

2019—2020 年兰州市大气 PM_{2.5} 中金属元素污染特征及健康风险评估

李盛¹, 王玉^{2a}, 高青^{2b}, 郑艳妮¹, 杨海霞³, 魏巧珍³, 冯亚莉^{2a}, 李守禹^{2a}, 李普⁴, 刘琼⁵, 任晓卫^{2b}, 王称⁶

1. 兰州市第一人民医院公共卫生科, 甘肃 兰州 730050
2. 兰州大学 a. 基础医学院 b. 公共卫生学院, 甘肃 兰州 730000
3. 甘肃省疾病预防控制中心公共卫生科, 甘肃 兰州 730000
4. 白银市第二人民医院, 甘肃 白银 730900
5. 兰州市疾病预防控制中心, 甘肃 兰州 730030
6. 甘肃省妇幼保健院, 甘肃 兰州 730050

摘要:

[背景] 大气污染物中 PM_{2.5} 及其吸附的金属元素是影响公众健康的重要因素。

[目的] 探究 2019—2020 年兰州市大气 PM_{2.5} 中金属元素的分布特征及金属来源, 并评估金属元素经吸入途径对不同人群的健康风险。

[方法] 于 2019 年 1 月至 2020 年 12 月在兰州市两区(城关区和西固区)定期监测 PM_{2.5} 及金属元素 [锑(Sb)、铝(Al)、砷(As)、铍(Be)、镉(Cd)、铬(Cr)、汞(Hg)、铅(Pb)、锰(Mn)、镍(Ni)、硒(Se)和钨(Ti)] 的质量浓度(后简称: 浓度)(因 Be、Cr、Hg、Ni 和 Se 5 种元素检出率 < 70%, 后续未做分析), 用中位数 M 和第 25、75 百分位数(P_{25} , P_{75})描述不符合正态分布的 PM_{2.5} 和金属元素浓度, 按 GB 3095—2012《环境空气质量标准》中二级浓度限值进行比对; 两组中位数的差异比较用 Mann-Whitney U 秩和检验, 多组中位数比较采用 Kruskal-Wallis H 秩和检验; 采用富集因子(EF)法和主成分分析法对金属的污染程度及其来源进行评价; 利用终生致癌风险(ILC)模型和非致癌风险评估模型的总危害指数(HI)及危害商值(HQ), 分别对 PM_{2.5} 中 5 种非致癌金属(Sb、Al、Pb、Mn、Ti)和 2 种致癌金属(As、Cd)进行健康风险评估。

[结果] 兰州市 2019、2020 年 PM_{2.5} 浓度的中 $M(P_{25}, P_{75})$ 分别为 38.50(26.00, 65.00)和 41.00(29.00, 63.10) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。2020 年与 2019 年之间 PM_{2.5} 浓度差异无统计学意义($Z=-0.989$, $P>0.05$)。各金属元素浓度的 M 由高到低为: $\text{Al}>\text{Pb}>\text{Mn}>\text{As}>\text{Cd}>\text{Sb}>\text{Ti}$, 且 2019 年各金属元素年均浓度均高于 2020 年($P<0.05$)。城关区和西固区 PM_{2.5} 浓度的 $M(P_{25}, P_{75})$ 分别为 52.98(17.00, 61.00)、55.40(17.00, 67.00) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 差异无统计学意义($P<0.05$); 城关区 Sb 和 Al 的浓度均低于西固区($P<0.05$), 其他金属元素的浓度在两区之间无差异($P>0.05$)。而春夏秋冬四个季节比较, 兰州市 PM_{2.5} 和 7 种金属元素的浓度均存在季节差异(除 $P_{\text{Al}}=0.007$ 外, 其余均 $P<0.001$)。富集因子法结果显示: 6 种金属元素(Sb、Al、As、Cd、Pb 和 Ti)的 EF 值均大于 1。其中, 除 As 外, 其他金属元素的 EF 值均大于 10, 且 Al 和 Cd 的 EF 值均大于 100。主成分分析法结果显示, 三个主成分方差贡献率分别为 45.61%、24.22%和 14.42%, 累计贡献率达到 84.25%。主成分 1 包括 Pb、As、Cd 和 Sb, 主成分 2 包括 Al 和 Mn, 主成分 3 为 Ti。5 种金属非致癌风险从高到低依次为: $\text{Al}>\text{Mn}>\text{Pb}>\text{Ti}>\text{Sb}$, 其中除 Al 元素对成人的 HQ 值大于 1 外, 其余 4 种非致癌金属元素对成人和儿童 HQ 值均小于 1。致癌金属 As 对成年男性、成年女性及儿童的 ILC 值分别为 2.68×10^{-5} 、 2.51×10^{-5} 和 1.45×10^{-5} ; 致癌金属 Cd 对成年男性、成年女性及儿童的 ILC 值分别为 1.53×10^{-6} 、 1.43×10^{-6} 和 8.26×10^{-7} 。

[结论] 兰州市存在大气 PM_{2.5} 及其金属污染情况, 其中 As 和 Cd 对人群可能存在潜在致癌风险。

关键词: PM_{2.5}; 金属元素; 富集因子; 主成分分析; 健康风险

Pollution characteristics and health risk assessment of metal elements in atmospheric PM_{2.5} in Lanzhou City from 2019 to 2020 LI Sheng¹, WANG Jinyu^{2a}, GAO Qing^{2b}, ZHENG Yanni¹, YANG Haixia³, WEI Qiaozhen³, FENG Yali^{2a}, LI Shouyu^{2a}, LI Pu⁴, LIU Qiong⁵, REN Xiaowei^{2b}, WANG Cheng⁶ (1. Department of Public Health, Lanzhou First People's Hospital, Lanzhou, Gansu 730050,



DOI 10.11836/JEOM21400

基金项目

甘肃省科技计划资助(20YF8FA075, 20CX9 FA134); 兰州市卫健委科技计划项目(2019-001)

作者简介

李盛(1976—), 男, 学士, 主任医师;
E-mail: 1178708407@qq.com

通信作者

王玉, E-mail: wangjinyu@lzu.edu.cn

伦理审批 已获取

利益冲突 无申报

收稿日期 2021-09-05

录用日期 2022-03-15

文章编号 2095-9982(2022)05-0519-08

中图分类号 R12

文献标志码 A

引用

李盛, 王玉, 高青, 等. 2019—2020 年兰州市大气 PM_{2.5} 中金属元素污染特征及健康风险评估 [J]. 环境与职业医学, 2022, 39(5): 519-526.

本文链接

www.jeom.org/article/cn/10.11836/JEOM21400

Funding

This study was funded.

Correspondence to

WANG Jinyu, E-mail: wangjinyu@lzu.edu.cn

Ethics approval Obtained

Competing interests None declared

Received 2021-09-05

Accepted 2022-03-15

To cite

LI Sheng, WANG Jinyu, GAO Qing, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of metal elements in atmospheric PM_{2.5} in Lanzhou City from 2019 to 2020[J]. Journal of Environmental and Occupational Medicine, 2022, 39(5): 519-526.

Link to this article

www.jeom.org/article/en/10.11836/JEOM21400

China; 2.a. School of Basic Medicine b. School of Public Health, Lanzhou University, Lanzhou, Gansu 730000, China; 3. Department of Public Health, Gansu Provincial Centre for Disease Control and Prevention, Lanzhou, Gansu 730000, China; 4. Baiyin Second People's Hospital, Baiyin, Gansu 730900, China; 5. Lanzhou Center for Disease Control and Prevention, Lanzhou, Gansu 730030, China; 6. Gansu Provincial Maternity and Child-care Hospital, Lanzhou, Gansu 730050, China)

Abstract:

[Background] Air pollutants PM_{2.5} and its adsorbed metal elements are important factors affecting public health.

[Objective] To explore the distribution characteristics and sources of metal elements in atmospheric PM_{2.5} in Lanzhou from 2019 to 2020, and to assess the health risks of metal elements to different groups of residents through inhalation.

[Methods] From January 2019 to December 2020 in two districts of Lanzhou City (Chengguan District and Xigu District), regular PM_{2.5} and metal elements [antimony (Sb), aluminum (Al), arsenic (As), beryllium (Be), cadmium (Cd), chromium (Cr), mercury (Hg), lead (Pb), manganese (Mn), nickel (Ni), selenium (Se), and thallium (Tl)] were regularly monitored, and their concentrations were described by the median (*M*) and 25th and 75th percentiles (*P*₂₅, *P*₇₅) as not following a normal distribution (because the detection rates of the five elements Be, Cr, Hg, Ni, and Se were less than 70%, the five elements were not included in subsequent analysis), and then compared with the secondary concentration limits in the Ambient Air Quality Standards (GB 3095-2012). The differences between the medians of the two groups were compared by the Mann-Whitney *U* rank sum test, and the differences among the medians of multiple groups were compared by the Kruskal-Wallis *H* rank sum test; the enrichment factor (EF) method and principal component analysis were used to evaluate the pollution degree of the metals and their sources; the health risks of five non-carcinogenic metals (Sb, Al, Pb, Mn, and Tl) and two carcinogenic metals (As and Cd) in PM_{2.5} were evaluated by hazard index (HI) and hazard quotient (HQ) using the incremental lifetime cancer risk (LCR) model and the non-carcinogenic risk assessment model, respectively.

[Results] The PM_{2.5} concentrations [*M* (*P*₂₅, *P*₇₅)] in Lanzhou City were 38.50 (26.00, 65.00) and 41.00 (29.00, 63.10) μg·m⁻³ in 2019 and 2020, respectively, and the difference was not statistically significant (*Z*=-0.989, *P*>0.05). The average levels of the metal elements from high to low were: Al>Pb>Mn>As>Cd>Sb>Tl, and the annual average concentration of each metal element in 2019 was higher than that in 2020 (*P*<0.05). The *M* (*P*₂₅, *P*₇₅) of PM_{2.5} concentrations in Chengguan and Xigu districts were 52.98 (17.00, 61.00) and 55.40 (17.00, 67.00) μg·m⁻³, respectively, with no statistically significant differences (*P*<0.05); the concentrations of Sb and Al in Chengguan District were lower than those in Xigu District (*P*<0.05), and the concentrations of other metal elements were not different between the two areas (*P*>0.05). There were seasonal differences in the concentrations of PM_{2.5} and seven metal elements in Lanzhou City (except *P*_{Al}=0.007, the other *P*_s<0.001). The results of the enrichment factor method showed that the EF values of the six metals (Sb, Al, As, Cd, Pb and Tl) were all greater than 1. Among them, except As, the EF values of other metal elements were all greater than 10, and the EF values of Al and Cd were both greater than 100. The results of principal component analysis showed that the variance contributions of the three principal components were 45.61%, 24.22%, and 14.42%, and the cumulative contribution reached 84.25%. The principal component 1 included Pb, As, Cd, and Sb, the principal component 2 included Al and Mn, and the principal component 3 contained Tl. The non-carcinogenic risks of the five metals were, in descending order, Al>Mn>Pb>Tl>Sb, among which the HQ values of the remaining four metals were less than 1 for adults and children, except the HQ value of Al for adults, which was greater than 1. The ILC values of carcinogenic metal As for adult males, adult females, and children were 2.68×10⁻⁵, 2.51×10⁻⁵, and 1.45×10⁻⁵, respectively; the ILC values of carcinogenic metal Cd for adult males, adult females, and children were 1.53×10⁻⁶, 1.43×10⁻⁶, and 8.26×10⁻⁷, respectively.

[Conclusion] There is pollution of atmospheric PM_{2.5} and its adsorbed metal elements in Lanzhou. As and Cd elements may pose potential carcinogenic risks to the residents.

Keywords: PM_{2.5}; metal element; enrichment factor; principal component analysis; health risk

PM_{2.5}是直径小于2.5 μm的细颗粒物,主要来源于土壤扬尘、森林大火等自然环境和交通污染、各种燃料燃烧等人类活动,而人为来源造成了更多的大气污染^[1]。研究表明,PM_{2.5}短期暴露与心血管和呼吸系统疾病之间存在正相关^[2],PM_{2.5}长期暴露与人群非意外死亡率及心血管疾病、肺癌和慢性阻塞性肺病死亡率均呈显著正相关^[3]。金属元素作为PM_{2.5}载带的重要组分,可以通过吸入和皮肤暴露等途径进入人体,因其在生态系统和人类中的高毒性、隐蔽性、持久性和生物累积性而引起公众的广泛关注^[4]。金属的过度蓄积[如锰(Mn)、锌(Zn)、铁(Fe)、铜(Cu)和镍(Ni)]

与脑老化相关的神经疾病有关^[5],金属暴露[汞(Hg)、镉(Cd)、铅(Pb)、Ni、铬(Cr)和铝(Al)]可能导致骨质疏松和骨折风险增加^[6]。美国环境保护局(Environmental Protection Agency, USEPA)已确认Cr、Ni、Cd为致癌物质。目前,国内外对PM_{2.5}的研究多集中在重金属、多环芳烃等颗粒物及其来源方面^[7],近年来,沈阳^[8]、石家庄^[9]、宁波^[10]等国内诸多地区均对大气PM_{2.5}中金属污染特征及健康风险进行分析。而目前兰州市大气PM_{2.5}的研究主要集中于分布特征、化学组成等方面^[11],但对PM_{2.5}及其金属元素的来源和健康风险的研究报道较少。本研究拟对2019—2020年兰州市PM_{2.5}及金

属元素浓度分布特征进行分析,对金属元素的污染程度及其来源进行解析,并对不同人群进行健康风险评估,有针对性地提出污染防治措施,并为控制和治理兰州市大气金属污染提供参考。

1 材料与方法

1.1 PM_{2.5} 样品采集

本研究属于横断面调查研究,采用典型调查法,结合兰州市空气污染的区域特征和工业分布特征,选取商居混合区(城关区)和核心工业区(西固区)2个PM_{2.5}样品采样点,2个采样点高度距地面10~15 m,与主干道距离大于500 m,周边无污染源以及障碍物。使用大气TSP智能中流量PM_{2.5}采样器(武汉天虹,中国)和石英纤维滤膜(Whatman,英国)于2019年1月至2020年12月采样(2020年2月因新型冠状病毒疫情影响未外出采样),每月10~16日连续采样7 d,每天24 h,采样流量为100 L·min⁻¹,采样前、后均将滤膜放进恒温恒湿箱(上海恒准仪器科技有限公司,中国)平衡24 h后进行称量,4℃避光低温保存待用,共获得PM_{2.5}样品322份。

1.2 PM_{2.5} 成分分析

根据HJ618-2011《环境空气PM₁₀和PM_{2.5}的测定重量法》测定PM_{2.5}质量浓度(后简称:浓度);取1/8采样滤膜,用硝酸溶液洗脱,水浴超声浸提后用电感耦合等离子质谱仪(Thermo公司,美国)检测PM_{2.5}中的12种金属元素锑(Sb)、Al、砷(As)、铍(Be)、Cd、Cr、Hg、Pb、Mn、Ni、硒(Se)和铊(Tl)的质量浓度,根据采样体积换算得到空气中相应金属元素的浓度,上述各元素的检出限依次为0.2、6、1.2、0.06、0.06、1.2、0.2、0.6、0.3、1.2、2、0.05 ng·m⁻³,因上述12种金属元素中的5种元素(Be、Cr、Hg、Ni、Se)在采样期间有超过30%的样品低于检测限而未检出,故本研究未对其进行后续的分析研究。

1.3 金属的来源分析

富集因子^[6](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。EF是指金属元素的浓度与所选取的标准化元素浓度比值(C_i/C_{ref})与该元素的土壤背景值与标准化元素土壤背景值的比值(B_i/B_{ref})之比,即

$$f_{EF} = \frac{C_i/C_{ref}}{B_i/B_{ref}} \quad (\text{公式 1})。 \quad \text{式中 } C_i、B_i \text{ 分别为金属元素 } i \text{ 的}$$

浓度和背景值, C_{ref} 、 B_{ref} 分别为参比元素浓度和土壤背景值。选取本研究所检测元素中背景值较高,受人为

影响较小且化学性质稳定的Mn^[7]元素作为参比元素,各元素背景值参考《中国土壤元素背景值》^[12],Sb、Al、As、Cd、Pb、Mn、Tl元素的土壤背景值依次为1.54、239.50、4.51、1.53、27.78、30.33、0.66。所计算的EF分为4级:当 $EF \leq 1$,表示该元素无富集,主要来源于土壤和自然环境;当 $1 < EF \leq 10$,表示该元素轻度富集,既有自然来源又有人为来源;当 $EF > 10$,表示该元素显著富集,主要来源于人类活动;当 $EF > 100$,表示该元素重度富集。EF值越大,说明受人为活动影响越大^[13]。

主成分分析(principle component analysis, PCA)是利用降维的思想,把多变量转化为少数几个综合变量(即主成分),常被用来分析用于污染物的分类和寻找其来源^[14]。PCA的指标包括各变量的载荷量以及各主成分的特征值、方差贡献率与累计贡献率。载荷量表示主成分与对应变量的相关系数,反映各变量与主成分的相关关系;特征值是各主成分的方差,反映了各主成分的影响力;方差贡献率是指单个变量引起的变异占总变异的比例,累计方差贡献率是所有变量引起的变异占总变异比例。主成分个数选取原则为特征值大于1且累计贡献率达80%~95%。应用SPSS 25.0软件进行主成分分析。

1.4 金属的健康风险评价

本研究根据USEPA^[15]推荐的终生致癌风险(incremental lifetime cancer risk, ILCR)模型和非致癌风险评估模型应用危害指数(hazard index, HI)和危害商值(hazard quotient, HQ),分别对PM_{2.5}中5种非致癌金属(Sb、Al、Pb、Mn、Tl)和2种致癌金属(As、Cd)进行健康风险评估^[15],计算公式如下(公式2~5)。由于人体主要以呼吸途径暴露于吸附在PM_{2.5}上的有害金属,故本研究主要分析经呼吸途径造成的健康风险,具体暴露参数参照《中国人群暴露参数手册(成人卷):摘要》^[16]和USEPA相关参考指南^[15]。

$$m_{ADD_i} = \frac{\rho_i V_{IR} V_{EF} t_{ED}}{m_{BW} t_{AT}} \quad (2)$$

$$R_{HI} = \sum R_{HQ_i} = \sum m_{ADD_i} / m'_{RfD_i} \quad (3)$$

$$R_{ILC_i} = m_{ADD_i} f_{SF} \quad (4)$$

$$R = \sum R_{ILC_i} \quad (5)$$

式中, ρ_i 为金属元素*i*的质量浓度均值,ng·m⁻³; V_{IR} 为呼吸速率值,成年男性为17.7 m³·d⁻¹,成年女性为14.5 m³·d⁻¹,儿童为8.75 m³·d⁻¹; V_{EF} 为暴露频率值,365 d·a⁻¹; t_{ED} 为暴露年限值,成人为30年,儿童为18年; m_{BW} 为体重值,成年男性为66.1 kg,成年女性

为 57.8 kg, 儿童为 36 kg; t_{AT} 为平均暴露时间值, 非致癌物为 $t_{ED} \times 365$, 致癌物为 70×365 , d; R_{HI} 为危害指数 HI 的值, 用来衡量非致癌金属风险, 是各金属元素 i 的危害商 HQ_i 值的总和; m_{ADD} 为金属元素的日均暴露量值, $mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$; m'_{RFD} 为呼吸参考浓度值, $mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1}$; R_{ILC_i} 为致癌风险 ILC_i 的值, f_{SF} 为致癌金属的强度系数值, $(mg \cdot kg^{-1} \cdot d^{-1})^{-1}$; R 为综合致癌风险值。当 HI 或 $HQ_i \leq 1$ 时, 可认为非致癌风险较小; 当 HI 或 $HQ_i > 1$ 时, 认为存在非致癌风险。当 R 或 $ILC_i < 1 \times 10^{-6}$, 认为不存在致癌风险; 当致癌风险为 $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-4}$ 时, 认为可能存在潜在致癌风险; 当致癌风险 $> 1 \times 10^{-4}$ 时, 则认为存在致癌风险。

1.5 统计学分析

采用 Microsoft Excel 2013 和 SPSS 25.0 对兰州市两区 $PM_{2.5}$ 和金属浓度进行数据整理和统计分析, 数据的正态性检验采用 Kolmogorov-Smirnov 法, 经正态检验发现, $PM_{2.5}$ 和金属浓度均不符合正态分布, 故用中位数 M 和第 25、75 百分位数 (P_{25}, P_{75}) 进行统计描述; 两个独立样本的比较用 Mann-Whitney U 秩和检验, 多个独立样本的比较用 Kruskal-Wallis H 秩和检验, 检验水准 $\alpha=0.05$, 双侧检验。通过 SPSS 25.0 对金属元素浓度进行 Kaiser-Meyer-Olkin(KMO)和 Bartlett's 检验, 得出 KMO 检验系数为 0.658, 大于 0.6, 说明各参数之间相互独立, 结构合理。Bartlett's 检验的 P 值小于 0.05, 说明各参数间存在相关性, 适合做因子分析。

2 结果

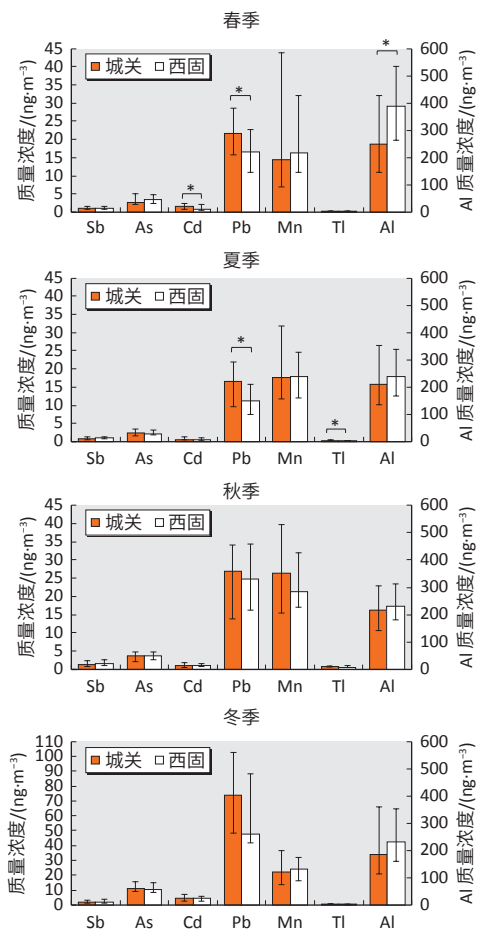
2.1 大气 $PM_{2.5}$ 浓度及金属元素特征

兰州市 2019、2020 年 $PM_{2.5}$ 浓度水平 [$M(P_{25}, P_{75})$] 见表 1, 分别为 38.50(26.00, 65.00)和 41.00(29.00, 63.10) $\mu g \cdot m^{-3}$, 均高于 GB 3095—2012《环境空气质量标准》的二级浓度限值(35 $\mu g \cdot m^{-3}$)。2020 年 $PM_{2.5}$ 浓度略高于 2019 年, 但差异无统计学意义($Z=-0.99, P>0.05$)。兰州市 2019、2020 年各金属元素浓度的中位数水平由高到低为: $Al>Pb>Mn>As>Cd>Sb>Ti$, 2019 年各金属元素浓度的平均水平平均高于 2020 年 ($P<0.05$)。其中, Pb 、 As 、 Cd 年均浓度均低于 GB 3095—2012《环境空气质量标准》中二级浓度限值(Pb 为 $500 ng \cdot m^{-3}$, Cd 为 $5 ng \cdot m^{-3}$, As 为 $6 ng \cdot m^{-3}$), 其余金属浓度缺乏参考标准。城关区和西固区 $PM_{2.5}$ 浓度水平见表 1, 二者差异无统计学意义($P>0.05$)。两区各金属元素浓度的平均水平从高到低均为: $Al>Pb>Mn>As>Cd>Sb>Ti$, 城关区 Sb 和 Al 的浓度均低于西固区 ($P<0.05$), 其他金属元素的浓度在两区之间无差异 ($P>0.05$)。分析兰州市不同季节 $PM_{2.5}$ 和金属元素的浓度分布特征, 结果见表 1, 兰州市 $PM_{2.5}$ 和金属元素的浓度存在季节差异性($P<0.05$)。

进一步分析在不同季节两区的金属元素分布特征, 见图 1, 春季城关区 Al 元素浓度低于西固区, Pb 和 Cd 元素浓度高于西固区($P<0.05$); 夏季城关区 Pb 元素和 Ti 元素浓度高于西固区; 相同季节其他金属元素浓度在两区之间的差异无统计学意义($P>0.05$)。

表 1 2019—2020 年兰州市大气中 $PM_{2.5}$ 及其金属元素浓度 [$M(P_{25}, P_{75})$]
Table 1 $PM_{2.5}$ and metal concentrations in the atmosphere of Lanzhou City during 2019—2020 [$M(P_{25}, P_{75})$]

指标	PM _{2.5} 浓度/(μg·m ⁻³)	金属元素浓度/(ng·m ⁻³)							
		Sb	Al	As	Cd	Pb	Mn	Tl	
年份	2019	38.50(26.00, 65.00)	1.52(1.01, 2.53)	311.50(195.75, 458.50)	5.04(3.02, 10.01)	1.81(0.77, 3.35)	28.95(18.48, 50.25)	27.55(20.33, 43.43)	0.48(0.32, 0.68)
	2020	41.00(29.00, 63.10)	1.01(0.66, 1.56)	190.66(127.07, 272.41)	2.60(1.90, 4.70)	0.85(0.36, 2.22)	16.23(9.72, 29.03)	13.09(8.47, 21.00)	0.36(0.22, 0.49)
	Z	-0.99	-6.19	-6.53	-6.53	-5.59	-6.79	-9.322	-4.53
	P	0.323	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001
地区	城关区	52.98(17.00, 61.00)	1.47(0.69, 1.72)	305.57(136.72, 345.00)	5.87(2.23, 7.80)	2.35(0.60, 2.78)	34.63(15.76, 41.80)	33.75(12.31, 39.13)	0.50(0.31, 0.63)
	西固区	55.40(17.00, 67.00)	1.80(0.39, 2.16)	340.75(62.53, 375.28)	5.62(1.16, 7.54)	2.02(0.10, 2.58)	30.74(4.90, 38.60)	26.10(5.66, 28.33)	0.46(0.09, 0.58)
	Z	-0.88	-2.36	-2.11	-0.51	-1.04	-1.93	-1.60	-1.55
	P	0.377	0.018	0.035	0.959	0.297	0.054	0.110	0.121
季节	春季	53.05(39.88, 68.43)	1.17(0.76, 1.54)	295.46(190.19, 480.37)	3.20(2.25, 5.08)	1.33(0.71, 2.22)	18.54(14.25, 27.83)	16.05(8.84, 35.55)	0.30(0.18, 0.40)
	夏季	28.00(23.70, 35.00)	0.95(0.67, 1.41)	214.00(152.76, 341.53)	2.29(1.75, 3.25)	0.59(0.40, 1.20)	12.40(8.79, 19.01)	17.97(11.72, 27.15)	0.34(0.24, 0.43)
	秋季	31.00(24.50, 42.00)	1.33(0.69, 2.46)	224.71(144.50, 311.55)	3.67(2.25, 4.75)	0.92(0.59, 1.67)	25.50(16.06, 34.42)	22.75(16.70, 36.54)	0.66(0.47, 0.83)
	冬季	61.00(51.30, 95.83)	1.84(1.35, 3.45)	212.19(134.25, 359.25)	10.94(8.75, 15.54)	4.38(2.66, 6.74)	65.27(43.50, 95.48)	26.10(16.85, 37.45)	0.45(0.33, 0.65)
	Z	122.44	49.15	12.16	151.22	133.36	162.73	15.11	96.11
	P	<0.001	<0.001	0.007	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001



[注] *: 城关区与西固区相比, $P < 0.05$ 。

图1 兰州市不同季节两区大气中金属浓度分布特征 [$M(P_{25}, P_{75})$]

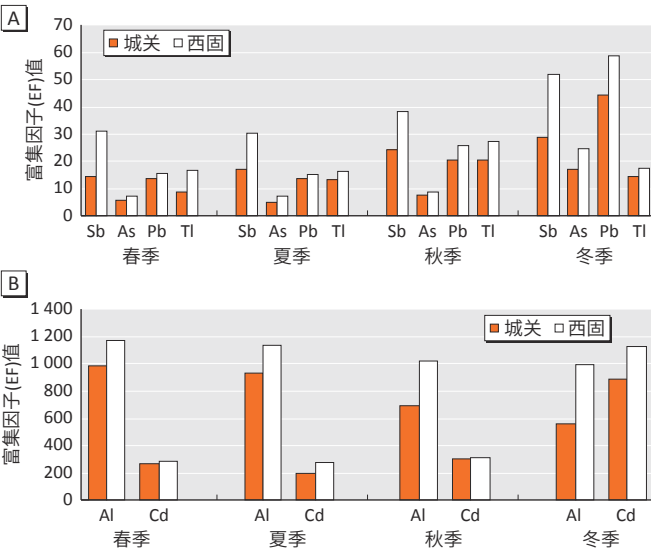
Figure 1 Concentration distribution characteristics of selected metals in two districts of Lanzhou City by seasons [$M(P_{25}, P_{75})$]

2.2 金属元素来源分析

富集因子法分析结果见图2, 6种金属(Sb、Al、As、Cd、Pb和Tl)元素的EF值均大于1。整体上, 除As外, 其他金属元素的EF值在四季均大于10, Al和Cd在四季的EF值均大于100。从地区分布上来看, 各金属元素在相同季节的EF值均表现为: 西固区大于城关区。从季节分布上来看, 除Al元素在春季的EF值最高和Tl元素在秋季的EF值最高外, 其他元素的EF值均在冬季达到最高; 其中As、Cd、Pb元素在冬季的EF值均远大于其他季节。

PCA结果见表2, 特征值大于1的主成分有3个, 分别为3.19、1.70和1.01, 累计贡献率为84.25%, 表明所代表的全部信息用3个主成分表示, 可以解释PM_{2.5}金属来源的84.25%。主成分1的方差贡献率达到45.61%, 在Pb、As、Cd、Sb元素有较高的正载荷, 分别为0.940、0.898、0.790和0.676, 比其他元素的载荷量较大且为正值, 可认为主成分1为Pb、As、Cd、Sb;

主成分2的方差贡献率达到24.22%, 在Al和Mn元素有较高的正载荷, 分别为0.906和0.843, 比其他元素的载荷量较大且为正值, 可认为主成分2为Al和Mn; 主成分3的方差贡献率达到14.42%, 在Tl元素有较高的正载荷, 为0.764, 比其他元素的载荷量较大且为正值, 可认为主成分3为Tl。



[注] A: Sb、As、Pb和Tl元素的EF值; B: Al和Cd元素的富集因子值。

图2 不同季节兰州市两区大气PM_{2.5}中金属的EF值

Figure 2 EF values of selected metals in atmospheric PM_{2.5} in two districts of Lanzhou City by seasons

表2 兰州市大气PM_{2.5}中金属元素的主成分分析

Table 2 Principal component analysis of metal elements in atmospheric PM_{2.5} in Lanzhou City

金属元素	主成分载荷		
	1	2	3
Pb	0.940	-0.158	-0.090
As	0.898	-0.199	-0.268
Cd	0.790	-0.310	-0.337
Sb	0.676	0.054	0.442
Al	0.187	0.906	-0.194
Mn	0.440	0.843	-0.015
Tl	0.440	-0.010	0.764
特征值	3.19	1.70	1.01
方差贡献率/%	45.61	24.22	14.42
累计方差贡献率/%	45.61	69.83	84.25

2.3 PM_{2.5}中金属的健康风险评价

本研究将两区的金属浓度均值作为兰州市大气PM_{2.5}中金属浓度均值, 对兰州市大气PM_{2.5}中5种非致癌金属(Sb、Al、Pb、Mn、Tl)和2种致癌金属(As、Cd)进行了健康风险评价, 结果见表3。对于非致癌风险, 各金属非致癌风险从高到低依次为: Al > Mn > Pb > Tl > Sb, 其中Al元素对成人的HQ值大于1, 其余4个

金属元素的 HQ 值均小于 1, 非致癌金属对成人的 HI 值大于 1。对于致癌风险, 金属 As 对成年男性、成年女性及儿童的 ILCR 值分别为 2.68×10^{-5} 、 2.51×10^{-5} 和 1.45×10^{-5} , 可能存在潜在致癌风险; 致癌金属 Cd 对成年男性、成年女性及儿童的 ILCR 值分别为 1.53×10^{-6} 、 1.43×10^{-6} 和 8.26×10^{-7} ; 可认为 2 种致癌金属对兰州市居民可能存在潜在致癌风险, 且表现为成年男性最高、成年女性次之、儿童最低。

表 3 兰州市大气 PM_{2.5} 中金属元素健康风险评估
Table 3 Health risk assessment of metals in atmospheric PM_{2.5} in Lanzhou City

金属元素		$\rho/(\text{ng}\cdot\text{m}^{-3})$	$\text{RfD}/(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1})$	$\text{SF}/[(\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{d}^{-1})^{-1}]$	HQ或ILC		
					成年男性	成年女性	儿童
非致癌	Sb	1.62	4×10^{-4}	—	1.08×10^{-3}	1.02×10^{-3}	0.59×10^{-3}
	Al	329.59	4×10^{-4}	—	1.10	1.03	0.60
	Pb	28.60	4.3×10^{-5}	—	7.63×10^{-2}	7.15×10^{-2}	4.13×10^{-2}
	Mn	25.04	5×10^{-5}	—	1.34×10^{-1}	1.26×10^{-1}	0.73×10^{-1}
	Tl	0.48	8×10^{-5}	—	1.61×10^{-3}	1.51×10^{-3}	0.87×10^{-3}
HI					1.24	1.16	0.67×10^{-1}
致癌	As	4.84	1.5×10^{-5}	20.70	2.68×10^{-5}	2.51×10^{-5}	1.45×10^{-5}
	Cd	2.11	1.0×10^{-5}	6.30	1.53×10^{-6}	1.43×10^{-6}	8.26×10^{-7}
R					2.83×10^{-5}	2.65×10^{-5}	1.53×10^{-5}

3 讨论

兰州市作为典型的河谷型城市, 其产业结构以重工业为主, 春季沙尘暴频发, 冬季燃煤供暖增多, 全年气候干燥, 降水量少, 大气中的 PM_{2.5} 不易被沉降扩散, 使大气污染难以治理^[17]。研究表明, 兰州市 2015—2018 年 PM_{2.5} 及其金属年均浓度均有不同程度的下降^[18], 说明本市空气污染治理初有成效, 这可能与近几年本市实行的改造燃煤锅炉、加强超标车辆管理、鼓励使用清洁燃料, 坚持喷雾降尘等政策技术有关^[19]。但 2018 年 PM_{2.5} 浓度(秋、冬季分别为 $46.96\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $76.01\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ^[20])仍高于我国环境空气质量标准二级浓度限值, 表明兰州市依旧存在大气污染等卫生问题。

本研究继续对兰州市 2019—2020 年兰州市大气 PM_{2.5} 中金属元素的污染特征进行分析, 发现兰州市 2019、2020 年 PM_{2.5} 年均浓度分别为 38.50(26.00, 65.00)和 41.00(29.00, 63.10) $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 均高于我国 GB 3095—2012《环境空气质量标准》的二级浓度限值, 且 2019 年各金属元素年均浓度均高于 2020 年 ($P<0.05$), 说明兰州市依旧存在大气中 PM_{2.5} 及金属污染。与近几年我国其他城市 PM_{2.5} 中金属浓度相比: Sb、Al 元素浓度处于较低水平, 低于南京^[21]等城市。Cd 元素浓度处于较高水平, 高于沈阳^[8]、石家庄^[9]。其他元素 As、Pb、Mn 和 Tl 等处于中等水平, 与贵阳^[22]、杭州^[23]等城市相似。然而, PM_{2.5} 及其大多数金属元素的浓度在以商居混合为主的城关区和以核心工业为主的西固区之间差异无统计学意义, 提示工业区和生

活区可能共同影响兰州市大气颗粒物的排放。从季节分布来看, PM_{2.5} 以及大多数金属元素总体上表现为冬春季高, 夏秋季节低, 说明冬春季大气层稳定, 气温较低, 影响颗粒物的扩散和沉淀, 导致空气中颗粒物增多, 加重了空气污染, 这与兰州市 2015—2016 年间 PM_{2.5} 中金属的季节分布研究结果一致^[24]。

应用富集因子法分析金属富集程度和金属来源, 6 种金属元素的 EF 值均大于 1, 说明这些金属均受人为活动影响, 存在人为污染情况; 且全年除 As 元素外, 其他金属元素的 EF 值均大于 10, 可认为受人为活动导致的污染较为严重。各金属元素在相同季节的 EF 值均表现为: 西固区大于城关区, 说明人为活动对金属浓度的影响在西固地区更为明显, 结合兰州市产业布局、城市结构, 可能是西固区存在较多的石油化工、铝厂、热电厂等工业企业所致^[25]。

进一步对金属的来源进行主成分分析, 共提取出 3 个主成分, 主成分 1 包括 Pb、As、Cd 和 Sb, 主成分 2 包括 Al 和 Mn, 主成分 3 为 Tl。结合富集因子法结果分析兰州市金属元素的来源, Pb 是典型的汽车尾气代表物质, 虽然我国大中城市已普遍使用无铅汽油, 但原油中依旧存在少量的 Pb, 且刹车过程中也会排放 Pb^[26]。Cd 与工业废气、煤炭燃烧等活动紧密相关, 其来源可能是西固某些工业排放以及周边农村地区的煤炭取暖^[27]。As 和 Sb 主要来源于燃煤^[28], 但兰州市并非用燃煤取暖性城市, 燃煤多用于工业生产, 兰州市有大型燃煤工厂, 可认为主成分 1 主要来源于机动车

辆排放、工业排放、燃煤; AI 主要来源于无组织排放及人类农业活动^[29-30], 且兰州市有铝厂, 因此, 主成分 2 主要来源于工业排放及自然来源的混合源; TI 主要来源于火力发电、金属加工等工业排放^[31], 兰州市有火力发电厂, 可认为主成分 3 的来源主要为工业排放。结合兰州市工业产业分布和能源消费特征, 应当加强对交通污染、工业废气、煤炭燃烧的管制。

从人群健康风险评价结果来看, PM_{2.5} 中金属对人群健康依旧存在威胁, 致癌金属引起的健康风险高于非致癌金属。7 种金属元素对人体的健康威胁均为成人高于儿童, 可能与人群的体重、呼吸速率等有关, 这与南京、北京等城市的研究一致^[21, 32]。其中, AI 元素较其他非致癌元素对人群健康影响明显, As 和 Cd 的致癌风险较高, 这与以往对兰州大气中金属元素致癌风险的研究一致^[16, 33]。影响不同地区金属健康风险的原因一方面可能是不同地区的污染源分布、气象条件、地理位置等因素导致该城市大气 PM_{2.5} 中金属的浓度不同; 另一方面, 采样点布设、采样方式、采样时间等因素也会影响金属浓度。总之, 本研究结果显示兰州市大气存在金属污染情况, 其对兰州市居民健康可能产生一定的危害, 并存在潜在的致癌风险。过量的 As 可以引起皮肤癌、膀胱癌、肝癌和肺癌等一系列肿瘤^[34], Cd 暴露量的增加与肺功能减退、阻塞性肺疾病、支气管肺癌、心血管疾病以及各种口腔疾病有关^[35]。因此, 在改善兰州市空气质量时应优先控制 As 和 Cd 的大气污染, 提高对应排放源的治理。

本研究在评价兰州市 PM_{2.5} 中金属的分布特征和健康危害时仍存在一些不足: 一是采样点设置较少, 缺少空间对照, 多个采样点的代表性更好, 且 12 种金属元素中的 5 种元素(Be、Cr、Hg、Ni、Se) 由于检出率过低而未进一步分析其来源和健康风险, 金属的样本量较少; 二是金属的暴露途径包括经皮肤接触、经口接触等多种途径, 本研究只考虑了经呼吸摄入的途径; 三是针对我国居民的人群健康危害评价采用的是 USEPA 推荐的评价模型, 某些暴露参数与我国实际情况存在偏差。综上, 本研究显示: 兰州市依旧存在大气 PM_{2.5} 及其金属污染情况, 其中 As 和 Cd 对人群可能存在潜在致癌风险, 建议继续加强污染物的来源解析, 进行有针对性的治理, 可通过调节能源结构、实行节能减排等措施治理大气污染。

参考文献

- [1] FARAJI GHASEMI F, DOBARADARAN S, SAEEDI R, et al. Levels and ecological and health risk assessment of PM_{2.5}-bound heavy metals in the northern part of the Persian Gulf[J]. *Environ Sci Pollut Res Int*, 2020, 27(5): 5305-5313.
- [2] PASCAL M, FALQ G, WAGNER V, et al. Short-term impacts of particulate matter (PM₁₀, PM_{10-2.5}, PM_{2.5}) on mortality in nine French cities[J]. *Atmos Environ*, 2014, 95: 175-184.
- [3] YIN P, BRAUER M, COHEN A, et al. Long-term fine particulate matter exposure and nonaccidental and cause-specific mortality in a large national cohort of Chinese men[J]. *Environ Health Perspect*, 2017, 125(11): 117002.
- [4] 王槽玺, 李慧, 张文杰, 等. 大气PM_{2.5}携带重金属的区域污染特征研究[J]. *环境科学研究*, 2021, 34(4): 849-862.
WANG LX, LI H, ZHANG WJ, et al. Regional pollution characteristics of heavy metals in PM_{2.5}[J]. *Res Environ Sci*, 2021, 34(4): 849-862.
- [5] IJOMONE OM, IFENATUOHA CW, ALUKO OM, et al. The aging brain: impact of heavy metal neurotoxicity[J]. *Crit Rev Toxicol*, 2020, 50(9): 801-814.
- [6] BJØRKLUND G, PIVINA L, DADAR M, et al. Long-term accumulation of metals in the skeleton as related to osteoporotic derangements[J]. *Curr Med Chem*, 2020, 27(40): 6837-6848.
- [7] DUTHEIL F, COMPTOUR A, MORLON R, et al. Autism spectrum disorder and air pollution: a systematic review and meta-analysis[J]. *Environ Pollut*, 2021, 278: 116856.
- [8] 任万辉, 李云丹, 苏枞枞, 等. 沈阳市大气PM_{2.5}中重金属污染特征、来源解析及健康风险评价[J]. *环境化学*, 2021, 40(4): 1029-1037.
REN WH, LI YD, SU CC, et al. Pollution characteristics, source apportionment and health risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} in Shenyang[J]. *Environ Chem*, 2021, 40(4): 1029-1037.
- [9] 唐大镜, 常会云, 张莹, 等. 2017-2019年石家庄市PM_{2.5}中重金属污染及健康风险评价[J]. *现代预防医学*, 2021, 48(7): 1177-1180, 1197.
TANG DJ, CHANG HY, ZHANG Y, et al. Pollution characteristics and health risk evaluation of heavy metal particles in PM_{2.5} in Shijiazhuang, 2017-2019[J]. *Mod Prev Med*, 2021, 48(7): 1177-1180, 1197.
- [10] 孙叶波, 金永高, 陆蓓蓓, 等. 宁波市某城区大气PM_{2.5}中重金属污染特征及健康风险评价[J]. *中国预防医学杂志*, 2020, 21(2): 185-190.
SUN YB, JIN YG, LU BB, et al. Pollution and health risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} in a district of Ningbo[J]. *Chin Prev Med*, 2020, 21(2): 185-190.
- [11] 王莉娜, 杨燕萍, 杨丽丽, 等. 兰州市秋季PM_{2.5}污染特征及来源解析研究[J]. *绿色科技*, 2020(14): 80-83, 96.
WANG LN, YANG YP, YANG LL, et al. Study on the characteristics and source apportionment of PM_{2.5} autumn pollution in Lanzhou[J]. *J Green Sci Technol*, 2020(14): 80-83, 96.
- [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: 329-493.
China National Environmental Monitoring Centre. Background values of soil elements in China[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 1990: 329-493.
- [13] 毕木天. 关于富集因子及其应用问题[J]. *环境科学*, 1984, 5(5): 68-70.
BI MT. Regarding the enrichment factor and its application[J]. *Environ Sci*, 1984, 5(5): 68-70.
- [14] 庄马展. 厦门大气PM_{2.5}中元素特征及重金属健康风险评价[J]. *环境化学*, 2016, 35(8): 1723-1732.
ZHUANG MZ. Characteristic of elements in PM_{2.5} and health risk assessment of heavy metals at Xiamen[J]. *Environ Chem*, 2016, 35(8): 1723-1732.

- [15] U. S. EPA. Integrated risk information system[EB/OL]. Washington: U. S. EPA. [2007-04-23]. <http://www.epa.gov/iris>.
- [16] 赵秀阁, 段小丽. 中国人群暴露参数手册(成人卷): 概要[M]. 北京: 中国环境出版社, 2014: 1-69.
- ZHAO X G, DUAN X L. Highlights of the Chinese exposure factors handbook (adults)[M]. Beijing: China Environmental Publishing House, 2014: 1-69.
- [17] 张稼轩, 李博, 王颖, 等. 河谷城市大气环境容量的研究[J]. 环境科学研究, 2020, 33(4): 801-808.
- ZHANG JX, LI B, WANG Y, et al. Atmospheric environmental capacity in river valley terrain[J]. Res Environ Sci, 2020, 33(4): 801-808.
- [18] 程妍, 刘小云, 夏智恒, 等. 2015-2018年兰州市两区大气PM_{2.5}中10种金属和类金属元素浓度变化[J]. 卫生研究, 2021, 50(1): 79-85.
- CHENG Y, LIU XY, XIA ZH, et al. Concentration changes of ten metal and metalloid elements in atmospheric PM_{2.5} in two districts of Lanzhou City from 2015 to 2018[J]. J Hyg Res, 2021, 50(1): 79-85.
- [19] 高晓丹, 李汉菁. 兰州市大气污染治理成效的初步分析[J]. 农业灾害研究, 2020, 10(4): 69-70.
- GAO XD, LI HJ. Preliminary analysis of the effect of air pollution control in Lanzhou city[J]. J Agric Catastrophol, 2020, 10(4): 69-70.
- [20] 杨慧慧. 兰州市秋冬季PM_{2.5}浓度变化特征[J]. 江西化工, 2019, 35(1): 91-94.
- YANG HH. Variation characteristics of PM_{2.5} concentration in autumn and winter in Lanzhou[J]. Jiangxi Chem Ind, 2019, 35(1): 91-94.
- [21] 李慧明, 钱新, 冷湘梓, 等. 南京市PM_{2.5}中金属元素污染特征及健康风险[J]. 环境监控与预警, 2021, 13(1): 7-13.
- LI HM, QIAN X, LENG XZ, et al. Pollution characteristics and health risks of metal elements in PM_{2.5} from Nanjing[J]. Environ Monit Forewarn, 2021, 13(1): 7-13.
- [22] 郑灿利, 范雪璐, 董娴, 等. 贵阳市秋冬季PM_{2.5}中重金属污染特征、来源解析及健康风险评估[J]. 环境科学研究, 2020, 33(6): 1376-1383.
- ZHENG CL, FAN XL, DONG X, et al. Characteristics, sources and health risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} collected between autumn and winter in Guiyang City[J]. Res Environ Sci, 2020, 33(6): 1376-1383.
- [23] 沈建东, 周玉强, 王蕴赓, 等. 杭州西湖景区PM_{2.5}中重金属来源及健康风险评估[J]. 环境污染与防治, 2020, 42(2): 199-203.
- SHEN JD, ZHOU YQ, WANG YY, et al. Sources and health risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} of West Lake scenic area in Hangzhou[J]. Environ Pollut Control, 2020, 42(2): 199-203.
- [24] 魏巧珍, 李盛, 贾清, 等. 兰州市大气PM_{2.5}中重金属的污染特征及健康风险评估[J]. 中华预防医学杂志, 2018, 52(6): 601-607.
- WEI QZ, LI S, JIA Q, et al. Pollution characteristics and health risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} in Lanzhou[J]. Chin J Prev Med, 2018, 52(6): 601-607.
- [25] 李昕. 工业重镇崛起[N]. 兰州日报, 2021-08-11(011).
- LI X. The rise of industrial towns[N]. Lanzhou Daily, 2021-08-11(011).
- [26] XU HM, CAO JJ, HO KF, et al. Lead concentrations in fine particulate matter after the phasing out of leaded gasoline in Xi'an, China[J]. Atmos Environ, 2012, 46: 217-224.
- [27] THOMAIDIS NS, BAKEAS EB, SISKOS PA. Characterization of lead, cadmium, arsenic and nickel in PM_{2.5} particles in the Athens atmosphere, Greece[J]. Chemosphere, 2003, 52(6): 959-966.
- [28] TAO J, ZHANG LM, CAO JJ, et al. Source apportionment of PM_{2.5} at urban and suburban areas of the Pearl River Delta region, south China - with emphasis on ship emissions[J]. Sci Total Environ, 2017, 574: 1559-1570.
- [29] 马艳华, 宁平, 黄小凤, 等. PM_{2.5}重金属元素组成特征研究进展[J]. 矿物学报, 2013, 33(3): 375-381.
- MA YH, NING P, HUANG XF, et al. Research progress of atmospheric heavy metal elements composition characteristics in fine particles (PM_{2.5}) [J]. Acta Mineral Sin, 2013, 33(3): 375-381.
- [30] HE LY, HU M, ZHANG YH, et al. Fine particle emissions from on-road vehicles in the Zhujiang Tunnel, China[J]. Environ Sci Technol, 2008, 42(12): 4461-4466.
- [31] ZHANG R, CAO JJ, TANG YR, et al. Elemental profiles and signatures of fugitive dusts from Chinese deserts[J]. Sci Total Environ, 2014, 472: 1121-1129.
- [32] 宋浩军, 罗敏, 徐殿斗, 等. 北京市PM_{2.5}污染特征、来源分析及其重金属健康风险评估[J]. 环境污染与防治, 2019, 41(11): 1357-1361.
- SONG HJ, LUO M, XU DD, et al. The pollution characteristics, sources of PM_{2.5} in Beijing and health risk assessment of its heavy metals[J]. Environ Pollut Control, 2019, 41(11): 1357-1361.
- [33] 陈瑞, 李拥军, 刘小云. 2015-2017年兰州大气PM_{2.5}中10种元素的健康风险分析[J]. 环境与健康杂志, 2019, 36(5): 419-422.
- CHEN R, LI YJ, LIU XY. Analysis on health risks of ten elements in ambient PM_{2.5} in Lanzhou during 2015-2017[J]. J Environ Health, 2019, 36(5): 419-422.
- [34] MINATEL BC, SAGE AP, ANDERSON C, et al. Environmental arsenic exposure: from genetic susceptibility to pathogenesis[J]. Environ Int, 2018, 112: 183-197.
- [35] RICHTER P, FAROON O, PAPPAS RS. Cadmium and cadmium/zinc ratios and tobacco-related morbidities[J]. Int J Environ Res Public Health, 2017, 14(10): 1154.

(英文编辑: 汪源; 责任编辑: 丁瑾瑜)

(上接第 518 页)

- [35] AZIZI R, SOLTANI-ZANGBAR MS, SHEIKHANSARI G, et al. Metabolic syndrome mediates inflammatory and oxidative stress responses in patients with recurrent pregnancy loss[J]. J Reprod Immunol, 2019, 133: 18-26.
- [36] ZEJNULLAHU VA, ZEJNULLAHU VA, KOSUMI E. The role of oxidative stress in patients with recurrent pregnancy loss: a review[J]. Reprod Health, 2021, 18(1): 207.
- [37] LI DK, FERBER JR, ODOULI R, et al. Use of nonsteroidal antiinflammatory drugs during pregnancy and the risk of miscarriage[J]. Am J Obstet Gynecol, 2018, 219(3): 275.e1-275.e8.
- [38] MAKINO S, ZARAGOZA DB, MITCHELL BF, et al. Prostaglandin F_{2α} and its receptor as activators of human decidua[J]. Semin Reprod Med, 2007, 25(1): 60-68.
- [39] KELEŞ ID, ÜLGİN E, ERKAN MB, et al. Comparison of endometrial prostanoid profiles in three infertile subgroups: the missing part of receptivity?[J]. Fertil Steril, 2020, 113(3): 670-678.e1.

(英文编辑: 汪源; 责任编辑: 汪源)