铅污染处于较低水平, PM<sub>2.5</sub>和铅质量浓度均存在明显的季节差异, 铅同位素比值则未见季节差异。铅污染来源主要是水泥的生产使用和燃煤排放, 需加强冬季大气PM<sub>2.5</sub>中铅的监测和预防, 重点控制水泥和燃煤铅排放。

**关键词:** PM<sub>2.5</sub>; 铅; 同位素比值; 铅来源

**引用:** 胡燕, 苏峰丽, 杨敏娟, 等. 上海市浦东新区大气PM<sub>2.5</sub>中铅及其同位素特征[J]. 环境与职业医学, 2018, 35(10): 892-897. DOI: 10.13213/j.cnki.jeom.2018.18176

**Lead and its isotope characteristics in atmospheric PM<sub>2.5</sub> in Pudong New Area, Shanghai** HU Yan, SU Feng-li, YANG Min-juan, WANG Wen-peng, SHEN Hui-ping (Department of Physicochemical Inspection, Shanghai Pudong New Area Center for Disease Control and Prevention, Fudan University Pudong Institute of Preventive Medicine, Shanghai 200136, China). Address correspondence to SHEN Hui-ping, E-mail: hpshen@pdcdc.sh.cn · The authors declare they have no actual or potential competing financial interests.

**Abstract:**

[Objective] To evaluate the lead concentration and its isotope characteristics in atmospheric PM<sub>2.5</sub> in Pudong New Area of Shanghai.

[Methods] A total of 410 PM<sub>2.5</sub> samples were collected from five monitoring sites in Pudong New Area from March 2015 to February 2016. The lead concentration and its isotope ratios in the PM<sub>2.5</sub> samples were determined by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS), and their changing characteristics with different seasons and PM<sub>2.5</sub> concentrations were analyzed. The health risk of lead was assessed by applying potential ecological risk index. The source identification of lead was preliminarily explored using its isotope ratios.

[Results] The medians ( $P_{25}$ ,  $P_{75}$ ) of annual mass concentrations of PM<sub>2.5</sub> and lead were 60.2 (41.7, 90.9) μg/m<sup>3</sup> and 0.032 (0.018, 0.053) μg/m<sup>3</sup>, respectively. The PM<sub>2.5</sub> concentration was positively correlated with the lead concentration ( $r=0.815$ ,  $P<0.05$ ). Both the concentrations of PM<sub>2.5</sub> ( $\chi^2=40.78$ ) and lead ( $\chi^2=56.77$ ) showed seasonal variations ( $P<0.05$ ) and were higher in winter than in summer. No differences in lead concentrations were found among the selected monitoring sites ( $P>0.05$ ). Lead was graded as relatively high potential ecological risk, with an index of 107. The isotopic ratios were 0.05479±0.00028, 0.85732±0.00293, and

·作者声明本文无实际或潜在的利益冲突。

[基金项目] 上海市浦东新区卫生计生委面上项目(编号: PW2015A-2); 上海市浦东新区疾病预防控制中心科技项目(编号: PDCDC-2015-35)

[作者简介] 胡燕(1983—), 女, 硕士, 主管技师; 研究方向: 环境及食品卫生检测; E-mail: 631528945@qq.com

[通信作者] 沈惠平, E-mail: hpshen@pdcdc.sh.cn

[作者单位] 上海市浦东新区疾病预防控制中心, 复旦大学预防医学研究院, 上海 200136

$2.09891 \pm 0.00841$  for  $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ , and  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ , respectively. There were no significant differences between the mean differences of lead isotope ratios and the deviation of isotope ratio measurements in different seasons. There were no significant differences between the mean differences and the deviation of isotope ratio measurements for  $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  and  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  under different air quality conditions. The mean  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  was higher when air quality was polluted (2.10159–2.10207) than when air quality was excellent and good (2.09713 and 2.09732).

[Conclusion] A high PM<sub>2.5</sub> pollution level and a low lead pollution level are identified in Pudong of Shanghai. PM<sub>2.5</sub> and lead concentrations both show seasonal variations, but no seasonal variations in lead isotope ratios are observed. The main sources of lead pollution in the selected area are cement production and coal combustion, which requires strengthened monitoring and prevention of lead pollution in atmospheric PM<sub>2.5</sub> in winter and strict control of lead emissions from cement production and coal combustion.

**Keywords:** PM<sub>2.5</sub>; lead; isotope ratio; lead source

**Citation:** HU Yan, SU Feng-li, YANG Min-juan, et al. Lead and its isotope characteristics in atmospheric PM<sub>2.5</sub> in Pudong New Area, Shanghai[J]. Journal of Environmental and Occupational Medicine, 2018, 35(10): 892–897. DOI: 10.13213/j.cnki.jeom.2018.18176

铅(lead, Pb)是对人体健康有多种毒性作用的重金属。大气尤其是PM<sub>2.5</sub>中的Pb易通过呼吸系统等进入人体,蓄积于血液、骨骼和软组织中,可引起神经、血液及免疫系统多种疾病及临床症状<sup>[1–5]</sup>。作为中国环境质量空气标准中唯一规定浓度限值的重金属,PM<sub>2.5</sub>中Pb的浓度、来源及污染特征等尤其引起人们的重视。稳定同位素比值分析是追溯Pb来源的有效方法,Pb有4种稳定性同位素( $^{204}\text{Pb}$ 、 $^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}$ ),Pb具有同位素峰度高、比值稳定、迁移过程中物理化学性质变化不明显等特征,Pb同位素丰度比可用于识别、区分Pb的不同来源,Pb成为无机同位素示踪的首选元素<sup>[6]</sup>。

目前国内对PM<sub>2.5</sub>中金属元素的研究主要局限在含量测定,而对同位素的研究相对较少<sup>[7–8]</sup>。上海作为长三角城市群的最大核心城市,既是污染受体,也是污染排放体,污染情况复杂。本研究通过电感耦合等离子体质谱法(inductively coupled plasma mass spectrometry, ICP-MS)测定上海市浦东新区大气PM<sub>2.5</sub>中Pb的水平及其同位素比值,评估Pb污染水平、季节变化特征和危害程度,并利用Pb同位素比值对Pb的污染来源做初步解析,为该区的大气污染治理提供依据。

## 1 材料与方法

### 1.1 仪器

NexION 300X型电感耦合等离子体质谱仪(PerkinElmer, 美国),TOPEX型微波消解仪(上海屹尧仪器公司,中国),EH45C型石墨电热板(北京莱伯泰科仪器公司,中国),TH-1000型大流量采样器(武汉天虹仪表公司,中国)。

### 1.2 试剂与材料

石英滤膜(203 mm×254 mm, Whatman, 英国),

标准滤膜SRM2783、Pb同位素丰度标准物质SRM981(NIST, 美国),Tl标准溶液(1 000 mg/L, 国家有色金属及电子材料分析测试中心, 中国),质谱调谐液、双检测器调谐液(PE, 美国),硝酸(微电子级, 北京化学试剂研究所, 中国),过氧化氢(优级纯, 国药集团化学试剂公司, 中国)。

### 1.3 样品采集和处理

根据上海市浦东新区地理特点,设置5个代表性采样点,每个采样点500 m范围内均有机动车主干道,以石英滤膜采集PM<sub>2.5</sub>样品。采样周期为2015年3月—2016年2月,每个采样点在每月10—16日连续采样7 d,每次24 h(采样流量为1 m<sup>3</sup>/min),滤膜每日更换,遇雾霾天连续采样。实际采集样品410件,−20℃冰箱冷冻保存。

滤膜采样前后均恒温恒湿平衡处理,经万分之一天平称重,以差减法得到PM<sub>2.5</sub>颗粒物质量。取1/8张滤膜,陶瓷剪刀剪碎,加入聚四氟乙烯消化罐中,加入10 mL硝酸和2 mL过氧化氢,放置过夜后,程序升温处理样品。消解完成后冷却至80℃以下,取出消化罐,将消解液和滤膜冲洗液一并经0.45 μm滤头过滤至聚四氟乙烯坩埚中,赶酸至近干,冷却,用1%硝酸转移定容至50 mL容量瓶。同时做空白滤膜。

### 1.4 ICP-MS 测定方法<sup>[9]</sup>

射频功率1 100 W,等离子气体流量15 L/min,辅助气流量1.2 L/min,雾化气流量0.93 L/min,模拟电压1 850 V,脉冲电压900 V,跳峰扫描模式,驻留时间1 ms,扫描点数150,扫描重复次数30,进样重复次数9。以 $^{205}\text{Tl}$ 为内标,样品浓度通过稀释控制在5~100 μg/L范围内,分别测定Pb 4种同位素 $^{204}\text{Pb}$ 、 $^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}$ 的浓度,以4个分浓度之和计算总浓度,以浓度比计算Pb同位素比值。此条件下,标准滤膜SRM2783和

Pb同位素丰度标准物质SRM981结果均落于参考值范围内。

### 1.5 质量控制

以校正方程校正<sup>204</sup>Hg对<sup>204</sup>Pb测定的同量异位素干扰；采用标准滤膜SRM2783进行Pb总量测定的质量控制；用Pb同位素标准物质SRM981，采用校正系数法进行Pb同位素测定的质量控制。

### 1.6 空气质量指数(air quality index, AQI)<sup>[10]</sup>

$AQI = \max\{IAQI_1, IAQI_2, IAQI_3, \dots, IAQI_n\}$ 。式中： $IAQI$ 为空气质量分指数； $n$ 为污染项目，包括二氧化硫、二氧化氮和一氧化碳的1 h和24 h平均值，臭氧的1 h和8 h平均值， $PM_{10}$ 和 $PM_{2.5}$ 的24 h平均值。 $AQI$ 由政府环保部门实时发布，是空气质量评级的依据， $AQI$ 为0~50、51~100、101~150、151~200、201~300、>300时对应的空气质量类别分别为优、良、轻度污染、中度污染、重度污染、严重污染。 $IAQI$ 是单项污染物的空气质量指数， $IAQI_{PM_{2.5}}$ 为0~50、51~100、101~150、151~200、201~300、>300时对应的 $PM_{2.5}$ 24 h平均值分别为0~35、36~75、76~115、116~150、151~250、>250  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。

### 1.7 潜在生态危害指数(potential ecological risk index, RI)估算

基于重金属的生物毒性，可应用RI评价重金属污染的生态危害，其公式<sup>[7, 11]</sup>为： $RI = \sum Er$ ,  $Er = Tr \times C_f$ ,  $C_f = C/Cn$ ,  $C = 10^6 \times \rho_{\text{Pb}} / \rho_{PM_{2.5}}$ 。式中： $RI$ 为多种重金属的潜在生态危害指数； $Er$ 为Pb单个重金属的潜在生态危害指数； $Tr$ 为单个重金属的毒性系数； $C_f$ 为单个重金属的污染系数； $C$ 为单个重金属的含量实测值； $Cn$ 为该重金属的背景值。对于Pb,  $Tr=5$ ,  $\rho_{\text{Pb}}$ 为样品中Pb

质量浓度测定值( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ),  $\rho_{PM_{2.5}}$ 为样品的 $PM_{2.5}$ 质量浓度测定值( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )。 $Er < 40$ 、 $40\sim 79$ 、 $80\sim 159$ 、 $160\sim 319$ 、 $\geq 320$ 对应的生态危害程度分别为轻微、中、较强、强、极强。

### 1.8 统计学分析

采用Excel 2007和SPSS 16.0软件进行统计分析。 $PM_{2.5}$ 质量浓度和Pb质量浓度数据均不符合正态分布，相关分析和两组或多组均数比较均使用非参数检验；对滤膜样品中 $PM_{2.5}$ 质量浓度与Pb质量浓度进行Spearman秩相关分析；对春(3—5月)、夏(6—8月)、秋(9—11月)、冬(12—2月)四个季节 $PM_{2.5}$ 质量浓度和Pb质量浓度进行多独立样本的非参数检验(Kruskal-Wallis H检验)，再分别进行两独立样本的非参数检验(Mann-Whitney U检验)；对5个采样点Pb浓度进行多独立样本的非参数检验(Kruskal-Wallis H检验)。双侧检验，检验水准 $\alpha=0.05$ 。

## 2 结果

### 2.1 样品中Pb的质量浓度

410份滤膜样品中Pb的年质量浓度中位数( $P_{25}, P_{75}$ )为0.032(0.018, 0.053)  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，范围为0.012~0.148  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，采样点1的Pb质量浓度呈现春>冬>秋>夏的特征，其他采样点均呈现冬>春>秋>夏的特征，均冬春季节较高，见表1。不同季节Pb的质量浓度总体差异有统计学意义( $\chi^2=56.77, P=0.000$ )，两两季节之间的差异也均有统计学意义( $Z=-2.13\sim-6.80, P=0.000\sim0.033$ )。5个采样点Pb浓度组间差异无统计学意义( $\chi^2=8.748, P=0.068$ )。

表1 上海市浦东新区大气 $PM_{2.5}$ 中Pb的季节和区域分布 [ $M(P_{25}, P_{75})(\mu\text{g}/\text{m}^3)$ ]

Table 1 Seasonal and regional distributions of lead concentrations in samples

季节 Season	采样点1( $n=82$ ) Sampling site 1	采样点2( $n=79$ ) Sampling site 2	采样点3( $n=83$ ) Sampling site 3	采样点4( $n=82$ ) Sampling site 4	采样点5( $n=84$ ) Sampling site 5	合计( $n=410$ ) Total
春(Spring, $n=104$ )	0.050(0.032, 0.064)	0.041(0.027, 0.058)	0.038(0.028, 0.054)	0.037(0.025, 0.052)	0.026(0.017, 0.041)	0.038(0.023, 0.055)
夏(Summer, $n=101$ )	0.022(0.010, 0.034)	0.020(0.009, 0.036)	0.020(0.010, 0.034)	0.018(0.011, 0.033)	0.018(0.011, 0.027)	0.020(0.010, 0.034)
秋(Autumn, $n=107$ )	0.025(0.014, 0.047)	0.038(0.023, 0.054)	0.031(0.021, 0.065)	0.030(0.016, 0.049)	0.020(0.014, 0.049)	0.027(0.016, 0.050)
冬(Winter, $n=98$ )	0.047(0.031, 0.058)	0.044(0.034, 0.064)	0.045(0.023, 0.086)	0.039(0.028, 0.071)	0.038(0.024, 0.066)	0.042(0.025, 0.066)
合计(Total, $n=410$ )	0.033(0.020, 0.054)	0.040(0.022, 0.056)	0.032(0.020, 0.057)	0.031(0.017, 0.050)	0.024(0.016, 0.041)	0.032(0.018, 0.053)

### 2.2 $PM_{2.5}$ 质量浓度与Pb质量浓度的相关性

$PM_{2.5}$ 的年质量浓度中位数( $P_{25}, P_{75}$ )为60.2(41.7, 90.9)  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ，不同季节滤膜样品 $PM_{2.5}$ 质量浓度中位数( $P_{25}, P_{75}$ )分别为：春68.2(51.2, 100.5)  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、夏47.2(36.8, 67.2)  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、秋53.2(35.6, 81.8)  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、冬79.5(53.6, 117.1)  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。四个季节 $PM_{2.5}$ 的质量浓度

组间差异有统计学意义( $\chi^2=40.78, P=0.000$ )，春季和冬季之间的差异无统计学意义( $Z=0.170, P=0.170$ )，夏季和秋季之间的差异无统计学意义( $Z=-1.018, P=0.309$ )，其他季节之间的差异均有统计学意义( $Z=-3.309\sim-5.357, P=0.000\sim0.001$ )。 $PM_{2.5}$ 质量浓度呈现冬=春>秋=夏的特征。410份滤膜样品中 $PM_{2.5}$

质量浓度与 Pb 质量浓度呈正相关( $r=0.815$ ,  $P<0.05$ ), 春、夏、秋、冬四个季节样品中 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度与 Pb 质量浓度均呈正相关( $r$  分别为 0.645、0.843、0.814、0.859, 均  $P<0.05$ )。

### 2.3 潜在生态危害指数估算

410 份样品中 Pb 实测值(即 Pb 质量浓度/PM<sub>2.5</sub> 质量浓度)的均值 537 μg/g, Pb 的背景值取上海土壤背景平均值<sup>[12]</sup>25.0 μg/g。Pb 的 RI 为 107, 生态危害程度为较强。

### 2.4 样品 Pb 同位素比值

410 份石英滤膜样品的  $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  范围分别为 0.053 34~0.055 40、0.845 27~0.866 31、2.060 57~2.119 06, 均值 ± 标准差分别为  $0.054\ 79 \pm 0.000\ 28$ 、 $0.857\ 32 \pm 0.002\ 93$ 、 $2.098\ 91 \pm 0.008\ 41$ 。不同季节 Pb 同位素比值结果见表 2。四个季节 Pb 同位素比值( $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ )均值的 RSD 分别为 0.15%、0.07%、0.09%, 与同位素测定方法的精密度(0.30%、0.10%、0.10%)相近。不同季节  $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  均值(夏、秋、春、冬分别为 0.054 71、0.054 72、0.054 85、0.054 87)之间的差异与同位素比值测量偏差( $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  为样品均值 × 方法精密度  $RSD=0.054\ 79 \times 0.30\% \approx 0.000\ 2$ )无明显区别。不同季节  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  均值(秋、夏、春、冬分别为 0.856 66、0.857 10、0.857 71、0.857 87)之间的差异与同位素比值测量偏差( $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  为 0.001 0)无明显区别。不同季节  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  均值(秋、夏、冬、春分别为 2.096 36、2.098 86、2.099 70、2.100 83)之间, 夏、冬、春季值相当, 且与同位素比值测量偏差( $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  为 0.003)无明显区别。

不同空气质量下 Pb 同位素比值结果见表 2。五种空气质量情况下 Pb 同位素比值均值的 RSD  $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  分别为 0.12%、0.07%、0.12%, 与方法的同位素测定精密度(0.30%、0.10%、0.10%)相近。不同空气质量  $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  均值(优、良、轻度污染、中度污染、重度污染分别为 0.054 73、0.054 75、0.054 86、0.054 85、0.054 86)之间的差异与同位素比值测量偏差( $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  为 0.000 2)无明显区别。不同空气质量  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  均值(优、良、轻度污染、中度污染、重度污染分别为 0.857 65、0.856 70、0.858 07、0.857 60、0.858 21)之间的差异与同位素比值测量偏差( $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  为 0.001 0)无明显区别。不同空气质量  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  均值(优、良、轻度污染、中度

污染、重度污染分别为 2.097 13、2.097 32、2.101 72、2.101 59、2.102 07)之间的差异与同位素比值测量偏差( $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  为 0.003 0)相比,  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  在空气质量轻度污染、中度污染和重度污染时相当, 高于空气质量优和良时。

表 2 上海市浦东新区不同季节和 PM<sub>2.5</sub> 值时样品 Pb 同位素比值

Table 2 Lead isotope ratios in samples collected in different seasons and of different PM<sub>2.5</sub> concentration groups

变量(Variable)	同位素比值(Isotope ratios)		
	$^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$
季节(Season)			
春(Spring, n=104)	$0.054\ 85 \pm 0.000\ 26$	$0.857\ 71 \pm 0.002\ 79$	$2.100\ 83 \pm 0.008\ 13$
夏(Summer, n=101)	$0.054\ 71 \pm 0.000\ 29$	$0.857\ 10 \pm 0.002\ 77$	$2.098\ 86 \pm 0.008\ 19$
秋(Autumn, n=107)	$0.054\ 72 \pm 0.000\ 32$	$0.856\ 66 \pm 0.003\ 67$	$2.096\ 36 \pm 0.010\ 58$
冬(Winter, n=98)	$0.054\ 87 \pm 0.000\ 18$	$0.857\ 87 \pm 0.002\ 11$	$2.099\ 70 \pm 0.004\ 98$
PM <sub>2.5</sub> (μg/m <sup>3</sup> )			
<35(n=71)	$0.054\ 73 \pm 0.000\ 33$	$0.857\ 65 \pm 0.003\ 27$	$2.097\ 13 \pm 0.009\ 39$
36~75(n=188)	$0.054\ 75 \pm 0.000\ 31$	$0.856\ 70 \pm 0.003\ 31$	$2.097\ 32 \pm 0.009\ 75$
76~115(n=91)	$0.054\ 86 \pm 0.000\ 18$	$0.858\ 07 \pm 0.001\ 96$	$2.101\ 72 \pm 0.004\ 84$
116~150(n=44)	$0.054\ 85 \pm 0.000\ 15$	$0.857\ 60 \pm 0.001\ 92$	$2.101\ 59 \pm 0.004\ 16$
151~250(n=16)	$0.054\ 86 \pm 0.000\ 22$	$0.858\ 21 \pm 0.002\ 17$	$2.102\ 07 \pm 0.003\ 98$
合计(Total, n=410)	$0.054\ 79 \pm 0.000\ 28$	$0.857\ 32 \pm 0.002\ 93$	$2.098\ 91 \pm 0.008\ 41$

### 3 讨论

本研究应用 ICP-MS 方法测定了浦东新区 410 份滤膜样品, 结果显示, PM<sub>2.5</sub> 的年质量浓度中位数为 60.2 μg/m<sup>3</sup>, 是我国环境空气质量浓度限值二级标准<sup>[13]</sup>规定的年平均值 35 μg/m<sup>3</sup> 的近两倍。全年样品 Pb 的质量浓度中位数为 0.032 μg/m<sup>3</sup>, 低于我国规定的 0.5 μg/m<sup>3</sup> 标准, 且低于大多数其他城市报道值<sup>[14]</sup>, 如低于北京(0.415 μg/m<sup>3</sup>)<sup>[15]</sup>、太原(0.271 μg/m<sup>3</sup>)<sup>[8]</sup>, 略低于广州(0.051 μg/m<sup>3</sup>)<sup>[7]</sup>。可见, 浦东新区 PM<sub>2.5</sub> 总量虽然超标, 但 Pb 污染处于较低水平, 处于可控范围。但 Pb 的潜在生态危害指数显示危害程度为较强, 为 107, 高于广州(59)<sup>[7]</sup>、泉州(33)<sup>[16]</sup>, 应引起重视。

Pb 同位素测量的精密度决定了对样品差异的区分能力的强弱, 精密度越好, 区分能力越强。文献报道通常以同位素比值 RSD 是否小于 0.20%~0.40% 作为样品能否区分的标准<sup>[14, 17]</sup>。本实验条件下 RSD  $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb} < 0.30\%$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb} \leqslant 0.10\%$ 、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb} \leqslant 0.10\%$ , 满足分析的精度需求。同位素比值结果显示, 上海市浦东新区  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ ( $0.857\ 32 \pm 0.002\ 93$ ) 低于北京(0.869 7~0.871 9)<sup>[18]</sup> 和上海四区(宝山、普陀、黄埔、嘉定)( $0.863 \pm 0.030$ )<sup>[19]</sup>, 高于嘉兴( $0.848\ 8 \pm 0.006\ 4$ )<sup>[20]</sup> 和太原(0.843 2)<sup>[8]</sup>, 而  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ ( $2.098\ 91 \pm 0.008\ 41$ )

低于北京( $2.1242\sim2.1274$ )<sup>[18]</sup>、上海四区(宝山、普陀、黄埔、嘉定)( $2.113\pm0.009$ )<sup>[19]</sup>和嘉兴( $2.1072\pm0.0140$ )<sup>[20]</sup>,高于太原( $2.057$ )<sup>[8]</sup>。

目前认为PM<sub>2.5</sub>中Pb来源主要有交通(包括柴油车、汽油车等)、燃煤、工业生产(如钢铁、冶金等)、扬尘等;不同城市Pb的主要来源有所差别,但燃煤排放是常见的主要污染来源,如北京主要是燃煤和涉Pb有色冶金<sup>[18]</sup>,上海四区(宝山、普陀、黄埔、嘉定)主要是工业所需的燃煤排放<sup>[19]</sup>,嘉兴主要是燃煤电厂<sup>[20]</sup>。根据TAN等<sup>[21]</sup>的研究可知上海各种污染源排放的<sup>207</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb、<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb特征,水泥、燃煤粉尘、冶金尘、土壤、汽车尾气(无Pb)、汽车尾气(含Pb)的<sup>207</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb分别为 $0.8598\pm0.0009$ 、 $0.8596\pm0.0023$ 、 $0.8529\pm0.0029$ 、 $0.8410\pm0.0020$ 、 $0.8715\pm0.0042$ 、 $0.9009\pm0.0010$ ,<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb分别为 $2.1036\pm0.0018$ 、 $2.1111\pm0.0008$ 、 $2.0768\pm0.0076$ 、 $2.0860\pm0.0020$ 、 $2.1240\pm0.0061$ 、 $2.1938\pm0.0073$ 。本研究Pb同位素特征(<sup>207</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb、<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb分别为 $0.85732\pm0.00293$ 、 $2.09891\pm0.00841$ )与水泥污染源和燃煤粉尘污染源排放特征最为相近,与汽车尾气污染源特征差别明显,尤其含Pb汽车尾气。本研究<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb在空气质量污染时( $2.10159\sim2.10207$ )高于空气质量优良( $2.09713$ 和 $2.09732$ )时,且与水泥污染源值更接近( $2.1036$ ),与水泥是PM<sub>2.5</sub>的主要来源相符。上海自1997年全面推广无Pb汽油,PM<sub>2.5</sub>的主要来源已经不是汽车尾气中的Pb,而是水泥和燃煤粉尘,这可能与这上海工业和城市化建设的飞速发展,以及由此而产生的大量水泥和燃煤消耗有关。

浦东新区PM<sub>2.5</sub>质量浓度和Pb质量浓度均冬季高于夏季,与上海宝山区报道相似<sup>[22]</sup>;采样点之间Pb质量浓度差异则无统计学意义,与广州两区结果相似<sup>[7]</sup>;而同位素比值则无季节差异,与太原市<sup>207</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb、<sup>208</sup>Pb/<sup>206</sup>Pb均夏季高于冬季有所不同<sup>[8]</sup>。可能是由于上海能源供应主要是热电厂燃烧等集中供应,冬季农村燃烧散煤取暖现象并不多见,冬夏季能源结构没有明显不同,因此同位素比值没有季节差异。Pb总含量夏低冬高,可能是冬季大气层稳定、多逆温层,颗粒物不易扩散,而夏季大气扩散状况较好,且上海夏季多雨,雨水冲刷有利于颗粒物扩散,致使冬季污染物含量较夏季高。

综上所述,PM<sub>2.5</sub>的日均质量浓度高于环境空气限值二级标准,但Pb污染处于较低水平,Pb的潜在生

态危害指数显示危害程度为较强,应引起重视。Pb总含量冬季高于夏季,而同位素比值则冬季与夏季无差异,Pb污染来源主要是水泥的生产使用和燃煤排放,需加强冬季大气PM<sub>2.5</sub>中Pb的监测和预防,并重点控制水泥和燃煤Pb排放。

## 参考文献

- [1] WU X, COBBINA SJ, MAO G, et al. A review of toxicity and mechanisms of individual and mixtures of heavy metals in the environment [J]. Environ Sci Pollut Res, 2016, 23(9): 8244-8259.
- [2] ALARCON WA. Elevated blood lead levels among employed adults—United States, 1994–2013 [J]. Morb Mortal Weekly Rep, 2016, 63(55): 59-65.
- [3] SCHNUR J, JOHN R M. Childhood lead poisoning and the new Centers for Disease Control and Prevention guidelines for lead exposure [J]. J Am Assoc Nurse Pract, 2014, 26(5): 238-247.
- [4] CAKMAK S, HEBBERN C, PINAULT L, et al. Associations between long-term PM<sub>2.5</sub> and ozone exposure and mortality in the Canadian Census Health and Environment Cohort (CANCHEC), by spatial synoptic classification zone [J]. Environ Int, 2018, 111(2): 200-211.
- [5] FANG D, WANG Q, LI H, et al. Mortality effects assessment of ambient PM<sub>2.5</sub> pollution in the 74 leading cities of China [J]. Sci Total Environ, 2016(569/570): 1545-1552.
- [6] 林勇征, 吴鹏盛. 铅同位素示踪的研究现状[J]. 科技创新与应用, 2016(28): 60-61.
- [7] 李敏, 连晓文, 王静, 等. 广州两城区大气PM<sub>2.5</sub>金属成分的污染特征[J]. 环境与职业医学, 2016, 33(7): 650-656.
- [8] 闫雨龙, 郭利利, 张桂香, 等. 太原市大气PM<sub>2.5</sub>中铅同位素特征研究[J]. 地球与环境, 2015, 43(3): 279-284.
- [9] 环境监测 分析方法标准制修订技术导则: HJ 168—2010 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2008.
- [10] 环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行): HJ 633—2012[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2016.
- [11] HAKANSON L. An ecological risk index for aquatic pollution control—a sedimentological approach [J]. Water Res, 1980, 14(8): 975-1001.
- [12] 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.
- [13] 环境空气质量标准: GB 3095—2012[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2016.

- [14] 邹天森, 张金良, 陈昱, 等. 中国部分城市空气环境铅含量及分布研究[J]. 中国环境科学, 2015, 35(1): 23-32.
- [15] 陈曦, 王小燕, 刘洋, 等. ICP-MS 用于北京市 PM<sub>2.5</sub> 中铅及其同位素的形态分析[J]. 光谱学与光谱分析, 2009, 29(2): 515-518.
- [16] 张棕巍, 胡恭任, 于瑞莲, 等. 泉州市大气降尘中金属元素污染特征及来源解析[J]. 环境科学, 2016, 37(8): 2881-2888.
- [17] 曾静, 王京宇, 刘雅琼, 等. ICP-MS 分析四城市血铅浓度及同位素指纹地区特征[J]. 光谱学与光谱分析, 2011, 31(11): 3101-3104.
- [18] 刘咸德, 朱祥坤, 董树屏, 等. 北京市大气颗粒物分级样品的铅同位素丰度比测量与来源研究[J]. 质谱学报, 2011,
- [19] CHEN J, TAN M, LI Y, et al. Characteristics of trace elements and lead isotope ratios in PM<sub>2.5</sub> from four sites in Shanghai[J]. J Hazard Mater, 2008, 156(1/2/3): 36-43.
- [20] 谷超. 燃煤电厂周边环境中汞、铅分布特征及其迁移转化规律研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2017.
- [21] TAN MG, ZHANG GL, LI XL, et al. Comprehensive study of lead pollution in shanghai by multiple techniques[J]. Anal Chem, 2006, 78(23): 8044-8050.
- [22] 严向宏. 上海宝山区细颗粒气溶胶 PM<sub>2.5</sub> 特征[J]. 广州化工, 2011, 39(3): 130-132.

(收稿日期: 2018-03-04; 录用日期: 2018-07-20)

(英文编辑: 汪源; 编辑: 汪源; 校对: 王晓宇)

## 【告知栏】

### 《环境与职业医学》杂志入选《中文核心期刊要目总览》(2017年版)核心期刊

2018年9月, 北京大学图书馆《中文核心期刊要目总览》2017年版编委会依据文献计量学的原理和方法, 经研究人员对相关文献的检索、统计和分析, 以及学科专家评审, 公布了最新入选的核心期刊, 《环境与职业医学》成为“预防医学、卫生学”类的核心期刊之一。

评选核心期刊的工作, 是运用科学方法对各种刊物在一定时期内所刊载论文的学术水平和学术影响力进行综合评价的一种科研活动, 研究工作量浩大。北京地区十几所高校图书馆、中国科学院文献情报中心、重庆维普资讯有限公司、中国人民大学书报资料中心、中国学术期刊(光盘版)电子杂志社、中国科学学技术信息研究所、北京万方数据股份有限公司、国家图书馆、中国社会科学院评价研究院等相关部门的百余位专家学者和期刊工作者参加了研究。

对于核心期刊的评价仍采用定量评价和定性评审相结合的方法。定量评价指标体系采用了被摘量(全文、摘要)、被摘率(全文、摘要)、被引量、他引量(期刊、博士论文、会议)、影响因子、他引影响因子、5年影响因子、5年他引影响因子、特征因子、论文影响分值、论文被引指数、互引指数、获奖或被重要检索工具收录、基金论文比(国家级、省部级)、Web 下载量、Web 下载率 16 个评价指标, 选作评价指标统计源的数据库及文摘刊物达 49 种, 统计到的文献数量共计 93 亿余篇次, 涉及期刊 13 953 种。参加核心期刊评审的学科专家近 8 千位。经过定量筛选和专家定性评审, 从我国正在出版的中文期刊中评选出 1981 种核心期刊。

多年来, 本刊持续入选中文核心期刊, 离不开各位编委、审稿专家、作者和读者的支持和关注, 特此志谢! 衷心希望广大读者和作者一如既往支持本刊工作, 踊跃投稿!

