

大气汞源解析受体模型研究进展^{*}

刘娜^{1,2} 仇广乐^{1,*} 冯新斌¹

(¹中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550002 ²中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要 大气汞循环演化对全球汞的生物地球化学循环起着极其重要的作用。人为活动(化石燃料燃烧、水泥生产、氯碱制造以及金属冶炼与加工等)已成为大气汞的重要来源。在一定条件下,大气中的汞会发生干湿沉降而对某一局部环境——受体产生很大的影响。大气汞沉降在城市和工业区呈现出很强的空间梯度现象,排放源附近的汞沉降量明显较强。利用对受体的研究开展大气汞的源解析工作,是大气汞研究的一个重要领域。本文综述了污染源解析的受体模型的研究及应用,介绍了化学质量平衡法、因子分析法、正交矩阵因子分解法、多元线性回归法等方法,概括了源解析在大气汞方面的应用成果,对我国区域大气汞源解析受体模型的建立及应用进行了探讨。

关键词 大气汞; 释放源; 源解析; 受体模型

中图分类号 S963 **文献标识码** A **文章编号** 1000-4890(2010)4-0798-07

Source receptor models for atmospheric mercury: A review. LIU Na², QIU Guangle¹, FENG Xinbin¹ (¹ State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China; ² Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China). Chinese Journal of Ecology 2010 29(4): 798-804

Abstract The behaviors of mercury in atmosphere play a significant role in global mercury biogeochemical cycling while anthropogenic activities such as fossil fuel combustion, cement production, chlorine alkali cell manufacturing and iron steel processing have been the main sources of atmospheric mercury. Under definite conditions, the atmospheric mercury can be dry or wet deposited giving greater effects on certain local environments (receptors). For example, significant spatial mercury deposition gradients are observed in urban and industrial areas and larger amount of mercury deposition appears nearby the anthropogenic sources. Therefore, using a multi-element tracer approach to analyze the sources of atmospheric mercury becomes a main field in atmospheric mercury study. This paper described the development of receptor models for the source analysis of pollutants and summarized the achievements of the application of source receptor models in atmospheric mercury study. The establishment and application of source receptor models in analyzing the atmospheric mercury in China were proposed.

Key words atmospheric mercury; emission sources; source analysis; receptor model

大气中的汞通常以 3 种形态存在: 原子气态汞 (Hg^0)、活性气态汞 (RGM) 和颗粒态汞 ($Hg(P)$), 其中 Hg^0 具有较强的惰性, 在大气中的居留时间长, 可达 0.5~2 年, 能随大气进行长距离的迁移, RGM 和 $Hg(P)$ 分别具有很强的水溶性和界面吸附能力, 因此在大气中居留的时间很短, 易于沉降 (Schroeder & Munthe 1998)。研究表明, 大气汞沉降具有明显的区域特征, 城市和工业区有很强的空间梯度现象, 排放

源附近的汞沉降量明显增强, 因此大气汞沉降对某一局部环境——受体 (receptor), 会产生很大影响 (Landis et al., 2004)。《第 8 届全球汞染污物国际会议》大气汞组专家认为, 利用对环境受体的研究开展大气汞的源解析工作, 是未来大气汞研究的一个重要领域 (Lindberg et al., 2007)。目前, 我国被认为是全球汞排放量最多的国家之一 (Streets et al., 2005; Pacyna et al., 2006), 很多城市地区不同程度的受到大气汞污染。西方及日本等发达国家率先开展了大气汞源解析的研究工作 (Dvonch et al.,

* 国家自然科学基金资助项目 (40773067)。

** 通讯作者 E-mail: qiuguangle@vip.sjkeg.cn

收稿日期: 2009-10-16 接受日期: 2009-12-28

1998-1999, Graney et al., 2004, Manolopoulos et al., 2007), 我国在大气汞形态含量特征及汞释放源方面做了大量的研究(王定勇等, 1996; 冯新斌等, 2004; 汤顺林等, 2004; 王章玮等, 2005; 王少锋等, 2006; 郑伟, 2007; 朱万泽等, 2007; 万奇等, 2008; Fu et al., 2008-2009), 但目前关于大气汞的源解析研究依然缺乏。大气汞的来源较多, 地区特性强, 若想有效控制和削减大气汞的含量, 不仅需要了解大气中汞的来源, 还需要定量计算出各个释放源对环境受体的贡献值。大气汞源解析受体模型的研究, 不仅可以识别和估算区域大气汞的来源及各源的贡献值, 还可以揭示区域大气汞的沉降特征, 对制定控制大气汞污染排放政策、确定污染治理重点提供科学依据。本文通过总结国内外关于受体模型在大气汞源解析方面的研究, 分析了大气汞源解析受体模型的应用现状及取得的成果, 以期为我国开展该方面的研究工作提供参考。

1 大气汞源解析

源解析方法主要采用两种数学模型: 一种是以污染源为研究对象的扩散模型(diffusion model), 另一种是以污染区域为研究对象的受体模型(receptor model)(Henry et al., 1984; Gordon 1988)。基于扩散模型应用的局限性, 美国、日本等国家从 20 世纪 70 年代起开始由排放源转移到受体, 进行大气颗粒物的源解析并得到很快发展, 随后受体模型在大气黑炭气溶胶、大气 SO_2 污染、大气颗粒物无机组分、土壤污染等领域广泛应用(戴树桂等, 1995; Schauer et al., 1996; Marcazzan et al., 2003; 罗莹华等, 2006; 张长波等, 2007)。受体是指受到污染源影响的某一局部的环境介质, 如大气颗粒物、气溶胶、降雨等。

受体模型就是通过测量排放源和受体样品的物理化学特征, 定性识别对受体有贡献的污染源及源对受体的贡献值(分担率)。受体模型着眼于研究排放源对受体的贡献, 不依赖于排放源的排放条件、气象、地形等数据, 不追踪污染物的迁移过程, 避免了扩散模型遇到的困难, 已得到了越来越广泛的应用(Gordon 1988; Inanoglu & Christensen, 2002; Watson et al., 2002; Fraser et al., 2003)。

大气中汞的来源主要包括自然源和人为源。自然源(如: 土壤表面的释放、自然水体的排放、植物表面的蒸腾作用、地热活动等)主要排放 Hg^0 (Stein

et al., 1996)。人为源(如: 燃煤、化石燃料燃烧、水泥生产、氯碱制造、以及金属冶炼与加工等)排放的汞包含了以上 3 种形态(Hg^0 : 53%、 RGM : 37%、 Hg^{p} : 10%), 约占全球汞排放量的 30%~50%(Pacyna & Pacyna 2002; Pacyna et al., 2006; Wu et al., 2006)。如上所述, 不同形态的大气汞, 其迁移和演化过程不同, 大气汞源解析受体模型的研究方法则是基于该理论的基础上, 分析环境受体(如大气颗粒物、气溶胶、湿沉降等)的汞形态分布含量特征的同时, 识别受体中能标识不同排放源的特有地球化学“指纹”特征, 即特征元素、元素组合或元素对比率, 由此来判别影响受体大气汞来源。特征元素也叫标识元素, 在污染源排放总量中占重要部分($>1\%$), 能表征排放源固有特征, 并且在迁移过程中变化不大, 不同的排放源, 排放的特征元素、元素组合或元素对比率不同(表 1)。

2 大气汞源解析受体模型及应用

受体模型从 20 世纪 70 年代出现至今, 经历了近 40 年的发展。目前的研究方法主要有显微镜法、物理法和化学统计法。显微镜法是根据单个颗粒物粒子的大小、颜色、形状、表面特征等形态上的特征来判断颗粒物排放的方法。化学统计法是目前应用最广, 发展也最为成熟的研究方法, 包括化学质量平衡法(CMB)、因子分析法(FA)、正交矩阵因子分解法(PMF)、主成份分析法(PCA)、富集因子法(EF)、多元线性回归法(MLR)、投影寻踪回归法(PPR)、粗集理论(RS)、基于遗传算法(GA)以及混合方法等。目前, 常用于大气汞源解析的受体模型主要有

表 1 不同类型释放源及排放的特征元素
Tab 1 Different sources and the trace metals

释放源	特征元素	参考文献
石油	V, Ni, La, Ce=1-2	Gordon 1988; Pacyna & Pacyna 2001; Querol et al., 2002
燃煤	As, Sb, Mo	Pacyna & Pacyna 2002
扬尘	Mg, Ti, Mn, La, Ce=0.5	Nriagu 1989
冶金	As, Zr, Ni, Cu, Cd, Pb	Pacyna & Pacyna 2001; Querol et al., 2002
垃圾	Pb, Sb	Dvonch et al., 1999; Christensen et al., 2001
地壳	Ti, Rb (Mn)	Querol et al., 2002; Limbeck et al., 2008
海洋	Mg, Sr, Cl, Na	Nriagu 1989; Querol et al., 2002
钢铁	Fe, Mn	Querol et al., 2002
交通	Zr, Cu, Cd, Pb, Ba	Stembeck et al., 2002; Lough et al., 2005

CMB, PMF, MLR, CMAQ, Umap 等。

2.1 化学质量平衡法 (CMB)

化学质量平衡法是美国 EPA 推荐应用于大气颗粒物、易挥发性有机物等污染物的来源及其贡献的源解析方法之一,其系统软件已发展到 CMB 8.0。CMB 模型是根据质量守恒原理,通过物种丰富度和源贡献的分析组合,解出各种源对污染物中各元素的浓度贡献值。CMB 模型是由一组线性方程构成的,表示每种化学元素的受体浓度等于源成分谱的元素含量值和源贡献浓度值乘积的线性和。CMB 模型基于以下假设: 1) 对环境受体有明显贡献的若干污染源类 (j); 2) 各源类排放的污染物化学组成有明显的差别; 3) 各源类排放的污染物的化学组成相对稳定,化学组分之间无明显影响; 4) 各类源排放的污染物之间没有相互作用,在传输过程中的变化可以忽略不计; 5) 所有污染源成分谱线性无关; 6) 污染源种类低于或等于化学组分种类; 7) 测量的不确定度是随机的,符合正态分布的。基于以上假设,在受体上测量的总物质浓度就是每一源类贡献值的线性加和,表达式如下:

$$C_i = \sum_j m_j X_{ij} + \alpha_i$$

式中: C_i 为在采样点受体中实测的污染物 i 的浓度; m_j 为未知的污染源的贡献率; X_{ij} 为已知的污染源指纹谱; α_i 为测量误差。

CMB 模型的求解方法主要有示踪元素法、普通加权最小二乘法、岭回归加权最小二乘法、部分最小方差法、神经网络法、有效方差最小二乘法和遗传算法等。其中最常采用的算法是有效方差最小二乘法,此算法考虑了环境受体处物质实测浓度的误差和在确定源成分谱时的分析误差,是使加权的元素测量值与计算值之差的平方和最小 (Gordon, 1988; 戴树桂等, 1995; 王帅杰和朱坦, 2002)。

目前化学质量平衡法在大气颗粒物的源解析应用上比较广,在大气汞源解析中也有应用。源解析结果表明,各地大气颗粒物的主要贡献源类存在一定的差异。由于 CMB 法在进行源解析时,要求各地区要时常监测源样品和受体样品,列出排放清单,不断更新本地区排放源成分谱,工作量大,技术难度高。CMB 法在多来源体系中,解析结果与实际情况比较吻合,但对排放源物质成分线性独立的要求很难满足 (方璇和耿长君, 2007; 金蕾和华蕾, 2007)。

2.2 矩阵因子分析法

正矩阵因子分析法 (PMF) 是由 Paatero 和 Tapper 在 1993 年提出的,首先利用权重确定出污染物化学组分中的误差,然后通过最小二乘法来确定出污染物的主要污染源及其贡献比率。确定未知混合物成分的特性及其各污染源的贡献是正矩阵因子分析法 (PMF) 的基本功能。PMF 模型具有不需要测量源指纹谱,分解矩阵中元素非负,可以利用数据标准偏差来进行优化等优点。PMF 假设 X 为 $n \times m$ 矩阵, n 为样品数, m 为化学成分数目,那么 X 可以分解为 $X = GF + E$, 其中, G 为 $n \times p$ 的矩阵, F 为 $p \times m$ 的矩阵, p 为主要污染源的数目, E 为残数矩阵,定义:

$$e_{ij} = x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj}$$

$$(i = 1, \dots, n; j = 1, \dots, m; k = 1, \dots, p)$$

$$Q(E) = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left(\frac{e_{ij}}{s_{ij}} \right)^2$$

式中, s_{ij} 为 X 的标准偏差,约束条件为 G 和 F 中的元素都为非负值,最优化目标是使 Q 趋于自由度值,这样可以确定出 G 和 F 通常认为 G 为源的载荷, F 为主要污染源的源廓线。

PMF 法在环境大气颗粒物的源解析方面得到广泛应用,其应用软件最新版本为 PMF 3.0。PMF 建模程序可分为三大步骤: 1) 根据监测数据进行建模; 2) 应用 PMF 处理数据,以制定一套可行的、有力的解决方案; 3) 分析结果。PMF 3.0 的软件应用如下: 首先,在支持 Windows 95 或更高版本的电脑上安装 PMF 3.0 软件,进入 PMF 3.0 应用界面,输入符合此软件格式 (.txt, .csv, .xls) 的输入文件。然后在模型运行前对输入数据进行初步处理: 1) 输入数值分析: 分析、剔除个别物种或样品的异常值; 2) 浓度散点图分析: 分析各污染物浓度之间的相关性,初步判别污染物的来源或污染源的种类; 3) 浓度时间序列分析: 分析比较样品时间浓度与预期时间。最后通过运行模型,初步得知污染物的来源,进而得出污染源的贡献率 (Norris et al., 2008)。

Keep 等 (2006) 通过用 PMF 法对美国俄亥俄州的湿沉降进行大气汞的源解析研究,确定了对大气汞有贡献的 6 种释放源: 钢铁产业、化石燃料燃烧、灰尘、燃煤、磷产业和钨工业,其中燃煤释放对大气汞的贡献率达到 73%, 钢铁产业和磷产业对大气汞的贡献率分别为 6% 和 2%。宋宇等 (2002) 采用

正矩阵因子分析法对 2000 年北京大气细粒子 ($PM_{2.5}$) 的主要来源进行了解析, 确定了影响大气 $PM_{2.5}$ 细粒子的地面扬尘、建筑源、生物质燃烧、二次源、机动车排放和燃煤 6 类主要污染源, 并估算了其对大气细粒子质量浓度的贡献。于国光等 (2008) 对北京市大气颗粒物中的多环芳烃进行正矩阵因子分解, 经分析得出汽油车各个季节的贡献率均超过 40%, 柴油车的贡献率为 19.37% ~ 29.45%; 冬季由于燃煤取暖, 使燃煤源的相对贡献增大。如果把汽油车和柴油车的贡献相加作为机动车尾气的贡献, 正矩阵因子分解和主成分分析多元线性回归得到的结果基本一致。

2.3 Ummix

Ummix 作为多元受体模型的分析方法之一, 其基本理念是“让数据自己说话”。Ummix 解决一般混合物问题时, 假定数据是一组污染物组成不详、来源数目不确定、源对每个样品的贡献不明的线性组合。通常情况, 解决一般混合物问题或对多元受体建模时会出现不识别的问题。Ummix 针对这一问题增设附加条件式, 使其得到唯一解。

假设一组数据为物种 M 的观察值, 则这组观测值可用 M 维数据空间分布图表示, 图上每个数据点代表采样周期内的物种浓度。对于有 N 个源的数据, 数据空间就为 $N-1$ 维。对每个源而言, 都有一些数据点的贡献源不存在或比其他来源贡献小, 这就是所谓的边缘点。Ummix 的工作原理就是找到这些点, 并寻求与这些点拟合的一个超平面, 又把这个超平面称为一个边, 即, 当 $n=3$ 时, 超平面为一条线。每个边限定了对单一源没有贡献的点。在有 N 个源时, $N-1$ 个超平面相交定义了一个点, 这个点只有一个贡献源, 即这一点就是各个源的混合物。按这种方法确定了 N 个源的组份, 就可以计算源的最适贡献值。

Ummix 软件应用如下: 在 Windows (2000, XP, Vista) 系统下安装 EPA Ummix 6.0 软件, 进入应用界面, 输入数据文件 (文件格式: .txt, .dat, .csv, .exl)。第一部分: 软件分析数据, 得到数据的个数、浓度中值、平均绝对偏差和标准偏差, 再用“数据剔除”功能剔除异常值。第二部分: Ummix 软件通过对数据的最大方差因子分析得出 3~5 种污染物的模型, 再对模型进行修正: 增加污染物种类、计算各源的贡献率、各污染源的不确定性等等, 最后给出可行的结果。第三部分: 验证模型结果: 释放源的

组成、释放源的贡献率、污染物成分分析、以及模型的不确定性, 最后输出结果 (Norris et al., 2007)。

Keefe 等 (2006) 用 Ummix 法对美国俄亥俄州的湿沉降进行源解析研究, 发现了 6 个对大气汞有贡献的释放源: 磷产业、焚烧、镍工业、钢铁工业、燃煤以及地壳灰尘, 但其中只有 3 个释放源的贡献率比较大: 燃煤 (69%)、垃圾焚烧 (12%)、镍工业 (12%)。与 PMF 法的研究结果相似, 对大气汞贡献较大的释放源为燃煤 (73%)、钢铁产业 (6%) 和磷产业 (2%)。

2.4 主成份分析法 因子分析

主成分分析 因子分析法 (Principal components analysis PCA/ factor analysis FA) 是多元统计分析中的重要组成部分, 其核心是运用降维的思想将研究对象的多个相关变量转化为少数几个不相关的变量, 并且要求这些不相关的综合变量能够反映原变量提供的大部分信息, 以保证分析结果的准确性。主成分分析 因子分析法是从相关矩阵或协方差矩阵出发, 对高维变量系统进行最佳的综合与简化, 其基本方程式是:

$$D_{(m \times n)} = C_{(m \times m)} \times R_{(m \times n)}$$

式中: D 为由 m 个样品中对 n 个变量观测结果组成的矩阵; C 为因子载荷矩阵, 表示源成分谱; R 为因子得分矩阵, 表示污染源的贡献率。在源解析中应用这种方法, 需要以下几个假定: 1) 污染源成分谱在从源到受体这段距离没有显著变化; 2) 单个污染物通量的变化与浓度成比例; 3) 在给定时段污染物总通量是所有已知源通量的总和; 4) 源成分谱和贡献率都线性无关; 5) 所有采样点均主要受几个相同源的影响。诊断解析结果的手段有决定系数 (coefficient of determination COD)、方差累计贡献 (cumulative percent variance) 和 Exner 方程。解析结果中包含的因子数量越多, 单个污染物的 COD 越接近于 1, 方差累计贡献越接近于 100%, Exner 方程值越小。一般只要选取方差累计贡献大于 85% 的因子组合。最后根据实测的污染源成分谱, 通过参数 $\log Q$ 来确定诱引子分析/主成分分析得到的几个主要因子究竟是哪种类型的源。

$$\log Q = \sum_{i=1}^m \log Q \frac{C_{ip}}{C_{in}}$$

式中, C_{ip} 为模型的预测值, C_{in} 为实测值。 $\log Q$ 为 j 源 m 个污染物预测值与实测值的自然对数差的平方和, 该值越小, 说明预测污染源类型与实测污染源

类型越接近 (Kum m & Baqaç 2001; Pekey et al, 2004)。

Dvonch等 (1999)将 PCA法应用于美国南佛罗里达大气汞的源解析,通过对湿沉降的研究,揭示降水中 $73\% \pm 6\%$ 的大气汞来自当地人 为释放源,垃圾焚烧对大气汞的贡献率达到了 $56.7\% \pm 7.0\%$,而石油燃烧对大气汞的贡献率为 $14.4\% \pm 4.8\%$ 。Lynan和 Keefer(2006)用 PCA法对美国密歇根州底特律区的大气汞进行源解析,结果显示,光化学作用、燃煤和机动车尾气排放是当地大气汞的主要来源,其中光化学作用是导致气态活性汞含量较高的原因。

2.5 多元线性回归法

多元线性回归法 (multivariate linear regression MLR)又称示踪元素法。人们在进行城市大气污染源的化学成分时发现,不同功能源如:燃煤、冶金、燃煤等排放出的有些元素或其他物种含量差别很大。这些主要由某一种排放源排放的物种就称为示踪元素。通过测量受体的污染物浓度和分析各示踪元素的浓度进行多元回归,就可以得到污染物浓度与各示踪元素浓度的回归系数,最后计算各示踪元素对应排放源对受体中该种物质的贡献。在污染物源解析中一般不独立使用多元线性回归法,而是和其他方法结合使用 (如 APCS/MLR FA/MLR PCA/MLR 等)以弥补各种方法的缺陷 (Kleinman et al, 1980; Thurston & Spengler 1985; Morandi et al, 1987; 刘慧丽等, 2004)。

各种方法均有其局限性和最适用场合。例如,多元分析是“提出排放源假设”的技术,化学质量平衡法是“检验排放源假设”的技术,主成分分析可以识别源类别,多元线性回归可以计算源的分担率。因此,多元分析与化学质量平衡相结合,PCA与 ML-RA相结合,扬长避短,在实际的应用中也取得了较好的结果。Graney等 (2004)用 PCA/MLR法对美国南佛罗里达州的不同受体 (气溶胶)进行源解析研究,结果显示 93%的大气颗粒态汞可以找到释放源,其中 80%的大气颗粒态汞来自当地人 为源排放:生活垃圾焚烧的贡献率为 $56\% \pm 7\%$;金属冶炼贡献率为 $14\% \pm 5\%$;生活及医疗垃圾焚烧贡献率为 $11\% \pm 1\%$ 。Chi等 (2004)在台湾对不同空气质量条件下的 PM₁₀进行了源解析,用 PCA法解析出 6种主要源:汽车排气、扬尘、二次气溶胶、生物质燃烧、工业源、海盐,又用 CMB法解出了这些源的贡献率。Simonov等 (2003)对德国某地区的 62 个土壤

样品的 Cu Cr Fe Mn Ni Zn Pb等重金属含量的进行测定,用 PCA法鉴别出 4类主要释放源,分别是代表矿石开采、有色金属冶炼、水泥生产和钢铁冶炼,然后用 APCS计算出这 4类源对各种金属的贡献值。以上研究不仅明确了当地大气汞的来源,也确切地给出了各释放源的贡献率,揭示了当地大气汞的沉降特征,为当地政府有效控制和治理大气汞污染提供了科学依据。

3 我国大气汞源解析研究及展望

国内对大气汞源解析方面的研究工作起步比较晚,大气汞的研究内容主要集中在对形态含量特征及释放源的研究。

王平安等 (2007)在 2003 年对重庆市北碚区的大气汞进行了连续 1年的检测,结果显示北碚大气汞的空间分布受污染源、下垫面类型及风向的影响。北碚城区大气汞含量为 $3.5 \sim 10.7 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,受温度和降水的影响比较大;东阳镇大气汞含量高达 $23.3 \sim 173 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,高值分布具有明显的西南东北格局,主要受人为源影响。修光利等 (2005)通过对上海市大气中不同粒径颗粒态汞的时空分布特征的研究,发现大气中颗粒态汞主要集中在细颗粒物 ($< 8 \mu\text{m}$),而细颗粒物中惰性汞所占比重较大;据汞排污清单,燃煤是当地大气汞主要的污染源。2004—2006年,郑伟 (2007)以贵阳市为例,在不同功能区展开大气汞污染的研究,建立并完善了大气中不同形态汞的采集与分析方法,并在国内首次实现了对大气中总颗粒态汞 (TPM)、原子气态汞 (GEM)、活性气态汞 (RGM)的同步测量。研究表明:贵阳市中心城区大气中 GEM RGM TPM平均浓度分别达到 $9.11 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $132.4 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $1.02 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,显著高于对照区和全球背景参考值,并且各种形态汞浓度的分布均显示工业区 > 居民区 > 商业区 > 游览区 > 对照区。同时,郑伟 (2007)还利用 HR-TEM(谱图背景元素为 C和 Cu)对收集在微型捕集管内置滤膜上的大气颗粒物的常量元素组成及形态特征进行分析,定性识别 TPM的来源。研究发现,各采样点冬季 TPM的主要来源都有燃煤,不同功能区又分别有钢铁冶炼、水泥生产、生物质燃烧等释放源。Feng等 (2003—2004)研究也表明,贵阳市冬季大气气态总汞的浓度高,居民采暖燃煤释放是其主要来源。

针对我国偏远地区,付学吾 (2008)在西南贡嘎山大气本底站对大气汞 (TCM RGM TPM)进行了

为期 2 年(2005 年 5 月—2007 年 5 月)的高时间分辨率的系统检测,发现 TGM 平均浓度达到 $(3.94 \pm 1.16) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 高于欧洲和北美同类型地区的大气总汞浓度,同时还具有显著的时空分布特征;该区的气态总汞主要是受人为源的影响。贡嘎山地区东部四川盆地方向和南部云南方向的大气迁移,是贡嘎山地区大气气态汞输入的重要污染源,而冬季家庭生活活动的柴煤燃烧也是该地区大气汞的重要来源。另外,研究显示,我国长白山森林生态系统也已经受到了一定的大气汞污染,推断该区域的大气汞来源是人为释放大气汞的影响,尤其在冬季附近城镇的人工采暖成为该地区主要的和直接的大气汞来源(万奇, 2008)。

我国是全球公认的排汞大国,人为活动的汞排放已经造成了不同程度的大气汞污染。因此,进一步研究工作需要确定大气汞的主要释放源并定量计算出各个释放源对环境受体的贡献值,即进行大气汞的源解析研究。对环境中大气汞的源解析研究,国外工作已经取得了一些经验和研究成果。随着我国大气汞研究水平的不断提高,以及源解析受体模型技术的发展,借鉴国外经验建立起适合我国特征的大气汞排放源成分谱数据库,并建立我国区域大气汞源解析受体模型。这对我国治理环境污染、控制大气汞排放和提高大气质量具有重要意义。

参考文献

戴树桂,朱坦,白志鹏. 1995 受体模型在大气颗粒物源解析中的应用和进展. 中国环境科学, 15(4): 252—257

方璇,耿长君. 2007 污染物的源解析技术研究进展. 化工科技, 15(3): 60—64

冯新斌,李仲根,汤顺林,等. 2004 生活垃圾填埋场是大气汞的重要来源. 科学通报, 49(23): 2475—2479

付学吾. 2008 贡嘎山地区大气中不同形态汞的分布规律及影响因素(博士学位论文). 贵阳:中国科学院地球化学研究所.

金蕾,华蕾. 2007 大气颗粒物源解析受体模型应用研究及发展现状. 中国环境监测, 23(1): 38—42

刘慧丽,何宗健,彭希珑. 2004 受体模型在环境空气中大气颗粒物源解析研究进展. 江西化工, (4): 32—34

罗莹华,戴塔根,梁凯. 2006 大气颗粒物源解释研究综述. 地质与资源, 15(2): 157—160

宋宇,唐孝炎,方晨,等. 2002 北京市大气细粒子的来源分析. 环境科学, 23(6): 11—16

汤顺林,冯新斌,商立海,等. 2004 贵阳市小型燃煤锅炉烟气中汞的形态及释放. 环境科学研究, 17(2): 74—76

万奇,冯新斌,郑伟. 2008 长白山地区大气气态总汞含量的季节性特征研究. 环境科学, 29(2): 296—299

万奇. 2008 吉林省长白山地区大气中不同形态汞的含量分布及沉降通量(博士学位论文). 贵阳:中国科学院地球化学研究所.

王定勇,李孝华,吴成. 1996 重庆大气汞初步调查. 重庆环境科学, 18(4): 58—61.

王平安,张成,王春晓,等. 2007 重庆市北碚区大气汞时空变异研究. 西南大学学报, 29(3): 125—129

王少锋,冯新斌,仇广乐,等. 2006 大气汞的自然来源研究进展. 地球与环境, 34(2): 1—11

王帅杰,朱坦. 2002 大气颗粒物源解析技术研究进展. 环境污染治理技术与设备, 3(8): 8—12

王章玮,张晓山,张逸,等. 2005 汞在不同粒径大气颗粒物中的分布. 环境化学, 24(1): 72—75

修光利,张爱东,金庆西,等. 2005 大气中不同粒径颗粒态汞污染的时空分布特征. 华东理工大学学报(自然科学版), 31(4): 466—470

于国光,王铁冠,朱先磊,等. 2008 北京市西北郊大气气溶胶中多环芳烃的源解析. 环境化学, 27(2): 245—250

张长波,骆永明,吴龙华. 2007 土壤污染源解析方法及其应用研究进展. 土壤, 39(2): 190—195

郑伟. 2007 贵阳市中心城区大气中不同形态汞的研究(博士学位论文). 贵阳:中国科学院地球化学研究所.

朱万泽,付学吾,冯新斌. 2007 青藏高原东南缘贡嘎山地区大气总汞时间序列分析及其影响因素. 生态学报, 27(9): 3727—3737

Chio CP, Cheng MT, Wang CF, et al. 2004 Source apportionment to PM₁₀ in different air quality conditions for Taipei urban and coastal areas, Taiwan. Atmospheric Environment 38: 6893—6905

Christensen TH, Kjeldsen P, Bjerre PL, et al. 2001 Biogeochemistry of landfill leachate plumes. Applied Geochemistry 16: 659—718

Dvonch JT, Graney JR, Keefer GJ, et al. 1999 Use of elemental tracers to source apportion mercury in south Florida Precipitation. Environmental Science & Technology 33: 4522—4527

Dvonch JT, Graney JR, Marsik FJ, et al. 1998 An investigation of source-receptor relationships for mercury in south Florida using event precipitation data. Science of the Total Environment 213: 95—108

Feng X, Shang L, Wang S, et al. 2004 Temporal variation of total gaseous mercury in the air of Guiyang, China. Journal of Geophysical Research 109: D03303 1—D03303 9

Feng X, Tang S, Shang L, et al. 2003 Total gaseous mercury in the atmosphere of Guiyang, P.R. China. Science of the Total Environment 304: 61—72

Fraser MP, Yue ZW, Buzcu B. 2003 Source apportionment of fine particulate matter in Houston, TX using organic molecular markers. Atmospheric Environment 37: 2117—2123

Fu X, Feng X, Wang S, et al. 2009 Temporal and spatial distributions of total gaseous mercury concentrations in ambient air in a mountainous area in southwestern China. Implications for industrial and domestic mercury emissions in remote areas in China. Science of the Total Environment 407: 2306—2314

Fu X, Feng X, Zhu W, et al. 2008 Total gaseous mercury concentrations in ambient air in the eastern slope of Mt. Gongga, South-Eastern fringe of the Tibetan Plateau, Chi-

- na Atmospheric Environment 42 970—979
- Gordon GE 1988 Receptor models Environmental Science & Technology 22 1132—1142
- Graney JR Dvonch JT Keefer GJ et al 2004 Use of multi-element tracers to source apportion mercury in south Florida aerosols Atmospheric Environment 38 1715—1726
- Henry RC Lewis CW Hopke PK et al 1984 Review of receptor model fundamentals Atmospheric Environment 18 1507—1515
- Inanoglu J Christensen ER 2002 PCB sources transformations and contributions in recent Fox River Wisconsin sediments determined from receptor modeling Water Research 36 3449—3462
- Keefer GJ Landis MS Norris GA et al 2006 Sources of Mercury wet deposition in Eastern Ohio USA Environmental Science & Technology 40 5874—5881
- Kleijnan MT Pasternack BS Eisenbud M et al 1980 Identifying and estimating the relative importance of sources of airborne particulates Environmental Science & Technology 14 62—65
- Kum MMN Bakac M 2003 Factor analysis applied to distribution of elements in western Turkey Applied Radiation and Isotopes 55 721—729
- Landis MS Keefer GJ Stevens RK et al 2004 Divalent inorganic reactive gaseous mercury emissions from a mercury cell chlor-alkali plant and its impact on near field atmospheric dry deposition Atmospheric Environment 38 613—622
- Limbeck A Handler M Puls C et al 2008 Impact of mineral components and selected trace metals on ambient PM₁₀ concentrations Atmospheric Environment 43 530—538
- Lindberg S Bulbeck R Ebinghaus R et al 2007 A synthesis of progress and uncertainties in attributing the sources of mercury in deposition Ambio 36 19—32
- Lough GC Schauer JJ Park JS et al 2005 Emissions of metals associated with motor vehicle roadways Environmental Science & Technology 39 826—836
- Lynam MM Keefer GJ 2006 Source-receptor relationships for atmospheric mercury in urban Detroit Michigan Atmospheric Environment 40 3144—3155
- Manolopoulos H Snyder DC Schauer JS et al 2007 Sources of speciated atmospheric mercury at a residential neighborhood impacted by industrial sources Environmental Science & Technology 41 5626—5633
- Marczann GM Cerjani M Valli G et al 2003 Source apportionment of PM₁₀ and PM_{2.5} in Milan (Italy) using receptor modeling Science of the Total Environment 317 137—147
- Morandi MT Daisey M Liroy PJ 1987 Development of a modified factor analysis/multiple regression model to apportion suspended particulate matter in a complex urban airshed Atmospheric Environment 21 1821—1831
- Norris G Vedantham R Henry RC et al 2007 EPA Umix 6.0 Fundamentals & User Guide U.S. Environmental Protection Agency Office of Research and Development Washington
- Norris G Vedantham R Wade K et al 2008 EPA Positive Matrix Factorization (PMF) 3.0 Fundamentals & User Guide U.S. Environmental Protection Agency Office of Research and Development Washington
- Nriagu JO 1989 A global assessment of natural sources of atmospheric trace metals Nature 338 47—49
- Pacyna EG Pacyna M Steenhuisen F et al 2006 Global anthropogenic mercury emission inventory for 2000 Atmospheric Environment 40 4048—4063
- Pacyna EG Pacyna M 2002 Global emission of mercury from anthropogenic sources in 1995 Water, Air, and Soil Pollution 137 149—165
- Pacyna M Pacyna EG 2001 An assessment of global and regional emissions of trace metals to the atmosphere from anthropogenic sources worldwide Environmental Review 9 269—298
- Pekey H Karakas D Bakoglu M et al 2004 Source apportionment of trace metals in surface waters of a polluted stream using multivariate statistical analyses Marine Pollution Bulletin 49 809—818
- Quero LX Alastuey A Rosa J et al 2002 Source apportionment analysis of atmospheric particulates in an industrialized urban site in southwestern Spain Atmospheric Environment 36 3113—3125
- Schauer JJ Rogge WF Hildemann IM et al 1996 Source apportionment of airborne particulate matter using organic compounds as tracers Atmospheric Environment 41 S241—S259
- Schroeder WH Munthe J 1998 Atmospheric mercury: An overview Atmospheric Environment 32 809—822
- Simeonov V Sraatis JA Samara C et al 2003 Assessment of the surface water quality in Northern Greece Water Research 37 4119—4124
- Stein ED Chen Y Winer AM 1996 Environmental distribution and transformation of mercury compounds Critical Reviews in Environmental Science & Technology 26 1—43
- Stembeck J Sjödin Å Andersson K et al 2002 Metal emissions from road and the influence of resuspension: Results from two tunnel studies Atmospheric Environment 36 4735—4744
- Streets DG Hao J Wu Y et al 2005 Anthropogenic mercury emissions in China Atmospheric Environment 39 7789—7806
- Thurston GD Spengler D 1985 A quantitative assessment of source contributions to inhalable particulate matter pollution in metropolitan Boston Atmospheric Environment 19 9—25
- Watson JG Zhu T Chow JC et al 2002 Receptor modeling application framework for particle source apportionment Atmospheric Sciences 49 1093—1136
- Wu Y Wang S Streets DG et al 2006 Trends in anthropogenic mercury emissions in China from 1995 to 2003 Environmental Science & Technology 40 5312—5318

作者简介 刘娜,女,1983年生,硕士研究生,主要从事全球的地球化学研究。E-mail: liunag@163.com
责任编辑 魏中青