

陕西气溶胶总悬浮颗粒物来源解析

谢 骅 黄世鸿

李联盟 孙玉琪 李淑君

(南京大学大气科学系, 210093)

(西安市环境科学研究所, 710054)

提 要

使用受体数学模型中的化学元素平衡法(CEB)对西安市3个不同地点和枣园大气气溶胶进行来源解析,以表明陕西地区气溶胶来源的总体水平。结果显示,土壤尘占35%~60%,煤烟尘占15%~30%,建筑尘占15%~25%,冶炼尘占4%~15%。各源贡献率的差异与工业排放和人类活动很好一致。

关键词: 大气气溶胶 源解析 大气环境

引 言

大气气溶胶总悬浮颗粒物(TSP)系指悬浮在空气中粒径在0~100 μm 所有质粒,是我国的主要空气污染物,列为各地环境部门常规必测项目,它对空气污染指数起重要影响。据现状,我国多数地区,TSP均在超标之列,是影响大气环境质量最突出的问题之一。气溶胶总悬浮颗粒物问题引起人们的普遍关注。气溶胶颗粒对太阳辐射的散射和吸收以及随后释放出辐射能,对气温产生影响。在研究气候变化的诸因子中,除温室气体外,气溶胶同样是重要角色^[1,2]。气溶胶作为大气中水汽重要的凝结核,它们在大气中含量的变化直接导致能见度乃至雾和云量的变化。

对TSP最为关注的问题之一是确定各种排放源对它们的贡献,即确定有关源对它贡献的百分比。发达国家从70年代起对TSP的来源做了许多源解析工作^[3],为防治和治理提供决策依据,并取得明显的效益。

本文对西安市环境监测站采集的西安市的TSP和电力部在枣园高压绝缘子上采集的积尘(沉降尘)进行了源解析,判明了土壤吹尘、燃煤尘、建筑尘和冶炼尘对TSP的贡献率。

1 数学模式

气溶胶来源解析是使用受体模型进行研究。它直接从受体处采集气溶胶样品,根据所得的化学组成利用数学模型判定来源类型及其各自所占的比例等。现在,使用的受体模型有化学元素平衡法(CEB)^[4]、因子分析法(FA)^[5]、目标变换因子法(TTFA)^[5]等。在已确定气溶胶几类排放源的前提下,使用化学元素平衡法定量判定各源类的贡献,是比较简便和直观的。

化学元素平衡法(CEB)的数学模型如下:

$$d_i = \sum_{k=1}^n X_{ik}g_k \quad (i = 1, 2, \dots, m) \quad (1)$$

式中, d_i 为颗粒物样品中元素*i*的含量, X_{ik} 为排放源*k*的颗粒物中元素*i*的含量, n 为颗粒物排放源类数, m 为颗粒物中分析的元素数。若测出 d_i 和 X_{ik} ,在 $m > n$ 条件下,则可解出 g_k 。对TSP来源解析而言,若 d_i 采用空气浓度($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$), X_{ik} 采用 $\mu\text{g} \cdot \text{mg}^{-1}$,则 g_k 为*k*源排放颗粒对TSP中元素*i*的贡献量($\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$)。求出*k*源各元素对TSP的贡献量的总和并除以TSP的含量,即得*k*源对TSP的贡献率。对于沉积尘, d_i 和 X_{ik} 只能取 $\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ 的分析值。则式(1)中 g_k 称为源强

系数。对K源而言,各元素的源强系数之和即为各源的贡献率。

根据陕西实际情况,我们取地面土壤吹尘、煤烟尘、冶炼尘和建筑尘作为最主要的贡献源。在西安市和枣园两地对气溶胶来源解析,了解上述四类源对陕西地区贡献水平。并在西安市,分别对郊区、工业区和商业区的TSP作解析,以了解人为排放因素对气溶胶颗粒物的贡献所产生的差异。

2 采样与化学成分分析

在延安枣园,西安北郊37km处的草滩,西安市开关厂(工业区)和环境监测站(交通商业区)采集气溶胶颗粒。枣园点的样品是刮取高压输电塔绝缘子上的积尘。西安市3个点同步用KB系列采样器按 $100L \cdot \text{min}^{-1}$ 的流量抽气,颗粒集缩在高纯过氯乙烯滤膜上。采样时间至少300min,保证元素分析足以分辨。每点共5天(1997年7月29日~8月2日),分别各得5个样品。

源样的采集:土壤尘取自地表2cm以下的土壤样品;煤烟尘是分别取自不同燃煤规模除尘器后的烟道壁上的烟灰;冶炼尘和建筑尘是用吸尘器的冶炼车间附近的窗台等处,建筑材料料堆附近的地面和房屋拆迁现场吸取样品。对滤膜上的气溶胶和四类主要源样,用质子激发X荧光法(XRF)分析其中的各类元素含量,一般可分析20个左右的元

素。而对于枣园高压绝缘子上采集的积尘,由于样品量少,需用中子活化法(INAA)分析其元素,一般可得30个以上的元素含量。

3 模型计算和结果

将气溶胶和四类源颗粒化学成分资料代入式(1)进行计算,最终可得各类源的贡献率。在诸多元素中选择哪几个和多少个元素参与回归拟合计算,是决定结果正确与否的关键。

国内外和我们的实践证明^[6,7]应选取那些对各类源有较强特征性而在迁移过程中变化不大的元素,即标识元素。一般标识元素选定仅是根据各源之间元素量值相对大小来识别,会带有一定的主观性。

据我们的实践^[8],导出一种比较客观的方法对元素进行筛选,使标识元素更具有代表性和客观性,其方法是把所有元素代入式(1)模型中进行灵敏度试验。结果表明,计算结果对某些元素量值变化很敏感,而对另一些元素不敏感。对不敏感元素,即使量值改变几个量级,计算结果也无多大的变化。通过反复试验,剔除那些对计算结果无多大影响的元素,仅保留比较敏感的元素。因此,对西安市,我们选取了11个元素,而枣园点选用了12个元素参与计算。表1和表2分别是西安市11个元素的气溶胶和四类源颗粒成分的分析值。枣园相应的有关元素列于表3之中。

表1 西安市气溶胶元素分析值/ $\text{ms} \cdot \text{m}^{-3}$

元素	草滩	开关厂	本站	平均
Si	70.10(11.54~206.72)	74.13(35.47~154.57)	73.16(40.56~161.84)	70.30(11.94~206.72)
Al	18.61(5.50~45.86)	24.41(15.73~44.89)	22.11(12.30~32.18)	21.25(5.50~45.86)
Ca	21.20(11.17~60.80)	29.13(19.13~68.35)	29.28(25.70~41.94)	25.95(11.17~68.35)
Fe	10.41(1.85~26.61)	17.48(4.69~19.43)	13.79(5.44~21.90)	13.62(1.85~26.61)
K	7.66(2.71~23.36)	8.45(5.20~17.25)	8.37(4.79~17.33)	8.16(2.71~23.36)
Mg	4.92(1.18~16.39)	6.01(3.64~11.50)	5.89(3.83~19.11)	5.60(1.18~19.11)
Mn	0.20(0.07~0.61)	0.22(0.12~0.41)	0.25(0.11~0.50)	0.22(0.07~0.61)
Na	3.30(1.33~9.45)	4.02(2.39~7.27)	4.34(2.63~7.82)	3.89(1.33~9.45)
Ti	1.36(0.46~0.60)	1.42(0.90~2.85)	1.50(0.86~2.97)	1.43(0.46~2.97)
S	9.99(3.79~13.91)	13.19(9.35~17.35)	9.95(4.87~15.45)	11.04(3.79~17.35)
P	0.71(0.43~1.51)	1.12(0.69~1.81)	0.79(0.19~1.08)	0.87(0.43~1.81)

注:括号中为5个样本的元素取值范围

表2 西安市气溶胶排放源元素分析值/ $\mu\text{g} \cdot \text{mg}^{-1}$

	煤烟尘(4)*	冶炼尘(2)*	建筑尘(3)*	土壤尘(1)*
Si	196.14 (163.76~227.84)	135.53 (119.24~151.82)	134.71 (91.24~163.77)	313.30
Al	118.60 (95.50~163.74)	40.53 (35.42~45.63)	39.11 (27.69~45.37)	53.84
Ca	42.46 (22.86~55.21)	39.11 (25.14~53.07)	204.15 (192.15~254.08)	39.00
Fe	31.86 (15.04~47.14)	216.81 (124.28~309.34)	19.37 (18.60~20.70)	19.58
K	7.22 (4.40~9.21)	6.68 (3.73~9.63)	9.04 (4.98~12.53)	20.99
Mg	4.53 (3.24~6.42)	26.04 (17.34~34.74)	9.36 (8.10~10.38)	8.82
Mn	0.27 (0.23~0.31)	11.23 (5.96~16.50)	0.41 (0.39~0.46)	0.54
Na	5.19 (1.48~11.65)	3.12 (2.08~4.15)	6.67 (4.82~8.16)	16.17
Ti	7.65 (6.23~9.42)	3.46 (3.37~3.54)	2.51 (1.82~2.94)	4.41
S	4.26 (2.48~6.36)	1.28 (0.36~2.20)	6.43 (5.44~8.60)	1.32
P	3.06 (0.96~5.81)	2.64 (1.44~3.84)	0.58 (0.39~0.83)	0.70

注：*为样品数；表内括号中数值为元素分析值的范围

表3 枣园积尘及其排放源颗粒元素分析值/ $\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$

元素	积尘	排 放 源			
		土壤尘	煤烟尘	建筑尘	冶炼尘
Al	61780	49100	113000	31293	504
As	59.9	13.6	22.9	27.3	24.0
Ca	65007	32300	14800	513000	5400
Fe	33786	30900	21600	21033	35500
K	12098	20600	11000	9695	33120
Mg	14857	15100	12800	9183	30.4
Mn	934	666	119	1298	7920
Na	9252	13800	3100	2591	7800
Pb	91.4	95.0	92.0	10.1	8400
Ti	3184	4040	3184	2565	151
Zn	10400	37.1	6.0	63.1	24000
V	75.2	80.4	357	47.8	24.9

表4列出了计算结果。为了比较,表4还列出了我国其它地区同类工作的结果。由表4可见,土壤尘对气溶胶的贡献最高,西安草

滩点达57.0%,枣园点为37.0%,枣园点气溶胶样品为一年以上的积尘,有较好的时间平均代表性;煤烟尘和建筑尘基本相当;冶炼

尘最小。据上述结果可以对陕西地区气溶胶来源水平作一基本估计：土壤尘最高，介于35%~60%之间，煤烟尘是15%~30%，建筑尘介于15%~25%，冶炼尘最小介于4.0%~15%之间。表4表明了人为排放引起有关源贡献率差异的特征。西安市区煤烟尘、建筑尘和冶炼尘比市郊草滩明显高，这反映

工业排放的影响；开关厂的冶煤贡献达到10.3%，与其附近有冶炼工业的排放是一致的；市区两个点的建筑尘均高于市郊草滩，这也与市区基本建设开发相一致。从表4中，我们可以发现西安市的结果和其它地区相仿，这说明本结果是合理的。

表4 西安和枣园各主要排放源对气溶胶贡献率

地点和时间	位置	贡献率/%			
		土壤尘	煤烟尘	建筑尘	冶炼尘
西安 (1997.7.29~8.2)	草滩(西郊37km)	57.0	16.0	18.4	4.1
	开关厂(工业区)	35.8	26.1	23.9	10.3
	监测站(交通商业区)	42.2	21.0	23.4	6.6
枣园		37.0	26.7	9.3	14.0
天津 ^[6] (1985.2)		32.2	41.2	/	10.3
天津 ^[9] (1984.6)		49.0	23.8	9.3	6.5
常州 ^[7,8] (1992~1993)		29.4	24.9	25.8	2.5
西固地区 ^[10] (1983.12)	甘肃兰州	/	33.8	15.4	22.4

4 讨论

上述在考虑气溶胶排放源时，未包含地面扬尘，实际情况是扬尘为气溶胶一个不可忽视的源。由于扬尘是煤烟尘、土壤尘和冶炼尘等沉降地面后由机械作用再次扬起，故称其二次扬尘。因此，它从成分角度讲不能作为独立源，是其它一次源排放颗粒的综合，国内外在作来源解析时均不把它作为独立源处理^[6]。如把扬尘作独立源，则去掉土壤尘，即用扬尘代替土壤源，其结果是扬尘贡献超过土壤，同时其它源的贡献率下降^[6]，我们在此工作中也得到了同样结果。

表4的贡献率之和并不是100%。这主要是未考虑如燃油、海盐及其它一些未知源的贡献。

参考文献

1 Colbeek and Harrison. The Atmospheric Effects of Nuclear War-A Review, *Atmospheric Environment*,

1986,1673~1681.
 2 钱永甫. 散射辐射计算方法和气溶胶的气候效应. *高原气象*,1991,10(4):429~441.
 3 卢伟,黄世鸿. 我国东部地区气溶胶云下清除对降水pH值的影响. *南京大学学报,灾害专辑*,1996,32:320~325.
 4 Gregorg S. Kowalczyk, et al. Identification of Atmospheric particulate Sources in Washington, D. C., Using Chemical Element Balances, *Environ. Sci Technol.*, 1982,16:79~90.
 5 唐孝炎等. *大气环境化学*. 北京:高等教育出版社,1989:210~224.
 6 戴树桂等. 天津市采暖期飘尘来源的解析. *中国环境科学*,1986,6(4):24~30.
 7 黄世鸿等. 常州市大气气溶胶颗粒来源解析. *气象科学*,1995,15(2):92~100.
 8 黄世鸿等. 我国若干地区气溶胶颗粒物源解析. *南京大学学报(地学专辑)*,1996,32:3~7.
 9 杨绍晋等. 京津地区大气颗粒物的表征及来源鉴别. *环境科学学报*,1987,15(2):92~100.
 11 张远航等. 兰州西固地区气溶胶污染源源的鉴别. *环境科学学报*,1987,7(3):269.

Aerosol Source Apportionment over Xi'an and Zaoyuan Area

Xie Hua Huang Shihong

(Dept. of Atmos. Sci., Nanjing University, 210093)

Li Lianmeng Sun Yuqi Li Shujun

(Institute of Environmental Science in Xi'an, 710054)

Abstract

Chemical Element Balance was applied to identify sources of the aerosol particles, in the city of Xi'an and Zaoyuan, in order to display total levels of contribution of the main sources to aerosols in Shaanxi province. The results show that 35%~60% of the aerosols came from soil dusts, 15%~30% from coal ash, 15%~25% from limestone and 4%~15% from re-fined dusts. The differences between contribution of sources to aerosols are consistent with activities of human beings and industrial exhaust.

Key Words: aerosol source apportionment atmospheric environment

① 指热带风暴、强热带风暴和台风