

https://doi.org/10.3799/dqkx.2018.421



大气环境中纳米颗粒物研究进展与存在问题

王真真^{1,4}, 段菁春², 谭吉华^{1,3*}, 胡京南²

1. 中国科学院大学资源与环境学院, 北京 100049

2. 中国环境科学研究院环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012

3. 中国科学院生态环境研究中心, 北京 100085

4. 长沙环境保护职业技术学院, 湖南长沙 410004

摘要: 纳米颗粒物(Nanoparticles, NPs)因较同质量细颗粒物和粗颗粒物而言对人体健康危害大得多, 日益受到国内外研究者的重视. 结合研究结果, 对国内外共 87 篇 NPs 相关文献进行调研, 选取含有有效数据文章进行统计分析. 从 NPs 来源和形成机理、粒径分布和归宿、数浓度水平和化学组成及健康效应和研究手段等方面进行综述. 针对我国 NPs 研究现状提出建议及研究重点: (1) 开展 NPs 常规化监测及环境空气和排放源 NPs 理化性质研究; (2) 系统研究 NPs 形成机理; (3) 发展 NPs 离线及在线一体化源解析技术; (4) 系统建立 NPs 采样及分析技术; (5) 加强 NPs 毒理学、流行病学和防护研究. 由于在采取措施降低 TSP 和 PM_{2.5} 过程中有可能导致 NPs 浓度大幅增加, 对人体健康会产生较大危害, 政府应同时加大对 NPs 来源和污染控制研究的投入力度.

关键词: 气溶胶; 纳米颗粒物; 粒径分布; 数浓度; 健康效应; 环境地质.

中图分类号: P595

文章编号: 1000-2383(2018)05-1680-11

收稿日期: 2017-09-15

A Review on Study Progress and Problem of Nanoparticles in Atmosphere

Wang Zhenzhen^{1,4}, Duan Jingchun², Tan Jihua^{1,3*}, Hu Jingnan²

1. College of Resources and Environment, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

2. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China

3. Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China

4. Changsha Environmental Protection Vocational College, Changsha 410004, China

Abstract: Nanoparticles (NPs) are more toxic than larger particles at the same mass concentration. Therefore, it should be paid more attention by researchers. In addition to 87 previous papers with valid data on NPs, some results obtained by our research group are also adopted in this paper. The study methods of number concentrations, size distribution, chemical compositions, health effects, source, formation and removal mechanism of NPs, are summarized and reviewed in this study. It is identified the following priorities for further research and provided suggestions when studying NPs in China: (1) systematic study of physicochemical characteristics and routine monitoring of ambient and source NPs; (2) systematic study on the formation mechanism of NPs; (3) development of the integrated off-line and online source apportionment methods of NPs; (4) systematic establishment of sampling and analytical methods for NPs studies; (5) strengthening study on toxicology, epidemiology and protection methods of NPs. It is suggested that it may greatly increase the concentration of nanoparticles when decreasing TSP

基金项目: 国家自然科学基金项目 (Nos. 41475116, 41275134, 41675127); 国家重点研发计划“大气污染成因与控制技术研究”重点专项 (No. 2016YFC0208900).

作者简介: 王真真(1979—), 女, 讲师, 主要从事大气颗粒物、生物质燃烧源解析研究. ORCID: 0000-0002-8273-5734.

E-mail: oceanshell@163.com

* **通讯作者:** 谭吉华. ORCID: 0000-0002-1825-3431. E-mail: tanjh@ucas.ac.cn

引用格式: 王真真, 段菁春, 谭吉华, 等, 2018. 大气环境中纳米颗粒物研究进展与存在问题. 地球科学, 43(5): 1680-1690.

and $PM_{2.5}$ which leads to serious health troubles, and government should make more efforts to support the study on the source apportionment and control of nanoparticles.

Key words: aerosol; nanoparticle; particle-size distribution; number concentration; health effect; environmental geology.

0 引言

纳米颗粒物(Nanoparticles, NPs)通常指传输和性质表现类似,空气动力学直径在 $1\sim 100$ nm的颗粒物(Pakkanen *et al.*, 2001; Lin *et al.*, 2006).纳米颗粒物通常分为大气环境中纳米颗粒物及人工设计合成纳米尺度颗粒物,在环境科学领域,往往将纳米颗粒物与超细颗粒物视为一类物质(Knibbs and Morawska, 2012).本文所述纳米颗粒物仅指大气环境中纳米颗粒物.纳米颗粒物粒径小、数量多、表面积大、化学成分复杂,除会对大气环境产生影响之外,较同质量细颗粒物和粗颗粒物而言对人体健康危害要大得多(Höhr *et al.*, 2002; Rahman *et al.*, 2002; Li *et al.*, 2003; Singh *et al.*, 2005; 熊丽林等, 2015),因此日益受到国内外研究者的重视.目前国内外关于 $PM_{2.5}$ 理化性质、粒径分布及来源等研究较多,但对于大气纳米颗粒物的相关领域研究相对较少,缺乏大气纳米颗粒物污染特征、影响因素研究及相应监管体制的制定.本文结合本课题组部分研究结果,对近年来国内外研究者在NPs来源和形成机理、粒径分布和归宿、组成成分及对人体健康影响等方面的最新进展进行综述,以期为我国纳米颗粒物研究及相关部门制定相应大气环境质量标准或法律法规提供参考依据.

笔者通过对87篇文献(其中SCI文章62篇,中文核心期刊25篇)的调研,选取含有效数据的文章进行统计分析.对于同一地区多个采样点的情况,取多个采样点的平均值代表该地的平均污染水平.

1 纳米颗粒物来源和形成机理、粒径分布和归宿

1.1 NPs来源和形成机理

NPs既有一次来源又有二次来源.一次来源主要包括:机动车尾气排放、化石燃料燃烧、生物质燃烧和吸烟排放等.二次来源NPs包括大气光化学过程形成的硫酸盐、硝酸盐和低挥发性有机反应物.NPs的形成机理与其来源密切相关,既能由一次来源形成,也可由二次光化学成核作用形成.NPs主要包括

核模态(nuclei mode)和爱根核模态(Aitken mode).

在城市中,机动车排放被认为是NPs的最主要污染源(Hofman *et al.*, 2016),远离城市地区二次光化学成核作用对NPs浓度的影响较大,而在城市郊区两者的影响都不可忽视(Ma and Birmili, 2015).另外,煤燃烧、木材燃烧和家庭烹饪也可能是环境中NPs重要来源之一(Fine *et al.*, 2004; Linak *et al.*, 2007; 于敦喜等, 2008).国内外学者针对NPs时间和空间分布特征进行了较多研究.

Hitchins *et al.*(2000)发现交通道路边NPs数浓度较高,且随着与交通道路间距离增加迅速下降. McMurry and Woo(2002)对Atlanta城区大气颗粒物粒径分布进行为期2年的研究,发现 $10\sim 100$ nm的NPs在冬季、上下班高峰期和工作日期间浓度较高,而 $3\sim 10$ nm的NPs在夏季由于光化学成核作用明显增加.Kim *et al.*(2002)对洛杉矶盆地研究表明,在NPs源排放点其浓度主要受附近高速公路新鲜排放影响,而在内地下风向地区则受光化学二次颗粒物形成影响较大.Fine and Sioutas(2004)则认为在内地下风向地区,NPs浓度和粒径分布也会受到长距离运移的一次排放源影响,这种影响主要表现在这些地区NPs数浓度中间直径某些时候会变得较大($90\sim 120$ nm).倪洋等(2014)对北京市某地区冬季大气NPs数浓度的监测结果发现,交通、燃放烟花爆竹及气象因素可能是NPs的主要来源.本课题组针对北京市3个代表性点位开展基于颗粒物数浓度粒径分布的来源研究(段菁春等, 2009),发现北四环采样点受机动车尾气排放影响,NPs所占比例较高;清华生活区采样点由于远离机动车排放源,NPs所占比例较北四环明显下降;密云采样点,NPs所占比例与北四环采样点相近,可能与光化学成核生成NPs有关.

在室内,家庭烹饪是NPs主要来源之一.Wallace *et al.*(2004)研究发现家庭烹饪产生的颗粒物中,90%是NPs,另外蜡烛燃烧、吸烟也是室内NPs主要来源.Matson(2005)发现在办公楼中,没有吸烟情况下室内NPs浓度通常要低于室外的环境浓度,且与室外浓度有较强相关关系;而有吸烟情况下室内浓度则高于室外;对居民住宅研究表明有蜡烛燃烧和烹饪的情况下,室内NPs浓度会极大地升高.

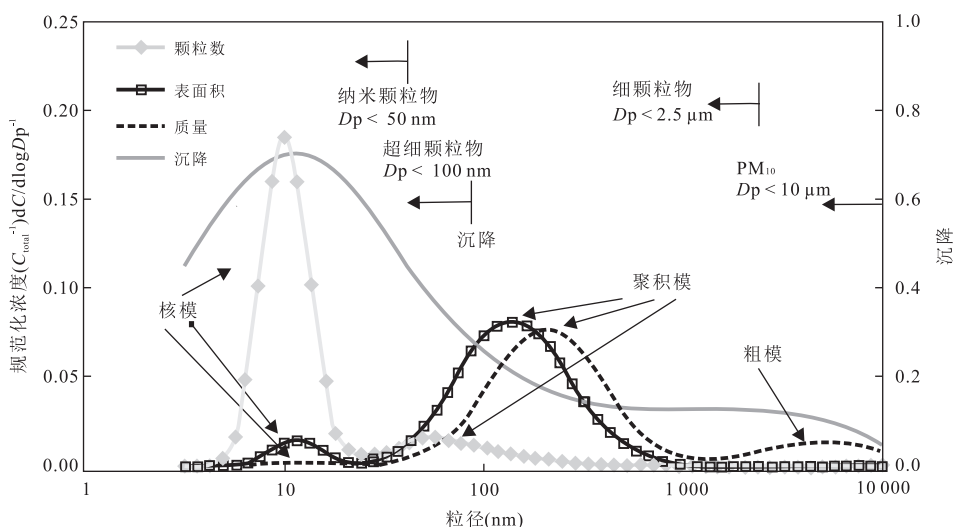


图 1 典型柴油机动车排放颗粒物数浓度、质量浓度、粒径分布和颗粒物在人体肺泡沉积效率的曲线

Fig.1 Typical mass and number weighted size distributions shown with alveolar deposition

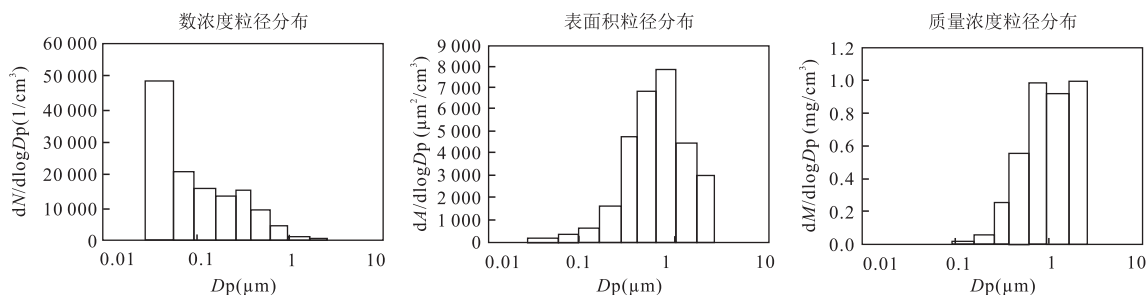


图 2 北京市道路边(北四环)大气细粒子数浓度、质量浓度和表面积浓度的粒径分布特征

Fig.2 Size distributions (number, area and mass concentration) of fine particles at roadside (North Sihuan) in Beijing

1.2 NPs 粒径分布和归宿

目前国内外对 NPs 粒径分布研究主要集中于数浓度、质量浓度及表面积的粒径分布等方面. Kitelson *et al.* (2004) 对一典型柴油机动车排放颗粒物数浓度、质量浓度、表面积及其在人体肺泡沉积效率开展研究, 发现(图 1)从颗粒物数浓度和在人体呼吸道的沉积效率考虑, 颗粒物主要集中在小于 100 nm 的 NPs 中, 特别是小于 50 nm 的 NPs 中. Wallace *et al.* (2004) 发现家庭烹饪产生 NPs 数浓度呈双峰分布, 主峰位于 60 nm, 次峰位于 10 nm.

杨传俊等(2006)对上海郊区和中心城区共 5 个地区进行 NPs 测量, 发现 NPs 在交通密集和工地附近地区粒径分布呈多峰分布. 张元勋等(2007)对不同室内条件下 NPs 粒径分布特征进行研究, 发现 NPs 对总粒子数浓度贡献较大, 表现出室内污染以 NPs 为主的特点. 谢小芳等(2014)基于不同粒径分析杭州市大气 NPs 数浓度, 发现晴天天气下爱根核模态细颗粒物数浓度较高, 春季纳米颗粒粒径分布

呈双峰分布趋势. 朱春和张旭(2010)取澳大利亚布里斯班市某公交车专用隧道进行 NPs 研究, 发现隧道颗粒物数浓度呈双峰分布. 孙在等(2014)发现煤燃烧 NPs 粒径呈双峰分布, 峰值出现在 5~15 nm 和 30~50 nm 粒径区间; 由于气化-凝结作用, 颗粒在 5~15 nm 处峰值较大. 胡志远等(2012)以一辆采用电控燃油进气道多点喷射系统的桑塔纳汽油轿车为试验样车, 对该车 NEDC 循环 NPs 排放数量及颗粒粒径分布特性进行了试验, 得到不同工况下颗粒数量排放基本上呈单峰对数分布, 颗粒数量排放峰值的颗粒粒径主要集中于 10~30 nm, 几何平均粒径集中于 14~42 nm, 该汽油车 NEDC 循环排放 NPs 主要以粒径小于 50 nm 颗粒为主. 本课题组(段青春等, 2008)针对北京市 3 个代表性采样点开展的颗粒物数浓度粒径分布研究发现, 北四环采样点、清华生活区采样点 NPs 所占比例分别约为 65% 和 47%. 图 2 所示为本课题组对北京市道路边(北四环)大气细粒子数浓度、质量浓度和表面积浓度的粒

径分布特征研究.从图中可以看出,粒径越小粒子数浓度所占比例越高.

颗粒物沉降机理主要有惯性碰撞、重力沉降和布朗扩散 3 种方式,布朗扩散凝结作用则是 NPs 增长和消除的主要方式.扩散凝聚的速率与颗粒物的数浓度的平方成正比(Junker *et al.*, 2000).由于 NPs 扩散凝聚速度较快,所以不可能进行长距离迁移.另外较高浓度粗颗粒物和累积态颗粒物能够为 NPs 扩散沉降提供较高沉积表面从而增强对 NPs 的清除作用(Ebelt *et al.*, 2001).

2 纳米颗粒物数浓度及化学组成

2.1 NPs 数浓度研究

对于 NPs 而言,虽然其质量浓度在颗粒物中所占比例极小,但其对人类和大气环境的影响却相对较大,因此对数浓度水平研究比质量浓度水平更为

重要.表 1 总结了目前国内外不同地区大气 NPs 数浓度研究结果,使用不同仪器测量会对不同粒径范围 NPs 数浓度值有一定影响.

NPs 数浓度特征也与其来源有关,杨传俊等(2006)对上海郊区和中心城区共 5 个地区 NPs 研究发现,交通密集和工地附近地区白天 NPs 浓度高,到夜晚逐渐降低,且粒子数浓度和质量浓度随高度增加而衰减;工业区和商业区的 NPs 浓度高于生活区和郊区.

由于形成机理不同,有些排放源生成颗粒物的数浓度主要来源在亚微米范围;而有些排放源生成颗粒物的质量浓度主要来源则在微米范围或更大的范围内.因此在多数情况下,颗粒物的数浓度和质量浓度都不具有相关关系,研究者不可能利用通常监测得到的 PM₁₀ 或 PM_{2.5} 数据获得颗粒物数浓度的有效信息.图 3 所示为本课题组对北京市道路边 PM_{2.5} 大气细粒子数浓度与质量浓度关系的研究

表 1 不同地区纳米颗粒物数浓度

Table 1 Number concentrations of NPs in different districts

地点	道路旁(cm ⁻³)	城区(cm ⁻³)	背景点(cm ⁻³)	粒径范围(nm)	文献来源
中国北京		17 500		5.6~20	(Shi, 2007)
中国北京		32 000		20~100	(Shi, 2007)
中国北京		9 000		3~20	(Wu <i>et al.</i> , 2008)
中国北京		15 900		20~100	(Wu <i>et al.</i> , 2008)
中国北京		7 500		3~20	(胡敏等, 2006)
中国北京		15 000		20~100	(胡敏等, 2006)
中国杭州		8 400		5.6~20	(谢小芳等, 2014)
中国杭州		10 800		20~100	(谢小芳等, 2014)
中国南京		9 686		10~20	(钱凌等, 2008)
中国南京		26 232		20~100	(钱凌等, 2008)
日本长久手			2 800 (夏季)	13.6~685.4	(Chen <i>et al.</i> , 1991)
日本长久手			18 000 (冬季)	13.6~685.4	(Chen <i>et al.</i> , 1991)
美国罗彻斯特		8 160		10~470	(Jeong <i>et al.</i> , 2004)
贝克斯菲尔德		10 000~150 000			(Peters <i>et al.</i> , 1997)
美国唐尼	180 000~250 000		36 000~57 000	6~220	(Wichmann <i>et al.</i> , 2000)
美国匹兹堡		9 700		3~20	(Stanier <i>et al.</i> , 2004)
美国匹兹堡		10 100		20~100	(Stanier <i>et al.</i> , 2004)
英国伯明翰	160 000~190 000	21 000~24 000		9.6~352	(Oberdorster and Utell, 2002)
英国曼彻斯特	27 000			4.6~100	(Longley <i>et al.</i> , 2003)
德国莱比锡	32 000~110 000			3~800	(Pakkanen <i>et al.</i> , 2001)
意大利米兰		19 700		10~100	(Lonati <i>et al.</i> , 2011)
意大利米兰		10 100		10~100	(Lonati <i>et al.</i> , 2011)
西班牙马德里		7 257		<30	(Gómez-Moreno <i>et al.</i> , 2011)
西班牙马德里		2 848		20~100	(Gómez-Moreno <i>et al.</i> , 2011)
西班牙马德里		5 336		<30	(Gómez-Moreno <i>et al.</i> , 2011)
西班牙马德里		2 019		20~100	(Gómez-Moreno <i>et al.</i> , 2011)
芬兰赫尔辛基		10 500~14 500		8~400	(Hussein <i>et al.</i> , 2003)
芬兰			8 000	3~500	(Nilsson <i>et al.</i> , 2001)
芬兰拉赫蒂	39 000			6~300	(Vakeva <i>et al.</i> , 1999)
瑞典哥森堡	2 000			10~369	(Molnar and Hallquist, 2002)

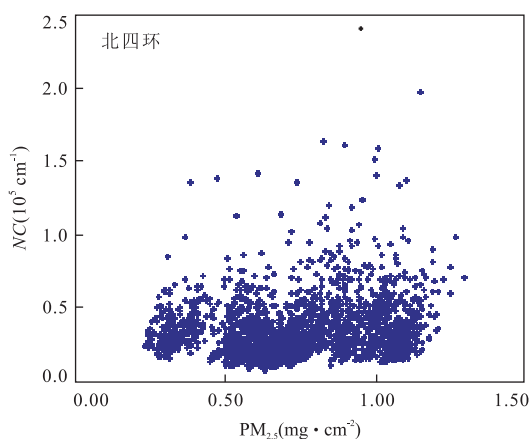


图 3 北京市道路边(北四环)大气细粒子数浓度与质量浓度的关系

Fig.3 Correlation between number and mass concentration of fine particles at roadside (North Sihuan) in Beijing

(段菁春等, 2008), 从图中可以直观看出大气细粒子数浓度与质量浓度几乎不存在相关性. 另一方面, 较大的颗粒物(特别是 $1 \mu\text{m}$ 左右的颗粒物)能够提供较大的表面积浓度, 这对 NPs 的清除产生积极作用. 因此在对大气颗粒物质量浓度进行控制的同时有可能增加 NPs 浓度和大气颗粒物数浓度 (Wichmann *et al.*, 2000).

2.2 NPs 化学组成

NPs 化学组成对于深入理解其对人体健康和气候变化的影响以及均相成核颗粒物生成和增长的物理和化学过程具有非常重要的意义.

Sardar *et al.* (2006) 对美国洛杉矶盆地 NPs 化学组成的研究表明, NPs 的化学成分主要为有机碳 (OC) 32%~69%, 元素碳 (EC) 1%~34%, 硫酸根 0%~24% 和硝酸根 0%~4%. Chung *et al.* (2001) 在对美国加州 Bakersfield 大气颗粒物中 NPs 水溶性组分的研究中发现, 虽然小于 $2.0 \mu\text{m}$ 的颗粒物总体呈中性, 但 NPs 却明显呈碱性, 其中 Ca 是最主要的阳离子. Lin *et al.* (2016) 对台湾南部一城市交通道路旁的大气颗粒物中金属元素的粒径分布进行了研究, 发现 PM_{10} 中 Ag、Cd、Cr、Ni、Pb、Sb、V 和 Zn 在 NPs 中所占的比例高达 37%、50%、28%、30%、24%、64%、38% 和 22%. 林俊等 (2009) 分析测定上海郊区 NPs 元素粒径分布及富集因子, V、Ni、Cu、Zn 及 Pb 富集因子相对较高, 且随着粒径减小, 富集程度呈上升趋势. 于敦喜等 (2008) 对燃煤 NPs 的物化特性进行了表征, 发现无机 NPs 主要含硫、难熔元素和碱金属/碱土金属元素, 有机 NPs 主要成分为元素碳. 杨丹 (2012) 在分析东莞市大气颗粒

物 NPAHs 污染特征时发现 12%~45% 的 NPAHs 分布在占颗粒物总质量 1.5% 的 NPs 上. 张睿等 (2012) 测定了上海大气 NPs 中金属元素, 主要包括 Na、Fe、K、Al、Ca 和 Zn 等元素, 与其他粒径颗粒物相比, 金属元素在 NPs 中浓度分布具有明显差异. 仇满德等 (2014) 以 NPs 为研究对象分析其中的元素, 发现 NPs 中含有的常量元素同大颗粒污染物基本一致, 主要含有 C、O、Al、Si、Na、Mg、K、Ca、Fe、S、Cl 等元素.

3 纳米颗粒物的健康效应

NPs 可能通过多种机制对人体健康造成危害, 目前关于 NPs 的健康效应研究主要包括毒理学和流行病学两个方向. 流行病学研究认为虽然 NPs ($< 0.1 \mu\text{m}$) 和大气细粒子 ($< 2.5 \mu\text{m}$) 对人体健康都会产生影响, 但其机制是不同的 (Kreyling *et al.*, 2006). 毒理学研究认为单位质量的毒性随着颗粒物粒径下降明显增加, 并且其毒性与其组成密切相关 (Kreyling *et al.*, 2013). 有关颗粒物形成的研究认为受化学成分差异的影响, 在不同地点颗粒物的形成和增长是不同的 (叶兴南和陈建民, 2009). 近年来许多研究者针对 NPs 可能对人体产生危害的 3 种不同机制进行了大量研究. 在空气颗粒物质量浓度相同的情况下, 颗粒越小, 颗粒数目越多, 颗粒物比表面积就越大, 可能导致的健康危害也越大 (胡彬等, 2015).

NPs 毒理学研究表明, 其极小的尺寸使得它们很容易进入细胞内甚至细胞核, 与遗传物质相互作用, 产生遗传毒性作用 (熊丽林等, 2015). NPs 会对呼吸系统产生氧化应激损伤及炎症反应 (Inoue *et al.*, 2010; 李可欣等, 2010; Wang *et al.*, 2011; Pauluhn, 2012; 张睿等, 2012; Lin *et al.*, 2013), 前者可能是由于 NPs 的表面活性高, 能产生自由基, 继而激发活性氧簇的生成从而干扰抗氧化系统 (Chen and Von, 2005); 后者则是由于 NPs 可以降低肺功能并使气道 pH 值下降而引起呼吸系统炎症反应 (Shvedova *et al.*, 2008; Knibbs and Morawska, 2012). NPs 极易进入肺部的深部, 在肺泡中沉积量最大, 可能超出肺泡巨噬细胞的清除能力, 转运入血后危害心血管系统 (Oberdorster *et al.*, 1992, 1994; Borm and Kreyling, 2004). NPs 还会影响中枢神经系统及消化系统, 对其产生负面效应 (Elder *et al.*, 2006; 王云等, 2009; Allen *et al.*, 2014; Li *et al.*, 2015). NPs (尤其是有机 NPs) 可能导致人体

中 DNA 氧化性损伤,具有潜在致癌作用(Dai *et al.*, 2014).此外,NPs 非常容易和其他污染物发生吸附、碰撞、结合或反应,生成的二次 NPs 对人体也会造成危害.如 NPs 上的强酸性物质可能对人体产生不利影响(Schlesinger, 1989; Chen *et al.*, 1991);NPs 上存在的多种微量金属元素可能引起一系列的反应(Fubini *et al.*, 1995; Gilmour *et al.*, 1996)对人体健康产生危害.目前人们对 NPs 所含大量有机及无机组分可能引起的生物效应还了解有限.

NPs 流行病学研究也开展了较多的工作.Penttinen *et al.* (2001) 研究发现与人体峰值呼气量(PEF)呈负相关关系的是日平均大气颗粒物数浓度(特别是 NPs 数浓度)而非质量浓度.Peters *et al.* (1997)的研究发现,NPs 数浓度和 $0.1\sim 0.5\ \mu\text{m}$ 颗粒物质量浓度都与 PEF 的减少和咳嗽等病的增加相关,但 NPs 数浓度影响要大于 $0.1\sim 0.5\ \mu\text{m}$ 颗粒物质量浓度影响.Wichmann *et al.* (2000)的研究则发现,大气细粒子(FPs)与 NPs 都与死亡率的增加有相关关系,但 FPs 与死亡率的增加是即时的,而 NPs 数浓度与死亡率的增加存在 4 d 的延迟;即时的影响对呼吸道疾病更明显,而延迟的影响对心血管疾病更明显.

4 NPs 研究手段

4.1 NPs 源解析

通常人们对大气颗粒物的来源进行源解析时主要是根据 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 或 TSP 中无机元素组成、有机标志化合物组成和水溶性离子组成,利用 PCA、FA 和 CMB 法进行.然而 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 或 TSP 按质量来说主要是由累积态颗粒物和粗颗粒物构成的,其中累积态颗粒物大气滞留时间长,能够进行长距离迁移,许多物种特别是有机化合物可能在这个过程中发生转化而加大了进行源解析的难度.粗颗粒主要由地壳元素和大气颗粒物沉降后二次扬尘构成,这些因素都可能改变污染源的原始特征而加大源解析的困难.而 NPs 由于比表面积较高,易相互碰撞增长,寿命较短,能够更好地保留排放源的原始特征(Ma and Birmili, 2015).

Fine *et al.* (2004)研究了洛杉矶盆地 NPs 和累积态颗粒物中有机组成的日变化和季节变化特征,发现利用 NPs 和累积态颗粒物中特征有机标志物的相对浓度变化,如藿烷、苯并芘、左旋葡聚糖、胆固

醇和 1,2-Benzenedicarboxylic 能够更好地获得源排放和 SOA 形成的许多重要信息.本课题组(段菁春等, 2006)曾利用 MOUDI 对 NPs 中的 PAHs 进行初步研究,发现广州市不同地区 NPs 中 PAHs 组成特征存在明显差异,并认为这可能是不同类型交通污染源不同贡献率的结果,而以往对广州市 TSP 或 $\text{PM}_{2.5}$ 中 PAHs 的研究没有发现不同区域之间的组成差别.另外,本课题组还利用 PMF 对北京 3 个采样点包括 NPs 的粒径范围在 $28\sim 948\ \text{nm}$ 的细颗粒物进行源解析(Tan *et al.*, 2014),发现机动车排放源、燃煤源等 4 个主要污染源.无机元素可以很好地保留源信息(蓝先洪等, 2016),本课题组在北京雾霾期间利用 PMF 对采集到的不同粒径级别颗粒物中无机元素进行源解析(Tan *et al.*, 2016),研究表明燃煤源是细颗粒物的重要来源.

4.2 NPs 采集与分析方法

由于 NPs 粒径小,质量浓度低,不稳定,因而对其形态、生成机制以及组成成分的研究强烈依赖于采样技术与设备和分析技术的不断发展.

微孔均匀沉淀式撞击取样器(Micro-Orifice Uniform Deposit Impactors, MOUDI)是美国 MSP 公司开发的用于采集不同粒径颗粒物样品的采样器.目前该公司在 MOUDI 的基础上,Marple 等研究者又开发了 nano-MOUDI 采样设备,它将粒径分布颗粒物样品的收集下限达到了 $10\ \text{nm}$.虽然通过这种方式收集的纳米颗粒物容易因颗粒物在采样介质上的反弹受到大颗粒物的污染,但这一采样设备为已有的分析技术如离子色谱(IC)和 GC-MS 分析提供了极大的便利.

扫描电迁移率颗粒物粒径谱仪(Scanning Mobility Particle Sizer, SMPS)是目前研究纳米颗粒物数密度粒径分布的重要仪器之一.它的工作原理是根据不同粒径荷电颗粒物在电场中的运动特征的差异,利用 DMA(Differential Mobility Analyser)将颗粒物按粒径分级,再将分级后的颗粒物通过 CPC(Condensation Particle Counter)进行计数来获得气溶胶颗粒物的数浓度粒径谱.目前 SMPS 的测量下限可以达到 $3\sim 20\ \text{nm}$.它的优点是测量粒径下限较低,测量精确,但是不能精确获得颗粒物的质量浓度信息,也不能对样品进行采集和成分分析.康豫博等(2016)利用该仪器测量了燃烧产生的气溶胶模拟发动机的排气颗粒参数.张武高等(2016)利用扫描电迁移率颗粒物粒径谱仪(SMPS)进行发动机纳米颗粒的排放特性研究.

NPs 也可以通过电镜进行研究 (electron microscopy). 与其他技术不同的是电镜能够提供颗粒物的形态特征以及不同成分在颗粒物中的存在状态信息 (沈宝云等, 2016). 电镜的主要缺点是不稳定的成分会在分析过程中挥发.

还有一些研究小组利用质谱对小到 20 nm NPs 组成进行研究 (Reents and Ge, 2000). 其主要原理是首先将脉冲激光照射颗粒物, 使之挥发并离子化, 然后利用飞行时间质谱 (TOFMS) 测定其组成成分.

5 问题与建议

尽管科学界对大气 NPs 的健康危害渐趋认可, 但对于大气 NPs 的形成机理和健康效应目前仍然存在很多不足. 从纳米颗粒物定义诞生至今, 国内外学者对 NPs 开展浓度及粒径分布、成分分析及毒理学和流行病学健康效应等多方面的研究, 由于 NPs 采样方法和检测技术还存在诸多因素限制, 目前研究结果还不足以使我们对大气环境 NPs 有充分认识. 笔者根据已有研究, 结合分析我国目前 NPs 研究存在问题并提出建议如下:

(1) 当前国内对 NPs 的研究数据较为分散, 数据利用率比较低, 研究内容比较单一, 往往只集中在某一方面, 研究结果还不足以说明 NPs 的形成机制、健康效应, 需要开展对 NPs 常规化监测研究.

(2) 由于在采取措施降低 TSP 和 $PM_{2.5}$ 的过程中有可能导致 NPs 浓度大幅增加, 而 NPs 在颗粒物中数浓度大且粒径很小, 对人体健康会产生较大危害, 政府应同时加大对纳米颗粒物来源和污染控制研究的投入力度.

(3) NPs 数浓度和质量浓度相关关系较差, 要利用 NPs 质量浓度来获得对数浓度的充分了解很困难, 因此在加强对大气细粒子质量浓度研究和控制的同时, 也应该加强对其数浓度的研究和控制, 同时应加强 NPs 健康效应 (数浓度、化学成分等) 与颗粒物理化特性 (如来源、成分、大小、结构等) 的相关性研究.

(4) 目前国内外对不同来源 NPs 物理化学特性研究较少, 因其可以较好保留排放源的原始特征, 建议进行不同排放源及环境空气 NPs 排放特征和理化特性研究, 及 NPs 离线及在线一体化源解析技术研究, 以便更好地开展大气颗粒物源解析工作.

(5) NPs 的研究高度依赖于先进技术手段的更新, 要更深入理解 NPs 及其对环境、健康的影响, 需

要开展先进的 NPs 采样技术、分析技术和模拟技术研究, 为 NPs 机理研究提供技术支持.

(6) 虽然欧美大气低剂量暴露下 NPs 生物毒理效应研究结果对我们有借鉴意义, 但不能直接用于我国大气颗粒物较高数浓度与质量浓度暴露下的情况. 为了解决我国当前大气重污染频发下的环境和健康难题, 应结合 NPs 源特征、粒径分布及理化特性, 加强 NPs 毒理学、流行病学和防护研究, 获得特殊污染背景下超细颗粒物对人体的健康效应, 从而更及时地采取相应管控措施以降低 NPs 对环境及人体的健康危害.

致谢: 感谢匿名审稿专家提出的宝贵修改建议和意见!

References

- Allen, J. L., Liu, X., Weston, D., et al., 2014. Developmental Exposure to Concentrated Ambient Ultrafine Particulate Matter Air Pollution in Mice Results in Persistent and Sex-Dependent Behavioral Neurotoxicity and Glial Activation. *Toxicological Sciences*, 140(1): 160.
- Borm, P. J., Kreying, W., 2004. Toxicological Hazards of Inhaled Nanoparticles—Potential Implications for Drug Delivery. *Journal of Nanoscience & Nanotechnology*, 4(5): 521.
- Chen, L. C., Peoples, S. M., Amdur, M. O., 1991. Pulmonary Effects of Sulfur Oxides on the Surface of Copper Oxide Aerosol. *American Industrial Hygiene Association Journal*, 52: 187–191.
- Chen, M., Von, M. A., 2005. Formation of Nucleoplasmic Protein Aggregates Impairs Nuclear Function in Response to SiO_2 Nanoparticles. *Experimental Cell Research*, 305(1): 51.
- Chung, A., And, J. D. H., Kleeman, M. J., 2001. Detection of Alkaline Ultrafine Atmospheric Particles at Bakersfield, California. *Environmental Science & Technology*, 35(11): 2184–2190.
- Dai, C., Huang, Y., Zhou, Y., 2014. Research Progress about the Relationship between Nanoparticles Silicon Dioxide and Lung Cancer. *Chinese Journal of Lung Cancer*, 17(10): 760.
- Duan, J. C., Bi, X. H., Tan, J. H., et al., 2006. The Particle Diameter Distribution of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Atmospheric Particle during Haze Period in Guangzhou. *China Environmental Science*, 26(1): 6–10 (in Chinese with English abstract).
- Duan, J. C., Li, X. H., Hao, J. M., 2008. Size Distribution of Fine Particle Number in Winter in Beijing. *Environmental Monitoring in China*, 24(2): 54–59 (in Chinese with English abstract).
- Duan, J. C., Li, X. H., Tan, J. H., et al., 2009. Size Distribution

- and Source Apportionment of Atmospheric Particle Number Concentration in Winter in Beijing. *Research of Environmental Sciences*, 22(10): 1134–1140 (in Chinese with English abstract).
- Ebel, S., Brauer, M., Cyrys, J., et al., 2001. Air Quality in Postunification Erfurt, East Germany; Associating Changes in Pollutant Concentrations with Changes in Emissions. *Environmental Health Perspectives*, 109: 325–333.
- Elder, A., Gelein, R., Silva, V., et al., 2006. Translocation of Inhaled Ultrafine Manganese Oxide Particles to the Central Nervous System. *Environmental Health Perspectives*, 114(8): 1172.
- Fine, P. M., Chakrabarti, B., Krudysz, M., et al., 2004. Diurnal Variations of Individual Organic Compound Constituents of Ultrafine and Accumulation Mode Particulate Matter in the Los Angeles Basin. *Environmental Science & Technology*, 38(5): 1296–1304.
- Fine, P. M. S., Sioutas, C., 2004. Inferring the Sources of Fine and Ultrafine Particulate Matter at Downwind Receptor Sites in the Los Angeles Basin Using Multiple Continuous Measurements. *Aerosol. Sci. Technol.*, 38: 182–195.
- Fubini, B., Mollo, L., Giamello, E., 1995. Free Radical Generation at the Solid/Liquid Interface of Iron-Containing Minerals. *Free Radical Research*, 23: 593–614.
- Gilmour P. S., Brown, D. M., Lindsay, T. G., et al., 1996. Adverse Health Effects of PM₁₀ Particles: Involvement of Iron in Generation of Hydroxyl Radical. *Occupational Environmental Medicine*, 53: 817–822.
- Gómez-Moreno, F. J., Pujadas, M., Plaza, J., et al., 2011. Influence of Seasonal Factors on the Atmospheric Particle Number Concentration and Size Distribution in Madrid. *Atmospheric Environment*, 45(18): 3169–3180.
- Hitchins, J., Morawska, L., Wolff, R., et al., 2000. Concentrations of Submicrometre Particles from Vehicle Emissions near a Major Road. *Atmospheric Environment*, 34: 51–59.
- Hofman J., Staelens J., Cordell R., et al., 2016. Ultrafine Particles in Four European Urban Environments; Results from a New Continuous Long-Term Monitoring Network. *Atmospheric Environment*, 136: 68–81. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.04.010>
- Höhr, D., Steinfartz, Y., Schins, R. P. F., et al., 2002. The Surface Area Rather than the Surface Coating Determines the Acute Inflammatory Response after Instillation of Fine and Ultrafine TiO₂ in the Rat. *International Journal of Hygiene & Environmental Health*, 205(3): 239–244.
- Hu, B., Chen, R., Xu, J. X., et al., 2015. Health Effects of Ambient Ultrafine (Nano) Particles in Haze. *Chinese Science Bulletin*, 60(30): 2808–2823 (in Chinese with English abstract).
- Hu, M., Liu, S., Wu, Z. J., et al., 2006. Effect of High Temperature, High Relative Humidity and Rain Process on Particle Size Distributions in the Summer of Beijing. *Environmental Science*, 27(11): 2293–2298 (in Chinese with English abstract).
- Hu, Z. Y., Li, J., Tan, P. Q., et al., 2012. Research on NEDC Ultrafine Particle Emission Characters of a Port Fuel Injection Gasoline Car. *Environmental Science*, 33(12): 4181–4187 (in Chinese with English abstract).
- Hussein, T., Puustinen, A., Aalto, P. P., et al., 2003. Urban Aerosol Number Size Distributions. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 3(5): 391–411.
- Inoue, K., Yanagisawa, R. E., Nishikawa, M., et al., 2010. Repeated Pulmonary Exposure to Single-Walled Carbon Nanotubes Exacerbates Allergic Inflammation of the Airway; Possible Role of Oxidative Stress. *Free Radical Biology & Medicine*, 48(7): 924–934.
- Jeong, C. H. H., Chalupa, D., Utell, M., 2004. Characteristics of Nucleation and Growth Events of Ultrafine Particles Measured in Rochester, NY. *Environ. Sci. & Technol.*, 38(7): 1933–1940.
- Junker, M., Kasper, M., Rööösli, M., et al., 2000. Airborne Particle Number Profiles, Particle Mass Distributions and Particle-Bound Pah Concentrations with in the City Environment of Basel; An Assessment as Part of the Briska Project. *Atmospheric Environment*, 34: 3171–3181.
- Kang, Y. B., Zhu, Y. J., Lin, F., et al., 2016. Influencing Factors of Acoustic Agglomeration of Ultrafine Particles. *Journal of Shanghai Jiaotong University*, 50(4): 551–556 (in Chinese with English abstract).
- Kim, S. S., Sioutas, C., Zhu, Y. F., et al., 2002. Size Distribution and Diurnal and Seasonal Trends of Ultrafine Particles in Source and Receptor Sites of the Los Angeles Basin. *Air and Waste Manage. Assoc.*, 52: 297–307.
- Kittelson, D. B., Watts, W. F., Johnson, J. P., 2004. Finepartilce (Nanoparticle) Emissions on Minnesota Highways. *Atmospheric Environment*, 38: 9–19.
- Knibbs, L. D., Morawska L., 2012. Traffic-Related Fine and Ultrafine Particle Exposures of Professional Drivers and Illness: An Opportunity to Better Link Exposure Science and Epidemiology to Address an Occupational Hazard? *Environment International*, 49(20): 110–114.
- Kreyling, W. G., Semmler-Behnke, M., Möller, W., 2006. Ultrafine Particle-Lung Interactions: Does Size Matter? *Journal of Aerosol Medicine*, 19(1): 74.
- Kreyling, W. G., Semmler-Behnke, M., Takenaka, S., et al.,

2013. Differences in the Biokinetics of Inhaled Nano-versus Micron-Sized Particles. *Accounts of Chemical Research*, 46(3):714–22.
- Lan, X. H., Li, R. H., Mi, B. B., et al., 2016. Distribution Characteristics of Rare Earth Elements in Surface Sediment and Their Provenance Discrimination in the Eastern Bohai and Northern Yellow Seas. *Earth Science*, 41(3):463–474 (in Chinese with English abstract). <https://doi.org/10.3799/dqkx.2016.038>
- Li, K. X., Cao, H. Y., Wang, B., et al., 2010. Oxidative Stress and Inflammatory Effect on A549 Cell Line Induced by Three Typical Nano-Particles. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 5(6):787–792 (in Chinese with English abstract).
- Li, N., Sioutas, C., Cho, A., et al., 2003. Ultrafine Particulate Pollutants Induce Oxidative Stress and Mitochondrial Damage. *Environment Health Perspect*, 111(4):455–460.
- Li, R., Navab, K., Hough, G., et al., 2015. Effect of Exposure to Atmospheric Ultrafine Particles on Production of Free Fatty Acids and Lipid Metabolites in the Mouse Small Intestine. *Environment Health Perspectives*, 123(1):34–41.
- Lin, C., Chen, S., Huang, K., 2006. Characteristics of Metals in Nano/Ultrafine/Fine/Coarse Particles Collected beside a Heavily Trafficked Road. *Environmental Science & Technology*, 39:8113–8122.
- Lin, C. C., Tsai, J. H., Huang, K. L., et al., 2016. Characteristics of Respirable Particulate Metals Emitted by a Beehive Firework Display in Yanshuei Area of Southern Taiwan. *Aerosol & Air Quality Research*, 16(9):2227–2236.
- Lin, J., Liu, W., Li, Y., et al., 2009. Elemental Size Distribution of Airborne Fine and Ultrafine Particulate Matters in the Suburb of Shanghai, China. *Environmental Science*, 30(4):982–987 (in Chinese with English abstract).
- Lin, Z., Ma, L., Zhu, G. X., et al., 2013. A Comparative Study of Lung Toxicity in Rats Induced by Three Types of Nanomaterials. *Nanoscale Research Letters*, 8(1):1–11.
- Linak, W. P., Yoo, J. I., Wasson, S. J., et al., 2007. Ultrafine Ash Aerosols from Coal Combustion: Characterization and Health Effects. *Proceedings of the Combustion Institute*, 31(2):1929–1937.
- Lonati, G., Crippa, M., Gianelle, V., et al., 2011. Daily Patterns of the Multi-Modal Structure of the Particle Number Size Distribution in Milan, Italy. *Atmospheric Environment*, 45(14):2434–2442.
- Longley, I. D. G., Dorsey, M. W., Flynn, J. R., et al., 2003. A Case Study of Aerosol ($4.6 \text{ nm} < D_p < 10 \text{ }\mu\text{m}$) Number and Mass Size Distribution Measurements in a Busy Street Canyon in Manchester, UK. *Atmos. Environ.*, 37:1563–1571.
- Ma, N., Birmili, W., 2015. Estimating the Contribution of Photochemical Particle Formation to Ultrafine Particle Number Averages in an Urban Atmosphere. *Science of the Total Environment*, 512–513:154.
- Matson, U., 2005. Indoor and Outdoor Concentrations of Ultrafine Particles in Some Scandinavian Rural and Urban Areas. *Science of the Total Environment*, 343:169–176.
- McMurry, P. H., Woo, K. S., 2002. Size Distributions of 3–100 nm Urban Atlanta Aerosols: Measurement and Observations. *J. Aerosol Med. Deposition Clearance Effects Lung*, 15:169–178.
- Molnar, P. J. S., Hallquist, M., 2002. Roadside Measurements of Fine and Ultrafine Particles at a Major Road North of Gothenberg. *Atmos. Environ.*, 36:4115–4123.
- Ni, Y., Tu, X. Y., Zhu, Y. D., et al., 2014. Concentrations of Fine Particulate Matters and Ultrafine Particles and Influenced Factors during Winter in an Area of Beijing. *Journal of Peking University (Health Sciences)*, 46(3):389–394 (in Chinese with English abstract).
- Nilsson, E. D. R., Kulmala, M., Buzorius, et al., 2001. Effects of Continental Boundary Layer Evolution, Convection, Turbulence and Entrainment, on Aerosol Formation. *Tellus*, 53B:441–461.
- Oberdorster, G., Ferin, J., Gelein, R., et al., 1992. Role of the Alveolar Macrophage in Lung Injury: Studies with Ultrafine Particles. *Environmental Health Perspectives*, 97:193–199.
- Oberdorster, G., Ferin, J., Lehnert, B. E., 1994. Correlation between Particle Size, in Vivo Particle Persistence and Lung Injury. *Environmental Health Perspectives*, 102:173–179.
- Oberdorster, G., Utell, M. J., 2002. Ultrafine Particles in the Urban Air: To the Respiratory Tract and Beyond? *Environmental Health Perspectives*, 110:A440–A441.
- Pakkanen, T. A., Kerminen, V., Korhonen, C. H., et al., 2001. Urban and Rural Ultrafine ($\text{PM}_{0.1}$) Particles in the Helsinki Area. *Atmospheric Environment*, 35:4593–4607.
- Pauluhn, J., 2012. Subchronic Inhalation Toxicity of Iron Oxide (Magnetite, Fe_3O_4) in Rats: Pulmonary Toxicity is Determined by the Particle Kinetics Typical of Poorly Soluble Particles. *Journal of Applied Toxicology*, 32(7):488–504.
- Penttinen, P. T., Tiittanen, P., Mirme, A., et al., 2001. Ultrafine Particles in Urban Air and Respiratory Health among Adult Asthmatics. *Eur. Respir. J.*, 17:428–435.

- Peters, A., Wichmann, H. E., Tuch, T., et al., 1997. Respiratory Effects are Associated with the Number of Ultrafine Particles. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, 155(4): 1376—1383.
- Rahman, Q., Lohani, M., Dopp, E., et al., 2002. Evidence that Ultrafine Titanium Dioxide Induces Micronuclei and Apoptosis in Syrian Hamster Embryo Fibroblasts. *Environmental Health Perspectives*, 110(8): 797—800.
- Reents, W. D., Ge, Z., 2000. Simultaneous Elemental Composition and Size Distributions of Submicron Particles in Real Time Using Laser Atomization Ionization Mass Spectrometry. *Aerosol Science & Technology*, 33(1—2): 122—134.
- Qian, L., Yin, Y., Tong, Y. Q., et al., 2008. Characteristics of Size Distributions of Atmospheric Fine Particles in the North Suburban Area of Nanjing. *China Environmental Science*, 28(1): 18—22 (in Chinese with English abstract).
- Qiu, M. D., Li, X., Wang, X. Y., et al., 2014. Microanalysis Study of the Inspirable Nano-Particles into Lungs by SEM and XREDS. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 34(4): 1114—1117 (in Chinese with English abstract).
- Sardar, S. B., Geller, M. D., Sioutas, C., et al., 2006. Development and Evaluation of a High-Volume Dichotomous Sampler for Chemical Speciation of Coarse and Fine Particles. *Journal of Aerosol Science*, 37(11): 1455—1466.
- Schlesinger, R. B., 1989. Factors Affecting the Response of Lung Clearance System to Acid Aerosols Role of Exposure Concentration, Exposure Time, and Relative Acidity. *Environmental Health Perspectives*, 79: 121—126.
- Shen, B. Y., Liu, B., Liu, H. L., et al., 2016. Xiaomei Ductile Shear Zone on Hainan Island in a Nanoscale Perspective. *Earth Science*, 41(9): 1489—1498 (in Chinese with English abstract). <https://doi.org/10.3799/dqkx.2016.504>
- Shi, Z., He, K., Yu, X., et al., 2007. Diurnal Variation of Number Concentration and Size Distribution of Ultrafine Particles in the Urban Atmosphere of Beijing in Winter. *Journal of Environmental Sciences*, 19: 933—938.
- Shvedova, A. A., Fabisiaik, J. P., Kisin, E. R., et al., 2008. Sequential Exposure to Carbon Nanotubes and Bacteria Enhances Pulmonary Inflammation and Infectivity. *American Journal of Respiratory Cell & Molecular Biology*, 38(5): 579—90.
- Singh, M., Phuleria, H. C., Bowers, K., et al., 2005. Seasonal and Spatial Trends in Particle Number Concentrations and Size Distributions at the Children's Health Study Sites in Southern California. *J. Expos. Sci. Environ Epidemiol.*, 16(1): 3—18.
- Stanier, C. O., Khlystov, A. Y., Pandis, S. N., 2004. Ambient Aerosol Size Distributions and Number Concentrations Measured during the Pittsburgh Air Quality Study (Paqs). *Atmos. Environ.*, 38: 3275—3284.
- Sun, Z., Xie, X. F., Yang, W. J., et al., 2014. Size Distribution and Number Emission Characteristics of Ultrafine Particles from Coal Combustion. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 34(12): 3126—3132 (in Chinese with English abstract).
- Tan, J., Duan, J., Zhen, N., et al., 2016. Chemical Characteristics and Source of Size-Fractionated Atmospheric Particle in Haze Episode in Beijing. *Atmospheric Research*, 167: 24—33.
- Tan, J. H., Duan, J. C., Chai, F. H., et al., 2014. Source Apportionment of Size Segregated Fine/Ultrafine Particle by Pmf in Beijing. *Atmospheric Research*, 139(6): 90—100.
- Vakeva, M. H., Kulmala, M., Lahdes, R., et al., 1999. Street Level versus Rooftop Concentrations of Submicron Aerosol Particles and Gaseous Pollutants in an Urban Street Canyon. *Atmos. Environ.*, 33: 1385—1397.
- Wallace, L. A., Emmerich, S. J., Howard-Reed, C., 2004. Source Strengths of Ultrafine and Fine Particles due to Cooking with a Gas Stove. *Environmental Science & Technology*, 38: 2304—2311.
- Wang, X., Katwa, P., Podila, R., et al., 2011. Multi-Walled Carbon Nanotube Instillation Impairs Pulmonary Function in C57bl/6 Mice. *Particle & Fibre Toxicology*, 8(1): 24.
- Wang, Y., Feng, W. Y., Zhao, Y. L., et al., 2009. Central Neurotoxicity Effects of Nanoparticles. *Science in China (Series B)*, 39(2): 106—120 (in Chinese).
- Wichmann, H. E., Tuch, T., Wölke, G., et al., 2000. Daily Mortality and Fine and Ultrafine Particles in Erfurt, Germany Part I: Role of Particle Number and Particle Mass. *Research Report*, 98: 5—86.
- Wu, Z., Hu, M., Lin, P., et al., 2008. Particle Number Size Distribution in the Urban Atmosphere of Beijing, China. *Atmospheric Environment*, 42(34): 7967—7980.
- Xie, X. F., Sun, Z., Yang, W. J., 2014. Characterization of Ultrafine Particle Size Distribution in the Urban Atmosphere of Hangzhou in Spring. *Environmental Science*, 35(2): 436—441 (in Chinese with English abstract).
- Xiong, L. L., Wu, T. S., Tang, M., 2015. Research on Advance of Health Effects of Nanoparticles on Air Pollution in China. *Chinese Journal of Preventive Medicine*, (9): 835—839 (in Chinese with English abstract).
- Yang, C. J., Zhang, Y. X., Lu, W. Z., et al., 2006. Study on Size Distribution of Aerosol Nanoparticulates in Shanghai City. *The Chinese Journal of Process Engineering*, 6(Suppl.2): 105—109 (in Chinese with English abstract).
- Yang, D., 2012. Pollution Characteristics of NPAHs in At-

- mospheric Particulates and Its Impact on Human Health in Dongguan (Dissertation), South China University of Technology, Guangzhou (in Chinese with English abstract).
- Ye, X. N., Chen, J. M., 2009. Advances in the Mechanism of Secondary Fine Particulate Matters Formation. *Progress in Chemistry*, 21 (2/3): 288—296 (in Chinese with English abstract).
- Yu, D. X., Xu, M. H., Yao, H., et al., 2008. Physical and Chemical Properties and Potential Health Hazards of Coal-Fired Nanoparticles. *Chinese Science Bulletin*, 53 (21): 2654—2660 (in Chinese).
- Zhang, R., Lü, S. L., Shang, Y., et al., 2012. Comparison of Physicochemical Characterization of Shanghai Ambient Ultrafine Particles and Engineered Nano Particles and Their Cytotoxicity. *Environmental Science*, 33 (5): 1431—1437 (in Chinese with English abstract).
- Zhang, W. G., Wei, X. D., Lin, D., et al., 2016. Experimental Study on the Influence of Polyoxymethylene Dimethyl Ethers (PODE) on Ultrafine Particle Emission of a Compression Ignition Engine. *Journal of Automotive Safety and Energy*, 7 (3): 330—336 (in Chinese with English abstract).
- Zhang, Y. X., Yang, C. J., Lu, W. Z., et al., 2007. Characterizing of the Size Distribution of Indoor Airborne Nanoparticle. *Journal of the Graduate School of the Chinese Academy of Sciences*, 24 (5): 705—709 (in Chinese with English abstract).
- Zhu, C., Zhang, X., 2010. Emission Factors for Fine/Ultrafine Particle Numbers from Vehicles in a Road Tunnel. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 30 (7): 1352—1357 (in Chinese with English abstract).
- 附中中文参考文献**
- 段菁春, 毕新慧, 谭吉华, 等, 2006. 广州灰霾期大气颗粒物中多环芳烃粒径的分布. *中国环境科学*, 26(1): 6—10.
- 段菁春, 李兴华, 郝吉明, 2008. 北京市冬季大气细粒子数浓度的粒径分布特征. *中国环境监测*, 24(2): 54—59.
- 段菁春, 李兴华, 谭吉华, 等, 2009. 北京冬季大气颗粒物数浓度的粒径分布特征及来源. *环境科学研究*, 22(10): 1134—1140.
- 胡彬, 陈瑞, 徐建勋, 等, 2015. 雾霾超细颗粒物的健康效应. *科学通报*, 60(30): 2808—2823.
- 胡敏, 刘尚, 吴志军, 等, 2006. 北京夏季高温高湿和降水过程对大气颗粒物谱分布的影响. *环境科学*, 27(11): 2293—2298.
- 胡志远, 李金, 谭丕强, 等, 2012. 汽油轿车 NEDC 循环超细颗粒物排放特性. *环境科学*, 33(12): 4181—4187.
- 康豫博, 朱益佳, 蔺锋, 等, 2016. 超细颗粒物超声波团聚的影响因素. *上海交通大学学报*, 50(4): 551—556.
- 蓝先洪, 李日辉, 密蓓蓓, 等, 2016. 渤海东部和黄海北部表层沉积物稀土元素的分布特征与物源判别. *地球科学*, 41(3): 463—474.
- 李可欣, 曹红英, 王斌, 等, 2010. 三种典型纳米颗粒物造成的人体肺细胞氧化应激和炎症效应. *生态毒理学报*, 5(6): 787—792.
- 林俊, 刘卫, 李燕, 等, 2009. 上海市郊区大气细颗粒和超细颗粒物中元素粒径分布研究. *环境科学*, 30(4): 982—987.
- 倪洋, 涂星莹, 朱一丹, 等, 2014. 北京市某地区冬季大气细颗粒物和超细颗粒物污染水平及影响因素分析. *北京大学学报(医学版)*, 46(3): 389—394.
- 钱凌, 银燕, 童尧青, 等, 2008. 南京北郊大气细颗粒物的粒径分布特征. *中国环境科学*, 28(1): 18—22.
- 仇满德, 李旭, 王晓燕, 等, 2014. 大气可吸入肺纳米颗粒的 SEM 及 X 射线微分析研究. *光谱学与光谱分析*, 34(4): 1114—1117.
- 沈宝云, 刘兵, 刘海龄, 等, 2016. 海南岛小妹韧性剪切带的纳米尺度. *地球科学*, 41(9): 1489—1498.
- 孙在, 谢小芳, 杨文俊, 等, 2014. 煤燃烧超细颗粒物的粒径分布及数浓度排放特征试验. *环境科学学报*, 34(12): 3126—3132.
- 王云, 丰伟悦, 赵宇亮, 等, 2009. 纳米颗粒物的中枢神经毒性效应. *中国科学(B辑)*, 39(2): 106—120.
- 谢小芳, 孙在, 杨文俊, 2014. 杭州市春季大气超细颗粒物粒径谱分布特征. *环境科学*, 35(2): 436—441.
- 熊丽林, 吴添舒, 唐萌, 2015. 大气纳米颗粒物对人体健康效应的研究进展. *中华预防医学杂志*, (9): 835—839.
- 杨传俊, 张元勋, 陆文忠, 等, 2006. 上海大气纳米颗粒物粒径分布研究. *过程工程学报*, 6(增刊 2): 105—109.
- 杨丹, 2012. 东莞市大气颗粒物中 NPAHs 的污染特征及其对人体健康的影响评价(硕士学位论文). 广州: 华南理工大学.
- 叶兴南, 陈建民, 2009. 大气二次细颗粒物形成机理的前沿研究. *化学进展*, 21(2/3): 288—296.
- 于敦喜, 徐明厚, 姚洪, 等, 2008. 燃煤纳米颗粒物的物化特性及其潜在健康危害. *科学通报*, 53(21): 2654—2660.
- 张睿, 吕森林, 尚羽, 等, 2012. 上海大气超细颗粒物和工业纳米颗粒的表征及细胞毒性的比较研究. *环境科学*, 33(5): 1431—1437.
- 张武高, 魏小栋, 林达, 等, 2016. 聚甲氧基二甲醚对发动机超细颗粒排放特性影响的试验研究. *汽车安全与节能学报*, 7(3): 330—336.
- 张元勋, 杨传俊, 陆文忠, 等, 2007. 室内气溶胶纳米颗粒物的粒径分布特征. *中国科学院大学学报*, 24(5): 705—709.
- 朱春, 张旭, 2010. 机动车细微/超细颗粒物数浓度排放因子隧道实测研究. *环境科学学报*, 30(7): 1352—1357.