

基于 BM 和 PMF 模型的库尔勒市地表灰尘重金属来源解析

阿地拉·艾来提,麦麦提吐尔逊·艾则孜*,怕提古力,阿迪莱·伊斯马伊力

(新疆师范大学地理科学与旅游学院,新疆 乌鲁木齐 830054)

摘要:在新疆库尔勒市采集54个代表性地表灰尘样品,分析其中Hg、Cd、As、Pb、Cr和Cu等6种元素含量。采用重心模型(BM模型)和正矩阵分解模型(PMF模型),分析地表灰尘重金属元素主要来源。结果表明:库尔勒市地表灰尘中Hg、Cd、As、Pb、Cr和Cu等元素的含量重心均偏离几何中心,地表灰尘中重金属元素含量分布存在不均衡性。研究区地表灰尘中Hg和Pb受到工业、交通来源及煤炭燃烧等混合污染源的影响,As受到成土母质的影响,Cd、Cr和Cu主要受到交通排放的影响。BM模型在确定地表灰尘重金属污染来源研究上有一定的应用前景。

关键词:地表灰尘;重金属;来源解析;BM模型;PMF模型;库尔勒市

中图分类号:X513

文献标志码:B

文章编号:1006-2009(2021)05-0031-05

Source Analysis of Heavy Metals in Surface Dust in Korla Based on Barycenter Model and PMF Model

HAYRAT Adila, EZIZ Mamattursun*, Patigul, ISMAYIL Adila

(College of Geographical Science and Tourism, Xinjiang Normal University, Urumqi, Xinjiang 830054, China)

Abstract: The content of Hg, Cd, As, Pb, Cr and Cu in 54 representative surface dust samples from Korla, Xinjiang, were detected. The main source of the heavy metals were analyzed based on BM (Barycenter) model and PMF (positive matrix factorization) model. The results indicated that the content center of Hg, Cd, As, Pb, Cr and Cu in the surface dust of Korla deviated from the geometrical center. The distribution of these elements was uneven. Hg and Pb in the samples originate from industry, transportation and coal combustion, As depended upon the parent material of soil, Cd, Cr, and Cu were mainly affected by traffic emission. BM model had certain application prospects in source analysis of heavy metals in surface dust.

Key words: Surface dust; Heavy metals; Source analysis; BM model; PMF model; Korla

城市地表灰尘作为城市环境污染物载体,对城市环境污染物的迁移转化与扩散具有重要作用^[1]。随着城市化进程和工业发展的加剧,由交通运输、工业排放、城市固体废物处理等城市人类活动造成地表灰尘中重金属元素的大量聚集,并通过在城市土壤—大气—水系统间迁移转化和循环,影响城市生态环境及居民身体健康^[2-3]。因此,调查和评价城市地表灰尘重金属元素来源和状况已成为城市环境研究的热点问题之一。国内外学者采用主成分分析法^[4]、聚类分析法^[5]、地统计学法^[6]和同位素示踪技术^[7]开展了城市地表灰尘重金属污染来源识别。近年来,正定矩阵因子分析模型(Positive Matrix Factorization, PMF)由于不直接

依赖于污染源的化学成分资料,能够识别出污染物的来源,同时准确判断出每种来源的贡献^[8],从而在城市重金属污染来源辨析方面得到广泛应用^[9-10]。重心模型(Barycenter Model, BM)最早被应用于人口研究^[11],随后相关学者在自然、社会、经济资源等多种空间上的重心问题研究方面采用该模型^[12-14]。然而,基于BM模型的城市地表灰

收稿日期:2020-07-23;修订日期:2021-07-03

基金项目:国家自然科学基金资助项目(41867067);新疆师范大学硕士研究生科研创新基金资助项目(XSY202002008)。

作者简介:阿地拉·艾来提(1994—),女,维吾尔族,新疆阿图什人,硕士,研究方向为绿洲土壤环境安全。

*通信作者:麦麦提吐尔逊·艾则孜 E-mail: oasiseco@126.com

尘重金属污染来源解析方面未见报道。与此同时,由于城市地表灰尘重金属污染来源的复杂性,其污染来源辨析存在研究方法的不确定性,相关研究方法也需要进一步验证。

今以南疆工业化程度与经济发展水平最高的典型绿洲城市——库尔勒市为研究区,综合利用相关分析法、PMF模型和BM模型确定研究区地表灰尘重金属污染来源,讨论BM模型在城市地表灰尘重金属污染来源解析方面的应用前景,以期为城市地表灰尘重金属污染控制和提高城市环境质量提供技术支撑。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

库尔勒市位于新疆中部,是新疆第二大城市,也是新疆重要的交通枢纽和经济中心,总人口约55万。研究区地理位置为E85°06'~E86°16',N41°37'~N42°48'(见图1),总面积为108.8 km²,地势北高南低,西高东低,海拔高程为890 m~950 m。研究区属于温带大陆性干旱气候,多年平均气温约11.4℃,多年平均降水量约50 mm,多年平均蒸发量约2 800 mm,沙尘暴天气多,主导风向为东北风^[15]。

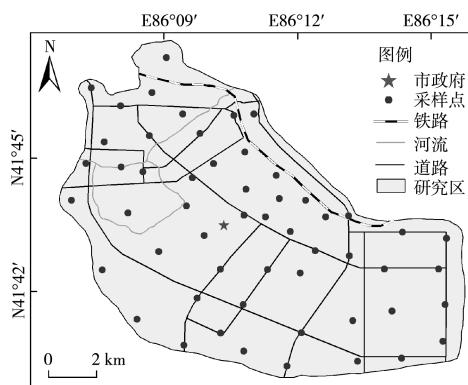


图1 研究区位置和采样点分布

Fig. 1 The location of study area and sampling sites

1.2 样品采集与测定

2018年9月无降水期间,在研究区内采用100 m×100 m网格法均匀布设54个地表灰尘采样点。为提高样品代表性,采样过程中在每个网格内分别采集8~10个分样混合成1个灰尘样品,用毛刷等非金属类工具取样,除掉样品中小石子等杂物,装入聚乙烯密封袋中。灰尘样品自然风干,用

玛瑙研钵研磨,过0.154 mm孔径(100目)尼龙筛备用。

所有积尘样品委托新疆维吾尔自治区分析测试研究院测定As、Cd、Cr、Cu、Hg和Pb等6种元素的含量。其中,As和Hg使用BAF-2000型原子荧光光度计测定,检出限分别为0.01 mg/kg和0.002 mg/kg;Cd使用SOLAAR M6型原子吸收光谱仪测定,检出限为0.01 mg/kg;Pb使用ICE 3500型原子吸收光谱仪测定,检出限为0.10 mg/kg;Cr和Cu使用AA320型火焰原子吸收分光光度计测定,检出限分别为5.0 mg/kg和1.0 mg/kg。在测定过程中按原始灰尘样品的20%插入国家土壤标准参比物质(GSS-12),以及使用重复样进行质量控制,各元素回收率均在允许范围内。

1.3 BM模型

重心是指物体各部分所受重力产生合力的作用点,在地理学中指区域内能够维持区域平衡的支撑点,主要用于描述某种属性在某一时段内的空间变化及其趋势^[16]。文中利用BM模型对研究区地表灰尘重金属含量重心的区位特征进行分析。研究区有n个地表灰尘样品,若第i个样品的坐标为p_i(x_i,y_i),属性值(重金属元素含量)为c_i,则该区各元素含量的重心坐标(x,y)可表示为:

$$x = (\sum c_i \times x_i) / (\sum c_i) \quad (1)$$

$$y = (\sum c_i \times y_i) / (\sum c_i) \quad (2)$$

偏心距离(D_o)指研究区某重金属元素含量重心与几何中心的距离,通过分析元素含量的重心位置偏离几何中心的移动方向和距离,可以直观和精准地揭示元素在研究区的空间分布均衡度。其计算公式为:

$$D_o = k \times \sqrt{(x - x_o)^2 + (y - y_o)^2} \quad (3)$$

式中:k为地理坐标单位转化为平面距离的系数,取值111.11;(x_o,y_o)为研究区几何中心的坐标^[17]。

1.4 PMF模型

PMF模型是一种基于多变量因子分析方法的源解析模型,其将由组分浓度数据组成的原始矩阵分解为因子贡献率矩阵和因子成分谱矩阵^[18],计算公式为:

$$X_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{jk} f_{ki} + e_{ij} \quad (4)$$

式中:X_{ij}为第j个样品中第i个元素的测量值;g_{jk}为

源因子 k 对第 j 个样品的贡献率; f_{ki} 为源因子 k 中第 i 个元素的含量; e_{ij} 为残差矩阵。PMF 模型通过加权最小二乘法进行限定和迭代计算, 以使目标函数 Q 最小来获得最优的源贡献率矩阵和源成分谱矩阵^[18]。目标函数 Q 定义如下:

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \frac{\delta_{ij}}{u_{ij}} \quad (5)$$

$$U = \begin{cases} 5/6 \times \text{MDL} & c \leq \text{MDL} \\ \sqrt{(\delta \times c)^2 + (\text{MDL})^2} & c > \text{MDL} \end{cases} \quad (6)$$

式中: Q 为 PMF 定义的目标函数, 当 Q 值接近数据集的自由度时表示拟合结果较理想; U 为不确定度; MDL 为检出限; δ 为相对标准偏差; c 为元素含量^[17~18]。

1.5 数据处理与分析

利用 Excel 2010 和 SPSS 22.0 统计软件进行相关分析与含量重心坐标分析, 采用 EPA PMF 5.0 统计软件作 PMF 模型分析。基于 GIS 技术与地统计学理论, 在利用 GS+9.0 软件确定地统计分析主要参数的基础上, 利用 ArcGIS 10.3 软件绘制研究区地表灰尘中重金属元素的含量重心与几何中心分布图。

2 结果与讨论

2.1 地表灰尘中 6 种元素之间的相关性

表 1 为研究区地表灰尘中 6 种元素间的 Pearson 相关系数。由表 1 可知, 地表灰尘中元素 Cd 与 Pb、Cr、Cu, Pb 与 Cr、Cu, Cu 与 Cr 之间存在极显著正相关关系 ($P < 0.01$), Hg 与 As、Pb、Cu 之间存在显著相关关系 ($P < 0.05$)。可以初步确定, 研究区地表灰尘中 Cd、Pb、Cr 与 Cu 等元素具有较大的同源性关系。

表 1 研究区地表灰尘中 6 种元素间的 Pearson 相关系数

Table 1 Pearson correlation coefficient between six elements in the surface dust of the study area

元素	Cd	As	Pb	Cr	Cu
Hg	0.078	0.288 ^①	0.297 ^①	0.026	0.307 ^①
Cd	1	0.186	0.509 ^②	0.464 ^②	0.485 ^②
As		1	0.151	-0.016	0.261
Pb			1	0.476 ^②	0.628 ^②
Cr				1	0.663 ^②

①表示显著相关 ($P < 0.05$); ②表示极显著相关 ($P < 0.01$)。

2.2 不同元素的 PMF 模型分析

采用 PMF 模型对研究区地表灰尘中 54 个样品进行来源解析。PMF 模型上因子 1 主要载荷元素为 Pb 和 Hg, 贡献率较高, 分别达到 63.7% 和 51.4%, 其他元素的贡献率由高到低依次为 Cd(16.6%) > As(16.4%) > Cr(13.8%) > Cu(13.2%)。因子 2 主要载荷元素为 As, 贡献率较高, 达到 50.8%, 其他元素的贡献率由高到低依次为 Hg(14.6%) > Cr(4.4%) > Cd(4.3%) > Pb(0.2%) > Cu(0)。因子 3 主要载荷元素为 Cu, 贡献率为 53.3%, 其他元素的贡献率由高到低依次为 Hg(34.0%) > Cd(23.1%) > Cr(13.5%) > Pb(7.3%) > As(4.6%)。因子 4 主要载荷元素为 Cr 与 Cd, 贡献率分别为 68.3% 和 56.0%, 其他元素的贡献率由高到低依次为 Cu(33.5%) > Pb(28.9%) > As(28.2%) > Hg(0)。

2.3 地表灰尘中 6 种元素含量重心区位分析

利用 ArcGIS 10.3 软件, 根据公式(1)(2)得到研究区地表灰尘中 Hg、Cd、As、Pb、Cr 和 Cu 等 6 种元素的含量重心与几何中心分布, 见图 2。由图 2 可见, 研究区地表灰尘中 6 种元素的含量重心位于 E86.167° ~ E86.188°, N41.729° ~ N41.736° 之间。其中, Hg 元素含量重心位于 (E86.167°, N41.736°), Cd (E86.188°, N41.734°), As (E86.179°, N41.729°), Pb (E86.179°, N41.730°), Cr (E86.178°, N41.730°), Cu (E86.176°, N41.735°)。

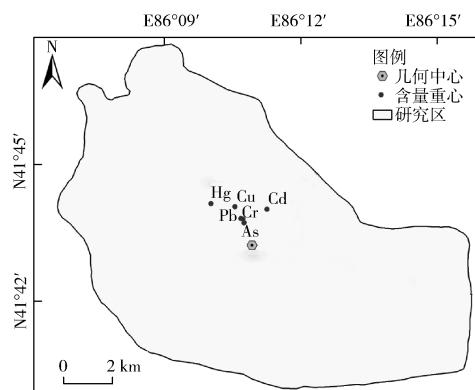


图 2 研究区几何中心与各元素含量重心

Fig. 2 Content center and geometrical center of each element in the study area

以研究区几何中心 (E86.182°, N41.720°) 为参照, 地表灰尘中 6 种元素的含量重心均偏离几何

中心。其中,Hg、As、Pb、Cr 和 Cu 元素含量重心位于几何中心的西北方向;Cd 元素含量重心位于几何重心的东北部。可见,地表灰尘中各元素含量分布不均衡,元素含量较高的区域主要分布在研究区东北部和西北部。可以初步确定,研究区地表灰尘中 Hg、Cd、As、Pb、Cr 和 Cu 等 6 种元素主要污染源很可能在研究区北部区域。

几何中心是区域在空间上的均衡点,各元素含量重心与几何中心的偏离程度能够反映研究区各元素含量分布的空间均衡程度。利用公式(3)计算出地表灰尘中 6 种元素的偏心距离。其中,Hg 的偏心距离最大,为 2.38 km,其含量分布存在不均衡性;As 的偏心距离最小,为 0.97 km,跟几何中心距离最近,说明其含量分布较均衡,在研究区内含量不高;Cd、Pb、Cr 和 Cu 的偏心距离分别为 1.58 km、1.13 km、1.18 km 和 1.71 km,这些元素偏心距离互相接近,说明其含量分布比较相似,并且存在不均衡性。重金属含量重心的区位特征表明,研究区地表灰尘中各元素含量较高的区域主要分布在研究区西北部和北部区域,南部区域含量较低;各元素含量的空间分布差异较大,可能受较明显的外界污染的影响,主要污染源很可能在研究区北部区域。

2.4 地表灰尘中各元素来源解析

相关研究^[19]表明,Hg 是城市环境中主要的人为源元素,工业、商业活动、交通及燃煤等是其主要来源。交通运输过程中的汽车尾气和轮胎磨损是 Pb 的主要来源^[20]。也有研究表明^[21],Pb 是一种重要的工业材料,来源于工业排放等人类活动。BM 模型分析结果表明,研究区 Hg 和 Pb 含量重心位于几何中心的北部,且偏心距离较大,含量的空间分布差异较大,尤其是 Hg 的偏心距离最大,含量分布存在不均衡性,可能受外界污染的影响。库尔勒市是南疆最大城市,工业化程度相对较高,其作为南疆交通枢纽,交通较密集。有研究证明^[22],Hg 和 Pb 含量高值区主要分布在库尔勒市南部部分区域与北部商业活动相对密集、人类和交通活动较频繁的区域,这与 BM 模型分析结果一致。这说明 Hg 和 Pb 的污染可能与研究区北部的 G30 国道及南疆铁路有关,也可能受到南部的化工工业活动的影响。库尔勒市作为典型的燃煤城市,以火力发电为主,原煤消耗量较大,市区煤耗量约 $3.43 \times 10^6 \text{ t}$ ^[23]。同时,相关分析结果表明,Hg 与 Pb 呈显

著相关关系。PMF 模型分析结果表明,Pb 和 Hg 是因子 1 的主要载荷元素。由含量重心的区位分析与来源分析结果相结合得出,Hg 和 Pb 可能受到工业、交通来源及煤炭燃烧活动等混合污染源的影响。

相关研究^[24]表明,地表灰尘中 As 主要受到土壤母质等土壤地球化学特征的影响,属于自然源元素。在研究区内 As 含量的偏心距离小,分布较均衡,可能富集程度低。PMF 模型分析结果表明,As 是因子 2 的主要载荷元素。由此可见,As 属于自然源元素,主要受到成土母质的影响。

城市环境中 Cr、Cu 和 Cd 主要为人为源元素,交通运输过程中的汽车尾气和轮胎磨损是 Cd 等元素的主要来源^[20]。城市灰尘中 Cu 主要来自刹车板与刹车片之间摩擦^[25]。交通活动如汽车尾气的排放、车轮与地面的磨损是城市地表灰尘中 Cr 的主要来源^[26]。BM 模型分析结果表明,Cr、Cu 和 Cd 元素含量重心主要分布于研究区东北部、北部区域,且其含量重心位置与偏向距离互相接近,含量空间分布比较相似。有研究证明^[22],这 3 种元素的含量分布格局基本相似,其含量从研究区东北部向西南部呈现逐渐递减趋势。相关分析结果表明,Cd-Cr-Cu 等元素之间存在极显著正相关关系,PMF 模型分析也可以推断出这 3 种元素对因子 4 的贡献率较高。截至 2016 年,库尔勒市机动车保有量超过 2×10^5 辆^[23],这说明 Cr、Cu 和 Cd 元素来源可能与研究区北部的库尔勒货运站、巴州汽车总站、G30 国道及南疆铁路等周边交通活动有关。由此可见,库尔勒市地表灰尘中 Cr、Cu 和 Cd 为人为源元素,主要受到交通排放的影响。总体上,含量重心的区位分析与来源分析结果表明,库尔勒市地表灰尘中 Hg 和 Pb 受到工业、交通来源及煤炭燃烧等混合污染源的影响,As 受到成土母质的影响,Cd、Cr 和 Cu 主要受到交通排放的影响。

以往在地表灰尘重金属污染来源确定方面的研究主要使用多元统计分析法和地统计法。由于各种方法存在各自的优势和局限性,同时地表灰尘重金属污染源具有复杂性、多源性,给来源解析带来诸多困难,故重金属来源确定研究往往需要多种方法结合使用,且相关研究方法也需要进一步验证。文中将重心模型(BM 模型)引入城市地表灰尘重金属污染来源研究,进一步丰富了地表灰尘重

金属污染来源解析研究方法。研究证明,利用BM模型可以确定污染源在研究区内的位置与方向,并能较好地显示研究区重金属元素含量分布的空间均衡程度。BM模型在地表灰尘重金属污染来源确定上具有一定的可行性和可靠性,综合利用BM模型与其他分析方法,可以进一步提高分析精度。

3 结论

(1) 研究区地表灰尘中6种元素的含量重心均偏离几何中心。其中Cd元素含量重心位于几何重心的东北方向;Hg、As、Pb、Cr和Cu等元素含量重心位于几何中心的西北方向。研究区地表灰尘中各元素含量分布存在不均衡性,含量的空间分布差异较大,可能受较明显的外界污染的影响。

(2) 研究区地表灰尘中Hg和Pb受到工业、交通来源及煤炭燃烧等混合污染源的影响,As受到成土母质的影响,Cd、Cr和Cu主要受到交通排放的影响。

(3) 将重心模型(BM模型)引入地表灰尘污染来源研究中可行,其能够提高污染来源确定的可靠性和精度,具有一定的应用前景。

[参考文献]

- [1] 常静,刘敏,侯立军,等.城市地表灰尘的概念、污染特征与环境效应[J].应用生态学报,2007,18(5):1153-1158.
- [2] 朱兰保,盛蒂,马莉,等.安徽省城市地表灰尘重金属污染及人体健康风险评价[J].地球与环境,2019,47(1):97-104.
- [3] KAMANI H, MAHVI A H, SEYEDSALEHI M, et al. Contamination and ecological risk assessment of heavy metals in street dust of Tehran, Iran [J]. International Journal of Environmental Science and Technology, 2017, 14: 2675-2682.
- [4] 刘亚军,杨勇,谭秀丽,等.湖北典型矿冶城市土壤重金属污染评价及源解析[J].环境监测管理与技术,2019,31(5):26-30.
- [5] CAI L M, XU Z C, REN M Z, et al. Source identification of eight hazardous heavy metals in agricultural soils of Huizhou, Guangdong Province, China [J]. Ecotoxicology and Environmental Safety, 2012, 78: 2-8.
- [6] SUN C Y, LIU J S, WANG Y, et al. Multivariate and geostatistical analyses of the spatial distribution and sources of heavy metals in agricultural soil in Dehui, Northeast China [J]. Chemosphere, 2013, 92: 517-523.
- [7] HU W Y, WANG H F, DONG L R, et al. Source identification of heavy metals in peri-urban agricultural soils of southeast China: An integrated approach [J]. Environmental Pollution, 2018, 237: 650-661.
- [8] GUAN Q Y, WANG F F, XU C Q, et al. Source apportionment of heavy metals in agricultural soil based on PMF: A case study in Hexi Corridor, northwest China [J]. Chemosphere, 2017, 193: 189-197.
- [9] 韩琳,徐夕博.基于PMF模型及地统计的土壤重金属健康风险定量评价[J].环境科学,2020,41(11):5114-5124.
- [10] 比拉力·依明,阿不都艾尼·阿不里,师庆东,等.基于PMF模型的准东煤矿周围土壤重金属污染及来源解析[J].农业工程学报,2019,35(9):185-192.
- [11] 李恒凯,刘小生,陈优良.地理信息系统支持下的人口时空分布模型[J].河南科技大学学报(自然科学版),2011,32(6):95-99.
- [12] 徐建华,岳文泽.近20年来中国人口重心与经济重心的演变及其对比分析[J].地理科学,2001,21(5):385-389.
- [13] 吴凯,顾晋饴,何宏谋,等.基于重心模型的丘陵山地区耕地利用转换时空特征研究[J].农业工程学报,2019,35(7):247-254.
- [14] 刘斌涛,陶和平,宋春风,等.基于重心模型的西南山区降雨侵蚀力年内变化分析[J].农业工程学报,2012,28(21):113-120.
- [15] 陈浮,濮励杰,彭补拙,等.新疆库尔勒市土地利用变化对土壤性状的影响研究[J].生态学报,2001,21(8):1290-1295.
- [16] 刘贤赵,高长春,韩用顺,等.2008年以来湖南省碳排放重心与经济发展重心演变及其相关分析[J].生态与农村环境学报,2017,33(9):792-799.
- [17] 包玉海,乌兰图雅,香宝,等.内蒙古耕地重心移动及其驱动因子分析[J].地理科学进展,1998,17(4):47-54.
- [18] 王成龙,邹欣庆,赵一飞,等.基于PMF模型的长江流域水体中多环芳烃来源解析及生态风险评价[J].环境科学,2016,37(10):3789-3797.
- [19] ZHANG X M, LUO K L, SUN X Z, et al. Mercury in the topsoil and dust of Beijing City [J]. Science of the Total Environment, 2006, 368: 713-722.
- [20] 张浩,王济,曾希柏,等.城市土壤重金属污染及其生态环境效应[J].环境监测管理与技术,2010,22(2):11-18.
- [21] 孙宗斌,周俊,胡蓓蓓,等.天津城市道路灰尘重金属污染特征[J].生态环境学报,2014,23(1):157-163.
- [22] 阿地拉·艾来提,麦麦提吐尔逊·艾则孜,姑力巴努·艾尼,等.库尔勒市地表灰尘微量元素分布特征及来源[J].干旱区资源与环境,2020,34(7):170-176.
- [23] 张欣,季晓燕.库尔勒市空气污染现状与成因分析[J].干旱环境监测,2016,30(2):54-57.
- [24] 陈景辉,卢新卫,翟萌.西安城市路边土壤重金属来源与潜在风险[J].应用生态学报,2011,22(7):1810-1816.
- [25] 董娴,邹海凤,梁隆超,等.贵阳市大气PM_{2.5}中无机元素的组成及来源解析[J].环境监测管理与技术,2019,31(1):14-18,47.
- [26] 白泽琳,李萍,王胜利.兰州城关区地表灰尘中Pb、Cr含量及其赋存形态分布研究[J].环境污染与防治,2013,35(6):69-72.