

本文引用:曹胜男,杨中智.大气颗粒物源解析技术研究进展[J].新乡医学院学报,2016,33(11):1007-1010. DOI:10.7683/xxxyxb.2016.11.019.

【综述】

大气颗粒物源解析技术研究进展

曹胜男，杨中智

(新乡医学院公共卫生学院,河南 新乡 453003)

摘要:随着我国城市化和工业化的快速发展,城市空气污染愈发严峻,其中大气颗粒物的污染严重影响了人们的健康和生活质量,因此,对大气颗粒物污染源进行解析和控制,对于降低人群健康风险具有重要意义。基于此,本文对国内外大气颗粒物源解析最常用的几种受体模型和新提出的方法从应用范围和优缺点 2 个方面进行了总结,并对未来的研究方向提出了展望。

关键词: 大气颗粒物;源解析;复合受体模型;对应分析;空气污染

中图分类号: R12;X513 文献标志码: A 文章编号: 1004-7239(2016)11-1007-04

随着城市化和工业化快速发展,当前空气污染问题尤其是雾霾日益突出。大气颗粒物对人体健康和生态系统存在确定的有害影响,使得大气颗粒物成为主要的环境问题之一^[1]。大气颗粒物按照空气动力学直径不同主要可分为4类:总悬浮颗粒物(total suspended particulates, TSP)、可吸入颗粒物(inhalable particles, PM_{10})、细颗粒物(fine particles, $PM_{2.5}$)和超细颗粒物(ultrafine particle, $PM_{0.1}$)。大气颗粒物来源复杂^[2],因此,利用源解析技术对大气颗粒物的来源进行分析,并有针对性地进行控制干预,是处理空气污染问题的关键。颗粒物源解析技术是对大气颗粒物的来源进行定性或定量研究的技术,其可以明确颗粒物排放源与受体(即受各类污染源影响的某一局部区域的大气环境)之间的关系。目前,较常用的大气颗粒物源解析模型主要有排放清单(emission inventory)、扩散模型(dispersion model)、受体模型(receptor model)和复合受体模型(combined receptor model)。本文从应用范围和优缺点2个方面对这4种源解析模型进行汇总,并对近年新提出的一些源解析方法进行介绍,对未来的研究方向提出了展望。

1 排放清单

排放清单也称为源排放清单法,是在特定的空间和时间尺度上调查和统计污染源,根据不同源类的活动水平和排放因子模型,建立污染源清单数据

库,从而对不同源类的排放量进行评估,以确定主要污染源。排放清单作为空气质量数值模拟和预报预警的数据基础,为制定区域性大气污染控制措施提供依据。目前,广泛使用的人为源排放清单有:(1)太平洋区域大气颗粒物传输和化学演化清单(transport and chemical evolution over the Pacific, TRACE-P)(2)洲际大气颗粒物化学运输实验-B 阶段清单(intercontinental chemical transport experiment-phase B, INTEX-B)(3)亚洲区域大气污染物排放清单 1.1 版(regional emission inventory in Asia version 1.1, REAS1.1)(4)亚洲区域大气污染物排放清单 2.0 版(regional emission inventory in Asia version 2.0, REAS2.0)。为了验证污染物的排放及其在大气中的清除转化对数值模式的影响,杨文夷等^[3]用差异度(指不同排放清单中同一污染物排放量最大值与最小值之差与平均值的比值)对上述 4 种常用清单进行对比分析后发现:不同排放清单的计算结果差异明显,在 INTEX-B、REAS1.1 和 REAS2.0 清单中氮氧化物和非甲烷挥发性有机物(non-methane volatile organic compounds, NMVOC)的排放量差异度最大值分别为 51% 和 30%,二氧化硫在山东、河北和河南等二氧化硫排放量较大的省份的差异度 > 30%,在经济较发达地区(如山东、江苏、浙江、北京和上海等)的差异度可达到 20% ~ 80%。

目前,排放清单主要用于国家和城市等大区域的研究,而运用于区、县、工业区等小区域时则存在一定误差。谈佳妮等^[4]对排放清单法进行了改进,他们以上海市宝山区为研究区域,采用自下而上的方式建立了工业密集区域的精细化大气污染物排放清单,通过整合多套现有的污染源数据库,对排放量估算进行质量控制,提高了各污染物排放量估算的准确性;并用现场勘查和全球定位系统定位对排放口进行定位,弥补了数据库中定位数据的缺失,提高

DOI:10.7683/xxvxyxb.2016.11.019

收稿日期:2016-07-19

基金项目:河南省高等学校青年骨干教师资助计划项目(编号:2012GGJS-133)。

作者简介:曹胜男(1992-),女,河南商丘人,硕士研究生在读,研究方向:卫生检验。

通信作者:杨中智(1973-),男,河南禹州人,博士,副教授,硕士研究生导师,研究方向:持久性有机污染物环境行为研究;E-mail: yzz4321@126.com。

了排放口定位数据的精确度。

2 扩散模型

扩散模型也称源模型,它是从污染源出发,在各污染源排放量或排放强度确定的情况下模拟或预测在不同气象条件下颗粒物浓度的时空分布,能够在固定或移动污染源和大气颗粒物浓度之间建立良好的定量关系。该模型建立在物理学、数学、环境学、计算机科学、化学等多门学科的基础上,其基本理论包括 3 个方面:梯度输送理论(K 理论)、统计理论和相似理论^[5]。此模型通过在水平和垂直方向上模拟颗粒物的输送、反应、清除等过程,估算不同污染源对污染物浓度的贡献情况^[6]。

扩散模型从 1970 年发展至今共有 3 代,第 1 代主要包括箱式模型、高斯模型和拉曼模型,但该类模型的模拟过程较简单,对与大气颗粒物有关的化学过程处理较粗略,使其使用受到限制。为对第 1 代模型进行改进,以城市尺度光化学模型、区域酸沉降模型和三维城市尺度光化学污染模型为代表的第 2 代模型应运而生,第 2 代模型中加入了相对复杂的化学反应机制,但无法解决各污染物之间反应对结果造成的影响。第 3 代模型主要包括三维欧拉模型和城市尺度的空气质量预报模型,其在功能上进行改进,可应用于不同尺度范围并对大气颗粒物浓度分布进行预测。当前,国内外使用最广泛的是第 3 代中高斯模型、拉格朗日模型及其相关的衍生模型^[7-8]。

AERMOD 和 WindTrax 模型是分别以高斯模型和拉格朗日模型为基础建立的扩散模型,BONIFACIO 等^[9]为比较 AERMOD 模型和 WindTrax 模型对于大型肉牛饲养场中 PM₁₀排放率的测定,对堪萨斯州的一个大型饲养场中的气象学情况和 PM₁₀浓度进行了为期 1 a 的监测,结果表明,虽然 AERMOD 模型与 WindTrax 模型相比结果相对偏大,但是二者具有较好的线性关系。

扩散模型的局限性在于其依赖当地的气象学资料,气象资料的误差会导致结果的不准确性且其无法应用于强度不确定的开放源,因此,无法用于量大面广的颗粒物开放源。但是,扩散模型无需广泛的网络检测即可获得相对准确的结果^[10],因此,被广泛应用于小区域内原生大气颗粒物的空间分布^[11]。

3 受体模型

受体模型主要通过分析受体和污染源样品的化学成分来确定污染源对受体的贡献。为解析如道路尘、土壤尘和建筑尘等开放源对受体颗粒物浓度的贡献并弥补扩散模型的不足,受体模型应运而生,其优点是不需要精确了解每个污染源的强度,不依赖

详细的气象资料。受体模型按照是否需要知道详细的源类信息可分为源未知受体模型和源已知受体模型 2 大类。源未知受体模型顾名思义在应用时不需将源类信息纳入模型,只需对受体进行分析,提取因子,并对因子一一进行识别,分析污染源类型,估算污染源对受体的贡献率;而源已知受体模型则需将源类和受体信息同时纳入模型建立平衡关系,从而计算受体中源类的贡献值。常用受体模型有多元线性模型、化学质量平衡模型法(chemical mass balance, CMB)、因子分析法(factor analysis, FA)等,而 FA 又包括正矩阵因子分解法(positive matrix factorization, PMF)、主成分分析法(principal component analysis, PCA)、UNMIX 3 种^[12]。源已知受体模型和源未知受体模型中最常用的是 CMB、PMF 和 PCA。

PCA 是最先提出的源未知受体模型,其采用降维的方法,把多指标转化成少数几个综合指标,最后推测出颗粒物的主成分类别、贡献量及贡献率。PCA 法不需要事先输入源谱,可以辨识一些被遗漏掉的重要的源且其操作简单方便,是近几年使用较多的源解析方法^[13-14]。PCA 既可单独用于大气颗粒物的源解析^[15],又可与多元线性回归(multiple linear regression, MLR)模型结合成 PCA/MLR 模型使用^[16-17]。近 10 a 来,PCA/MLR 模型得到了长足的发展和应用。KHAN 等^[18]对 PCA 模型进行改良,将其与绝对因子得分(absolute principal component scores, APCS)和 MLR 模型结合成了 PCA-APCS-MLR 复合受体模型,并用该模型对吉隆坡城市环境中的 PM₁₀进行了源解析,发现汽车尾气排放、臭氧和气象学因素、随风迁移的贡献率分别为 28%、20% 和 1%,其余 51% 的 PM₁₀来源不明。

尽管 PCA/MLR 模型的发展已经相对成熟,但该模型在应用过程中也有诸多问题,比如在解决共线性问题时,PCA/MLR 模型无法将具有共线性的源类分离开来,从而导致估算结果出现负值^[19]。为了解决该类问题,PMF 模型应运而生。

PMF 于 1994 年由 PAATERO 等^[20]在传统因子分析法的基础上建立。PMF 的基本原理是加权最小二乘法,可利用数据标准偏差来进行优化,还可处理丢失数据、噪声数据、线性外的数据以及低于检测线的数据,因此,被认为是源解析方法中最可靠的方法^[21],且方便易行,在大气颗粒物源解析中应用最多^[22-24]。近些年 PMF 模型改良和发展主要是与 CMB 和 UNMIX 模型进行结合形成复合受体模型。

CMB 作为源已知受体模型的代表,其基本原理是质量守恒(即污染源和接受点测得的相应化学成分的浓度分比相同),通过构建关于污染源和大气颗粒物化学组成的线性方程组并对其进行求解来定量分析污染源贡献值和贡献率^[25],因此,该模型非

常适用于识别主要气象学条件和当地发生的意外事件(如火灾、沙尘暴等)对于结果的影响^[26]。CMB 的缺点是使用中需要输入本土源和受体,故其对于本土源建立不完全的区域并非首选,且该模型对于共线性问题比较敏感,计算结果可能出现负值^[27]。此外,CMB 受体模型在进行大气颗粒物源解析过程中还遇到诸多技术难题,主要是一套数据多种结果和同一源类的颗粒物会以不同的形式通过不同途径进入到环境空气中。针对这一问题,冯银厂等^[28]在对扬尘这一特殊颗粒物排放源类的组成及排放特点进行充分分析和研究的基础上,于 2002 年首次提出“二重源解析技术方法”,并将其应用于济南等城市大气颗粒物的源解析研究,得到了各单一尘源类以扬尘形式进入到环境空气中和直接排放进入到环境空气中的贡献值和分担率。王菊等^[29]用独立源反推扬尘对受体的贡献率,对二重源解析技术进行改进,使结果更加简明,并将改进后的技术用于长春市 PM₁₀ 的源解析。结果表明,改进后的模型易于发现贡献大的单一尘源,能更好地反映城市大气中 PM₁₀ 的主要来源,从而为制定长春市大气污染治理方案及重点污染源防治提供科学的技术支持。

4 复合受体模型

近年在源解析工作中遇到了越来越多的问题(如源和受体的不匹配问题、源类的共线性问题),单一模型已无法满足工作需要,复合受体模型由此发展而来。该模型是将 2 个不同类型模型结合使用,使 2 个模型取长补短,从而提高计算结果的准确性^[30],其中常用的复合受体模型是 PCA/MLR-化学质量平衡和非负主成分回归化学质量平衡复合受体模型。SHI 等^[31]用具有一系列共线性问题的人工数据集对上述 2 个复合受体模型进行评定,将复合模型每一步的结果与真实值比较后发现,虽然复合模型计算结果准确度较高,但源类的共线性问题还是未得到完全解决。近年来,复合模型得到广泛应用和扩展,刘莉等^[32]将 CMB 和 PMF 进行耦合,解决了应用 CMB 模型时需要建立大量的源成分谱,污染源选择不同时源解析结果不确定性的问题,他们利用 PMF 模型解析出各污染源及其特征元素,用 CMB 模型拟合参数,建立污染源清单,将各污染源的理论贡献量与模拟贡献量进行比对后发现 PMF-CMB 模型拟合结果与理论值差异不大,验证了耦合模型的可行性。该模型缩减了 CMB 模型建立污染源成分谱的工作量,提高了源解析工作的高效性、准确性。近年研究者对复合受体模型进行扩展又提出了 Unmix-CMB^[33]、Unmix-PMF^[34]等模型。

5 新模型

对应分析(correspondence analysis, CA)是一种

使数据可视化的方法,其是在 FA 的基础上提出^[35],主要用于交叉列表数据(如计数、构成或比率量表等)分析,广泛应用于生态学和地质研究等领域^[36]。王菊等^[37]应用 CA 对龙岩市环境监测站、龙岩学院、闽西职业技术学院和龙岩师专 4 个检测点的大气颗粒物进行来源解析,发现高岭土矿、土壤风沙、机动车尾气和燃煤尘是这 4 个采样点的主要污染源,为大气颗粒物来源解析提供了一种新的方法。

为估算大气颗粒物中二次有机碳(secondary organic carbon, SOC)的浓度,南开大学将化学质量平衡模型与迭代法结合,研发了一种新的方法即 CMB-iteration 模型估算法^[38]。2010 ~ 2012 年,张彩艳等^[39]收集成都市 8 个采样点大气颗粒物样品,将 CMB-iteration 用于该样品的来源解析,发现扬尘、煤烟尘、二次硫酸盐、二次硝酸盐和机动车尾气尘的贡献率相对较高,且 CMB-iteration 模型不仅可用于估算 SOC 浓度,还可用于大气颗粒物的来源解析。

6 展望

近年来,大气污染已成为影响公众健康的主要危险因素之一,特别是大气颗粒物对心肺疾病发生率和病死率均有明显影响^[40],大气颗粒物所造成的健康损害引起了广泛关注^[41]。随着对空气污染问题重视程度的提高,我国在一些人口集中的城市已初步建成了大气颗粒物检测系统,并自 2016 年 1 月 1 日开始实施全新的空气质量标准^[42]。此外,我国大气颗粒物的源解析技术也得到了很大发展。南开大学在国际上首次提出了 PCA/MLR-化学质量平衡复合受体模型和非负主成分回归化学质量平衡复合受体模型,并自主研发了多款受体模型软件。但是,复合受体模型近年才开始起步,对该模型的完善和使用还有待进一步发展。然而,我国一些中小城市大气颗粒物的研究相对较少,污染源清单还未建立,限制了部分源解析技术的应用,这应是我国大气颗粒物研究下一步的发展目标。

参考文献:

[1] VELLINGIRI K, KIM K H, MA C J, et al. Ambient particulate matter in a central urban area of Seoul, Korea[J]. *Chemosphere*, 2015, 119: 812-819.

[2] ADAMS K, GREENBAUM D S, SHAIKH R, et al. Particulate matter components, sources, and health: systematic approaches to testing effects[J]. *J Air Waste Manag Assoc*, 2015, 65(5): 544-558.

[3] 杨文夷, 李杰, 朱莉莉, 等. 我国空气污染物人为源排放清单对比[J]. *环境科学研究*, 2013, 26(7): 703-711.

[4] 谈佳妮, 余琦, 马蔚纯, 等. 小尺度精细化大气污染源排放清单的建立: 以上海宝山区为例[J]. *环境科学学报*, 2014, 34(5): 1099-1108.

[5] 薛文博, 王金南, 杨金田, 等. 国内外空气质量模型研究进展[J]. *环境与可持续发展*, 2013(3): 14-20.

- [6] ABRIL G A, DIEZ S C, PIGNATA M L, *et al.* Particulate matter concentrations originating from industrial and urban sources; validation of atmospheric dispersion modeling results[J]. *Atmos Pollut Res*, 2016, 7(1):180-189.
- [7] 王卓. 国内外空气质量模型研究与应用进展[C]. 中国环境科学学会年会论文集, 2015:1268-1272.
- [8] GULIA S, NAGENDRA S, KHARE M. Comparative evaluation of air quality dispersion models for PM_{2.5} at air quality control regions in Indian and UK cities[J]. *Mapan J Metrol SOC I*, 2015, 30(4):249-260.
- [9] BONIFACIO H F, MAGHIRANG R G, RAZOTE E B, *et al.* Comparison of AERMOD and WindTrax dispersion models in determining PM₁₀ emission rates from a beef cattle feedlot[J]. *J Air Waste Manag Assoc*, 2013, 63(5):545-556.
- [10] MAROKO A R. Using air dispersion modeling and proximity analysis to assess chronic exposure to fine particulate matter and environmental justice in New York city[J]. *Appl Geogr*, 2012, 34:533-547.
- [11] 张蓓, 叶新, 井鹏. 城市大气颗粒物源解析技术的研究进展[J]. 能源与环境, 2008(3):130-133.
- [12] TAIWO A M, HARRIAON R M, SHI Z. A review of receptor modelling of industrially emitted particulate matter[J]. *Atmos Environ*, 2014, 97(Suppl 1):109-120.
- [13] 郑玫, 张延君, 闫才青, 等. 中国 PM_{2.5} 来源解析方法综述[J]. 北京大学学报(自然科学版), 2014, 50(6):1141-1154.
- [14] 傅昭娟. PM_{2.5} 源解析中受体模型应用现状研究[J]. 化工管理, 2016(6):61, 63.
- [15] SGRIGNA G, BALDACCHINI C, ESPOSITO R, *et al.* Characterization of leaf-level particulate matter for an industrial city using electron microscopy and X-ray microanalysis[J]. *Sci Total Environ*, 2016, 548:91-99.
- [16] GUO X, LI C, GAO Y, *et al.* Sources of organic matter (PAHs and n-alkanes) in PM_{2.5} of Beijing in haze weather analyzed by combining the C-N isotopic and PCA-MLR analyses[J]. *Environ Sci Process Impacts*, 2016, 18(3):314-322.
- [17] MASSONE C G, WAGENER A L R, ABREU H M, *et al.* Hydrocarbon concentration and source appraisal in atmospheric particulate matter (PM_{2.5}) of an urban tropical area[J]. *Environ Sci Pollut Res Int*, 2015, 22(19):14767-14780.
- [18] KHAN M F, LATIF M T, JUNENG L, *et al.* Physicochemical factors and sources of particulate matter at residential urban environment in Kuala Lumpur[J]. *J Air Waste Manag Assoc*, 2015, 65(8):958-969.
- [19] SHI G L, ZENG F, LI X, *et al.* Estimated contributions and uncertainties of PCA/MLR-CMB results; source apportionment for synthetic and ambient datasets[J]. *Atmos Environ*, 2011, 45(17):2811-2819.
- [20] PAATERO P, TAPPER U. Positive matrix factorization; a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values[J]. *Environmetrics*, 1994, 5:111-126.
- [21] KHAN M F, LATIF M T, SAW W H, *et al.* Fine particulate matter in the tropical environment; monsoonal effects, source apportionment, and health risk assessment[J]. *Atmos Chem Phys*, 2016, 16(2):597-617.
- [22] LIANG C S, DUAN F K, HE K B, *et al.* Review on recent progress in observations, source identifications and countermeasures of PM_{2.5}[J]. *Environ Int*, 2016, 86:150-170.
- [23] HWANG I, HOPKE P K. Comparison of source apportionment of PM_{2.5} using PMF2 and EPA PMF version 2[J]. *Asian J Atmos Environ*, 2011, 5(2):86-96.
- [24] RAI P, CHAKRABORTY A, MANDARIYA A K, *et al.* Composition and source apportionment of PM₁ at urban site Kanpur in India using PMF coupled with CBPF[J]. *Atmos Res*, 2016, 178:506-520.
- [25] 苏国鑫. 化学质量平衡受体模型在大气细颗粒物 PM_{2.5} 源解析中的应用[J]. 环境, 2011(S1):97.
- [26] ANDRIANI E, CASELLI M, DE GENNARO G, *et al.* Synergistic use of several receptor models (CMB, APCS and PMF) to interpret air quality data[J]. *Environmetrics*, 2011, 22(6):789-797.
- [27] 朱坦, 吴琳, 毕晓辉, 等. 大气颗粒物源解析受体模型优化技术研究[J]. 中国环境科学, 2010, 30(7):865-870.
- [28] 冯银厂, 白志鹏, 朱坦. 大气颗粒物二重源解析技术原理与应用[J]. 环境科学, 2002, 23(1):106-108.
- [29] 王菊, 刘禹彤, 赵秀敏, 等. 长春市大气环境中 PM₁₀ 二重源解析研究[J]. 生态环境学报, 2013, 22(2):288-292.
- [30] WATSON J G, CHEN L W A, CHOW J C, *et al.* Source apportionment; findings from the US Supersites program[J]. *J Air Waste Manag Assoc*, 2008, 58(2):265-288.
- [31] SHI G L, ZENG F, LI X, *et al.* Estimated contributions and uncertainties of PCA/MLR-CMB results; source apportionment for synthetic and ambient datasets[J]. *Atmos Environ*, 2011, 45(17):2811-2819.
- [32] 刘莉, 邹长武. 耦合 PMF、CMB 模型对大气颗粒物源解析的研究[J]. 成都信息工程学院学报, 2013, 28(5):557-562.
- [33] SHI G L, LIU G R, PENG X, *et al.* A comparison of multiple combined models for source apportionment, including the PCA/MLR-CMB, Unmix-CMB and PMF-CMB models[J]. *Aerosol Air Qual Res*, 2014, 14(7):2040-U341.
- [34] LANG Y H, LI G L, WANG X M, *et al.* Combination of Unmix and PMF receptor model to apportion the potential sources and contributions of PAHs in wetland soils from Jiaozhou Bay, China[J]. *Mar Pollut Bull*, 2015, 90(1/2):129-134.
- [35] NISHISATO S. Correspondence Analysis; Theory, practice and new strategies[J]. *Psychometrika*, 2016, 81(1):242-245.
- [36] GREENACRE M J. Correspondence analysis[J]. *Wiley Interdiscip Rev Comput Sci*, 2010, 2(5):613-619.
- [37] 王菊, 侯洁, 杨萌尧, 等. 对应分析在大气颗粒物源解析中的应用研究[J]. 中国环境监测, 2012, 28(3):41-46.
- [38] YANG M Y, YANG T, TANG B J, *et al.* Estimation of the concentrations of primary and secondary organic carbon in ambient particulate matter; application of the CMB-Iteration method[J]. *Atmos Environ*, 2011, 45(32):5692-5698.
- [39] 张彩艳, 吴建会, 张普, 等. 成都市冬季大气颗粒物组成特征及来源变化趋势[J]. 环境科学研究, 2014, 27(7):782-789.
- [40] 梁芳芳, 雷建存, 王云云, 等. PM_{2.5} 浓度与儿童哮喘急性发作相关性的 Meta 分析[J]. 中华实用儿科临床杂志, 2016, 31(9):687-691.
- [41] 赵英政, 徐光翠, 吴卫东. 大气颗粒污染物对心血管系统的毒性作用及机制[J]. 新乡医学院学报, 2015, 32(2):96-100.
- [42] 杨雪. 浅谈环境空气质量新旧标准的差异[J]. 科技信息, 2013(15):431, 480.

(本文编辑:李胜利)