

中文核公期刊/CSCD

请通过网上投稿系统投稿 网址:http://www.aes.org.cn

基于地统计学的土壤污染源解析模型差异对比

王彬,姜坤,师华定,徐嘉礼,吴海波,罗春晖

引用本文:

王彬,姜坤,师华定,徐嘉礼,吴海波,罗春晖.基于地统计学的土壤污染源解析模型差异对比[J].农业环境科学学报,2022,41(10):2181-2189.

在线阅读 View online: https://doi.org/10.11654/jaes.2022-0266

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于PMF和Pb同位素的农田土壤中重金属分布及来源解析

陈锦芳, 方宏达, 巫晶晶, 林锦美, 蓝伟斌, 陈进生 农业环境科学学报. 2019, 38(5): 1026-1035 https://doi.org/10.11654/jaes.2018-1170

基于APCS-MLR受体模型的农田土壤重金属源解析

霍明珠,高秉博,乔冬云,SainbuyanBayarsaikhan,安毅,霍莉莉 农业环境科学学报.2021,40(5):978-986 https://doi.org/10.11654/jaes.2020-1277

贵州省某县辣椒种植区土壤重金属空间分布特征及来源解析

曾庆庆, 付天岭, 邹洪琴, 滕浪, 吴康, 谢挺, 何腾兵 农业环境科学学报. 2021, 40(1): 102-113 https://doi.org/10.11654/jaes.2020-0665

细河流域农田土壤重金属污染评价及来源解析

宁翠萍,李国琛,王颜红,李波,田莉,王世成 农业环境科学学报.2017,36(3):487-495 https://doi.org/10.11654/jaes.2016-1222

PMF模型的影响因素考察——以某铅锌矿周边农田土壤重金属源解析为例 魏迎辉,李国琛,王颜红,张琪,李波,王世成,崔杰华,张红,周强 农业环境科学学报.2018,37(11):2549-2559 https://doi.org/10.11654/jaes.2018-0492



关注微信公众号,获得更多资讯信息

王彬,姜坤,师华定,等.基于地统计学的土壤污染源解析模型差异对比[J].农业环境科学学报,2022,41(10):2181-2189. WANG B, JIANG K, SHI H D, et al. Differences of soil pollution source analysis models based on geostatistics [J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2022, 41(10): 2181-2189.



基于地统计学的土壤污染源解析模型差异对比

王彬1,姜坤1,师华定3,4,徐嘉礼1,吴海波1,罗春晖2*

(1.浙江益壤环保科技有限公司,浙江 绍兴 312000; 2.绍兴文理学院,浙江 绍兴 312000; 3.生态环境部土壤与农业农村生态 环境监管技术中心,北京 100012; 4.中国环境科学研究院土壤与固体废物环境研究所,北京 100012)

摘 要:为探究不同源解析模型的适用性,以松阴溪流域土壤重金属为例,分别采用主成分-绝对主成分-多元线性回归模型(PCA-APCS-MLR)、正定矩阵因子分解模型(PMF)以及UNMIX模型对研究区土壤重金属进行污染源解析,并运用地统计学方法对3种模型计算的贡献度进行插值分析,最后分析对比源解析结果。结果表明:对于研究区土壤污染源来说,通过PCA-APCS-MLR模型可识别出自然源、工业源和交通源,而通过PMF模型、UNMIX模型分析均识别出了交通-农药-污灌源、自然源以及工业源。将3种模型结合分析可知,自然源是导致研究区土壤Cd、Pb、As、Cu、Zn污染的主要因素,总贡献率为30.1%;Cr、Ni污染的主要因素是工业源,总贡献率为37.4%;Hg污染主要与交通源、农药-污灌源有关,总贡献率分别为18.0%、14.5%。研究表明,PCA-APCS-MLR模型在判别主要污染源类型时具有一定优势,而PMF模型、UNMIX模型在计算源贡献率时较为准确,在源解析时需要将不同模型结合起来,使其结果更加准确。

关键词:土壤污染源解析;地统计学;PCA-APCS-MLR模型;PMF模型;UNMIX模型

中图分类号:X53 文献标志码:A 文章编号:1672-2043(2022)10-2181-09 doi:10.11654/jaes.2022-0266

Differences of soil pollution source analysis models based on geostatistics

WANG Bin¹, JIANG Kun¹, SHI Huading^{3,4}, XU Jiali¹, WU Haibo¹, LUO Chunhui²⁴

(1. Environmental Remediation Technology Co., Ltd., Shaoxing 312000, China; 2. Shaoxing University, Shaoxing 312000, China; 3. Technical Centre for Soil, Agricultural and Rural Ecology and Environment, Ministry of Ecology and Environment, Beijing 100012, China; 4. Institute of Soil and Solid Waste Environment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: To explore the applicability of different source analysis models, using soil heavy metals in Songyin Creek as an example, we analyzed the pollution sources in the study area using PCA-APCS-MLR, PMF, and UNMIX models. We used interpolation analysis to determine the contribution of the three models using geostatistics. Finally, we compared the source analysis results. The results showed that for soil pollution sources in the study area, natural sources could be identified by the PCA-APCS-MLR model, and traffic-pesticide-pollution irrigation sources, natural and industrial sources could be identified by the PMF and UNMIX models. According to these three models, natural sources were the main sources of soil Cd, Pb, As, Cu, and Zn, and the total contribution rate was 30.1%; Cr and Ni pollution were from industrial sources, and the total contribution rate was 37.4%; Hg pollution was mainly related to traffic sources and pesticide-pollution irrigation sources with rate of 18.0% and 14.5%, respectively. This study indicates that the PCA-APCS-MLR model has certain advantages in distinguishing between the types of major pollution sources, while the PMF and UNMIX models are more accurate when calculating the source contribution rate. Different models should be combined in the source analysis to increase the accuracy of the results. **Keywords**: soil pollution source analysis; geostatistics; PCA-APCS-MLR model; PMF model; UNMIX model

收稿日期:2022-03-22 录用日期:2022-05-25

作者简介:王彬(1992--),男,河南开封人,硕士,主要研究方向为土壤污染调查与评价。E-mail:wb15615881969@163.com

^{*}通信作者:罗春晖 E-mail:18616613180@163.com

基金项目:国家重点研发计划项目(2018YFF0213401,2018YFC1800203)

Project supported : The National Key Research and Development Plan of China (2018YFF0213401, 2018YFC1800203)

土壤是地球系统的组成部分,更是人类及动植 物赖以生存且不可替代的自然资源[1-2]。随着工业 化、农业化的不断推进,我国土壤重金属污染形势逐 渐加重,各个区域的污染程度不均,污染成因也不尽 相同[3-8],污染源解析显得尤为重要。近年来,国内 外学者在土壤重金属源解析方面进行了大量研 究[9-11],主要采用源排放清单法、化学质量平衡模型、 多元统计模型、先进数学算法以及空间分析法。其 中,源排放清单法是基于污染源重金属投入通量直 接建立污染源清单数据库,例如SHI等^[12]汇总了我 国农田土壤重金属的排放清单;化学质量平衡模型 是基于污染源和土壤重金属的元素组成,根据质量 守恒定律建立平衡模型,例如LIU等^[13]、CHEN等^[14] 分别利用元素比值法、同位素比值法对研究区进行 了污染源解析:多元统计模型是基于土壤重金属元 素组成的源解析方法,例如杜展鹏等^[15]采用PCA-APCS-MLR模型得到了污染源对滇池草海和外海水 质的贡献程度,柴磊等^[16]基于PMF模型对兰州耕地 土壤重金属污染源进行了解析,刘玲玲等^四采用UN-MIX模型对北京城区公园土壤重金属污染源进行了 解析;先进数学算法是基于土壤重金属元素组成和 其他变量的解析方法,如HU等189利用条件推断树和 有限混合模型识别了珠江三角地区土壤重金属污染 来源和作用机制,宋志廷等19利用随机森林模型构 建了天津武清地区表层土壤重金属源汇的量化关 系;空间分析法是基于土壤重金属元素组成和空间 关系的解析方法,如任加国等201利用空间关联指数 法对沱江上源支流土壤重金属的空间变异及其相关 性进行了解析。

以上关于源解析的研究方法较为单一,且局限 性较大,如源排放清单法需要大量的数据清单,同位 素比值法只能针对特定污染物(Cd、Hg、Pb)进行溯 源,先进数学算法无法判断解析结果对数据空间变 异性的解释程度等,且目前在流域尺度上基于地统 计学方法将多种源解析模型进行对比分析的研究极 少,而松阴溪流域是典型的灌溉水型河流,其周边土 地利用方式包括了耕地、园地以及成林,重工业也较 为发达,适用于土壤污染源解析研究,因此本研究以 该流域为研究对象,将多元统计模型和空间分析方 法相结合,对研究区土壤重金属污染类型及其贡献 率进行深入剖析,并将不同模型的解析结果进行对 比分析,旨在为区域性土壤污染源解析工作提供方 法借鉴和参考。

1 材料与方法

1.1 研究区概况

松阴溪是瓯江上游主要支流,位于浙江省境西南 部,源出遂昌县垵口乡北园附近,先自南而北,后折向 东南,流经松阳县,在丽水市大港头入瓯江中游大溪。 松阴溪全长114 km,河宽约100 m,流域面积2055 km²,灌溉着浙南的松古盆地。流域内有耕地约10666.7 hm²,人口约22万人,占松阳县总人口的90%以上。 该流域周边道路纵横交错,分布着大量的企业,尤其 是制造业和采矿业居多,且附近居民长期使用流域内 的水资源进行农田灌溉,对园地进行大量的农药喷 洒,其周边土壤环境污染问题日趋严重。

1.2 样品的采集、制备与测定

利用 ArcGIS10.6 软件对研究区表层土壤点位进 行布设,所有点位均布设在农用地(耕地、林地、园 地),原则上按照每2 500 m×2 500 m网格布设一个点 位,以网格中心点作为采样点,根据周边具体情况适 当调整。共布设62 个表层土壤点位,对所有点位做 2 km缓冲区后划定影响范围,并进行适当调整,如图 1 所示。根据布设点位的经纬度,利用 GPS 对每个计 划采样点进行精确定位,误差不超过 30 m,采样人员 到达计划采样点位后,需观察其是否符合土壤采样的 代表性要求,在允许范围内优选采样点,位移距离不 超过 100 m,且低洼地、陡坡地、住宅、道路、沟渠附近 等不布设点位。

样品采集以确定点位为中心划定采样区域,一般



图 1 研究区采样点位、企业分布及土地利用情况 Figure 1 Sampling points, enterprise distribution and land use in the study area

为 50 m×50 m,采用蛇形法进行混合取样,采样前先 用铁铲切割一个大于取土量的 25 cm 深的土方,然后 用木铲去除铁铲接触面后装入样品袋,垂直挖土,保 持采样量上下一致,之后将采集完的土壤样品置于阴 凉处保存。样品制备时,首先取适量土壤样品严铺在 玻璃板上,避免阳光直射且室内温度不超过 40 ℃,自 然风干,去除杂质,用木棒将土块粉碎后过 60 目尼龙 筛,再过 100 目尼龙筛,混合均匀后待测。采用原子 荧光法和等离子体质谱法(ICP-MS)测定重金属含 量,分析方法精密度和准确度采用国家土壤标准物质 GSS-15 和室内平行样品进行质量控制。

1.3 研究方法

1.3.1 PCA-APCS-MLR模型

PCA-APCS-MLR(主成分-绝对主成分-多元线 性回归)模型主要是通过降维充分解读样本数据所携 带信息的差别,最后根据多元线性回归系数来计算各 类污染源的贡献率^[21-22]。首先需要计算样本浓度的 主成分得分,其公式为:

$$(A_z)_k = \sum_{i=1}^p (w_{ij} \times z_k)$$
$$z_i = (c_i - \overline{c})/\sigma$$

式中:(A_z)_k为主成分的得分值,i为样本元素所在列 号,w_{ij}为第j主成分的因子矩阵系数,z_k为k观测点污 染物浓度标准化后的值,c_k为k观测点污染物浓度,c 为污染物浓度的平均值,σ为污染物浓度的标准差, 由于(A_z)_k为标准化的值,不能直接用于计算主成分 的原始贡献,必须将标准化的因子得分转化为非标准 化的绝对因子得分,才能用于主成分对污染指标的贡 献分析,其计算公式为:

 $APCS_{ik} = (A_z)_{ik} - (A_0)_i$

$$(A_0)_{i} = \sum_{i=1}^{q} [S_{ii} \times (Z_0)_{i}]$$
$$(Z_0)_{i} = (\overline{0-c_i})/\sigma_i$$

式中: $APCS_{ii}$ 为绝对主成分得分值, $(A_i)_{ii}$ 为第j主成 分的得分值, $(A_0)_i$ 为0值下主成分得分值,i为样本元 素所在列号, S_{ii} 为第j主成分的因子矩阵系数, $(Z_0)_{ii}$ 为观测点污染物浓度0时标准化后的值, \bar{c}_i 为污染物 浓度的平均值, σ_i 为污染物浓度的标准差。

以污染物浓度作为因变量,以绝对主成分得分为 自变量,建立多元线性回归方程,并利用回归系数计 算污染源的贡献率,其计算公式为:

$$C_i = \sum_{m=1}^{n} (a_{im} \times APCS_{im}) + b_i$$

$$PC_{im} = \frac{\left|a_{im} \times \overline{APCS_{im}}\right|}{\sum_{m=1}^{n} \left|a_{im} \times \overline{APCS_{im}}\right|}$$

式中:m代表某种污染源类型,a_{im}为回归系数,b_i为常数项,PC_{im}为针对元素*i*、污染源m的贡献率,a_{im}× APCS_{im}为元素*i*的所有样本绝对主成分因子得分平均值。

该模型可通过多元线性回归方程对污染物含量 进行反预测,从而得到每个样点对应的预测值。一 般采用标准误差和决定系数来分析模型精度,计算 公式为:

$$SE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{n} (x_i - y_i)^2}{n}}$$
$$R = \left(\frac{\sum_{i=1}^{n} (x_i - \overline{x}) (y_i - \overline{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^{n} (x_i - \overline{x})^2 \sum_{i=1}^{n} (y_i - \overline{y})^2}}\right)$$

式中,SE为标准误差,R为决定系数,n为样本数量,x_i 和y_i分别为污染物含量的实测值和预测值。SE越小, R越大,代表模型精度越高,反之越低。

1.3.2 PMF模型

PMF(正定矩阵因子分解)模型法是对因子分析 模型的一种优化,该模型已被成功运用于土壤污染源 解析方面,它不仅克服了因子分析中负贡献的情况, 且模型运行不需要属于源成分谱,通过样本不确定度 来预估模型误差,故其解析结果更有意义^[23-26]。PMF 模型将原始数据分解成因子成分矩阵(*F*)和因子贡 献矩阵(*G*)以及一个残差矩阵(*E*),之后根据不确定 性计算各组分的误差,并通过最小二乘法计算排放源 的贡献度。PMF模型计算公式为:

$$X_{ij} = GF + E = \sum_{k=1}^{p} g_{ik} f_{kj} + e_{ij}$$

PMF模型为得到最优的因子成分矩阵(F)和因子贡献矩阵(G),从而定义了一个目标函数Q,使其趋于自由度最小。其目标函数计算公式为:

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

式中:X_i为第i个样品中第j个元素的浓度,p为污染物 来源数量,g_i为源k对第i个样品的贡献,f_i为源k中 第j个元素的浓度,e_i为残差矩阵即PMF模型中未能 解释样品浓度矩阵X_i的部分,u_i为第i个样品中第j个 元素浓度的不确定性大小。不确定度可以根据元素

www.ger.org.cn

<u>2184</u>

的实测浓度与相应的方法检出限(MDL)的关系确定, 如果元素浓度的实测值没有达到或者刚好达到方法 检出限时,不确定度计算公式为:

 $u_{ij}=5/6\times MDL$

当元素远远超出了相应的检出限时,不确定度的 计算公式为:

 $u_{ij} = \sqrt{(\sigma \times c)^2 + MDL^2}$

式中: σ为标准差, c为元素浓度。

该模型运行结果对各污染物的标准误差和决定 系数均进行了统计,并绘制了污染物含量预测值与实 测值的受体拟合图,用以分析该模型的精度。

1.3.3 UNMIX 模型

UNMIX模型是一种适用于解决混合问题的数学 模型,受体点被认为是未知源组分的线性组合,这些 来源对每个样本都贡献了一个未知的数量^[27-29]。该 模型假定来源的构成和贡献都是正的。利用特定物 种选择的浓度数据估计每个样本的源个数、源组成以 及源对该样本的贡献,即在m个源的N个土壤样品 中,n个被分析的物种中的某一物种j的浓度可以用 公式表示:

$$C_{ij} = \sum_{k=1}^m U_{jk} D_{ik} + S$$

式中:C_i代表第*i*个样品中第*j*个物种的浓度;U_#代表 第*j*个物种在源*k*中的质量分数,表示源组成;D_#代表 源*k*在第*i*个样品中的总量,视为源贡献率;S代表各 个源组成的标准偏差。

该模型运行结果同 PMF 模型类似,可直接观察 到污染物含量预测值与实际值的拟合情况,从而进一 步判断其精度。

2 结果与讨论

2.1 土壤重金属含量统计

研究区土壤重金属含量统计情况见表1。对62

农业环境科学学报 第41卷第10期

个土壤样品的统计结果进行分析可知,土壤pH的平均值和中位值分别为4.93和4.95,说明研究区土壤整体上呈弱酸性。Cd、Hg、As、Pb、Cr、Cu、Zn、Ni 8种重金属含量的平均值和中位值均未超过《土壤环境质量农用地土壤污染风险管控标准(试行)》(GB 15618—2018)风险筛选值,说明研究区土壤重金属含量大部分处于较低水平。仅Cd、As两种重金属含量大部分处于较低水平。仅Cd、As两种重金属含量的最大值超过了风险筛选值但低于风险管制值,说明这两种重金属对研究区造成了一定污染,其他重金属污染较轻。从偏度来看,数据分布均为右偏度,但经过Log变换后均符合正态分布;从峰度来看,数据均比正态分布高耸狭窄,说明其数据更集中在平均值附近。

2.2 不同源解析模型结果

2.2.1 PCA-APCS-MLR模型结果

利用SPSS26.0软件对重金属进行因子分析前, 需要先对样本数据进行检验,其中KMO检验结果为 0.68, 满足最低 0.5 的要求; Bartlett 检验观测值为 311.42,显著性为0.00,拒绝零假设,说明该样本数据 总体适合因子分析。对研究区样本数据进行主成分 提取,且选择特征值大于1的因子作为主因子,最终 得到3个主因子。为了更加突出主因子的载荷能力, 使结果更易于解读,采用最大方差法对主因子进行旋 转,其结果见表2。从表2可以看出,3个主因子特征 值变化幅度较小,累计方差贡献率为79.94%,反映了 样本携带的绝大部分的变异,未旋转前3个主因子可 解释方差分别为40.83%、24.93%、14.18%,旋转后变 为36.05%、29.42%、14.47%,模型得到优化。从表2 可以看出,旋转后的成分矩阵可以更好地识别因子特 征,第一主因子的特征元素为Cd、Pb、As、Cu、Zn,第二 主因子的特征元素为Cr、Ni,第三主因子的特征元素 为Hg。通过PCA-APCS-MLR模型进一步计算各污 染因子对各个元素所有样点的贡献率,负贡献率改为

	表 Ⅰ 枚	公阴溪流域.	土壌里金橋	禹宮重抽	还性统计	•	
Table 1	Descriptive	e statistics of	soil heavy	metals co	ontent in S	Songvin	creek

			-P						
元素 Element	$Cd/(mg{\boldsymbol{\cdot}} kg^{\text{-}1})$	$Hg/(mg{\boldsymbol{\cdot}} kg^{\text{-}1})$	$As/(mg{\boldsymbol{\cdot}} kg^{\text{-}1})$	$Pb/(mg\!\boldsymbol{\cdot} kg^{\text{-}1})$	$Cr/(mg \cdot kg^{-1})$	$Cu/(mg \cdot kg^{-1})$	$Zn/(mg{\boldsymbol{\cdot}} kg^{\text{-}1})$	$Ni/(mg \cdot kg^{-1})$	рН
最大值 Max	1.19	0.27	12.2	178	105	48.6	163	27.8	7.33
最小值Min	0.04	0.005	1.17	19	8.5	4.5	40.2	2.9	3.81
平均值Mean	0.21	0.08	3.89	42.09	27.85	15.82	91.04	9.24	4.93
中位值 Median	0.15	0.07	3.68	40.5	20.6	13.6	85.15	7.3	4.95
筛选值Screening	0.3	0.5	30	80	250	50	200	60	—
管制值 Intervention	1.5	2	200	400	800	—	—	—	—
偏度Skewness	3.26	1.15	1.57	3.97	1.7	1.75	1.69	1.17	_
峰度 Kurtosis	18.42	5.63	6.19	21.58	6.17	4.42	4.9	0.78	_

2022年10月

Table 2 Main factors solution and component matrix of PCA-APCS-MLR														
武	初始特征值 Initial eigenvalue			旋转载荷平方和Quadratic sum of the rotating load			旋转后成分矩阵 Re-rotation component matrix							
Component	总计 Total	方差 Variance/%	累计 Add/%	总计 Total	方差 Variance/%	累计 Add/%	Cd	Hg	As	Pb	Cr	Cu	Zn	Ni
PC1	3.27	40.83	40.83	2.88	36.05	36.05	0.92	-0.01	0.69	0.74	0.01	0.71	0.71	0.08
PC2	1.99	24.94	65.76	2.35	29.42	65.47	0.03	-0.05	-0.11	-0.07	0.97	0.59	0.28	0.98
PC3	1.13	14.18	79.94	1.16	14.47	79.94	0.01	0.94	-0.32	0.41	-0.05	-0.02	0.03	-0.01

表2 PCA-APCS-MLR模型主因子解及成分矩阵

0,其计算结果见图2。可以看出,大部分贡献率较高的重金属为主因子对应的特征元素,而第二主成分对 Cu的贡献率也较高。

2.2.2 PMF模型结果

利用 EPA PMF5.0软件将样本数据及其不确定度 (根据方法检出限求得)输入模型,观察8种重金属数 据的信噪比,将比值<0.5设置为"bad",0.5~1.0设置 为"weak",比值>1.0设置为"strong"。利用旋转工具 观察不同旋转因子 Fpeak下目标函数 Q值的大小,多 次迭代运行,发现旋转因子 Fpeak=-0.5时 Q值最小, 最终模型结果见图3。从样点来看,3种污染源的贡 献变化幅度均较大,说明污染源的区域性差异较为显 著;从元素来看,污染源1对 Hg的贡献较大,污染源2 对 Cd、As 的贡献较大,对 Pb、Cu、Zn也有一定的贡献, 污染源3对 Cr、Ni的贡献较大。

2.2.3 UNMIX 模型结果

利用 EPA UNMIX6.0软件对样本数据进行模拟, 首先对数据进行处理,利用 Suggest Exclusion 工具自 动将浓度方差大于 50% 的数据进行筛选,结果显示 8 种重金属中仅 Hg 的浓度方差略高于 50%,由于该元 素为源解析重要因素,因此也可纳入模型。UNMIX 模型是利用几何的"边"对样本数据进行分析,以各重







金属的浓度和作为基底,单个重金属元素作为因变量,从而分析各个组分的边缘诊断结果,通过运行该模型可以发现,除Cd、Hg外都具有明显的上边界或下边界,通常认为大部分元素具有边界时,模型基本是可靠的,且Cd、Hg两种元素均无缺失值,各组分信噪比均符合要求,因此保留所有组分。

将8种重金属元素的浓度均作为初始物种,将浓度和(total)作为模型输入组分的总物种和标准物种, 计算出符合要求的3源方案,结果显示*MinRsq*=0.86, *MinSig/Noise*=2.83,均符合模型要求,说明该模型可以 解释86%的物种方差,源解析方案结果可靠。利用 Excel进一步计算源贡献率,如图4所示。可以看出, 污染源1对Cr、Ni的贡献较大,其他元素相对较小;污 染源2对Hg的贡献较大,对Pb、Zn也有一定的贡献; 污染源3对Cd、As的贡献较大,对Pb、Cu、Zn也有一 定的贡献。

2.3 污染源空间识别

为进一步对污染源进行识别,利用ArcGIS10.6对 前文3种模型的样点贡献值进行地统计插值分析,如 图5所示。对于PCA-APCS-MLR模型来说,污染源1 贡献值较高的大部分区域分布的企业较少,道路情况 一般,周边无地表水,且无其他明显特征,因此判别为

www.aer.org.cn

农业环境科学学报 第41卷第10期

"自然源";污染源2贡献值较高的区域主要分布着大量企业,主要包括采矿业和制造业,相关研究表明^[30-32],企业在冶炼加工、机械制造、废气排放时均会造成重金属污染,因此判别为"工业源";污染源3贡





献值较高的区域主要分布着复杂的道路(省道、县道 以及城镇街道),且建有大型的停车场,由上文可知, 该污染源的特征元素是Hg,根据以往研究表明^[3-35], 交通因素对Hg的累积具有较大的作用,因此判别为 "交通源"。对于 PMF 来说, 污染源1 贡献值较高的区 域与PCA-APCS-MLR模型的污染源3类似,且部分 区域属于农田和果园,当地村民利用附近未处理过的 地表水进行灌溉,且相关研究表明[36-37],果园采用大 量的化学药剂也会导致土壤重金属的累积,因此判别 为"交通-农药-污灌源":污染源2贡献值较高的区域 无明显特征,因此判别为"自然源";污染源3与PCA-APCS-MLR 模型的污染源2较为类似,因此判别为 "工业源"。对于UNMIX模型来说,污染源1贡献值 较高的区域分布着大量的企业,因此判定为"工业 源":污染源2贡献值较高的区域与PMF模型的污染 源1类似,因此判定为"交通-农药-污灌源";污染源3贡 献值较高的区域无明显特征,因此判定为"自然源"。



Figure 5 Spatial distribution of pollution source contribution rate in each source analysis model

2.4 源解析模型结果对比

为了更好地对比源解析模型结果,首先需要对其 模型精度进行对比。其中PCA-APCS-MLR模型通过 多元线性回归计算各重金属元素的标准误差和决定 系数,而PMF模型和UNMIX模型在运行结果中可直 接观察预测值和实测值的拟合曲线,并给出了标准误 差和决定系数(相关系数的平方),统计结果见表3。 从元素上来讲,除Pb、Zn外,其他元素的标准误差均 较低,且大部分元素的决定系数在0.7以上,说明各模 型整体拟合效果较好;从模型上来讲,各模型的标准 误差和决定系数较为相似,其中PMF模型的标准误 差相对较小,可能是由于该模型在分析时添加了样本 的不确定性数据,从而降低了整体的预测误差。

结合地统计学方法对各模型的污染源类型及其 贡献进行分析,可以发现3种模型之间存在一定的差 异性和相似性,从污染源类型来讲,通过以上3种源 解析模型都能识别出工业源与自然源,但利用PCA-APCS-MLR模型仅识别出交通源,而利用PMF模型、 UNMIX 模型却识别出交通-农药-污灌源,这可能是 由于PCA-APCS-MLR模型缺乏敏感性,对一些贡献 度较小的污染源不能甄别处理,只对主要的源成分进 行筛选和识别,而PMF模型、UNMIX模型对源成分比 较敏感,目对于相似的源成分进行归类,因此两种模 型没有将交通源、农药源以及污灌源进行区分。从污 染源贡献来讲, PCA-APCS-MLR模型的源总体贡献 率差异较大,而PMF模型、UNMIX模型差异较小,可 能是由于通过PCA-APCS-MLR模型分析未识别出农 药源和污灌源,且容易出现负贡献,使其他源对As、 Zn、Cr、Ni、Hg的贡献度特别高,而PMF模型、UNMIX 模型事先假设了受体点没有负贡献,且对于源识别较 为全面,因此其源总体贡献率的计算较为准确合理。

总体来说,PCA-APCS-MLR模型在判别主要污染源 类型时具有较大优势,但容易出现负贡献,贡献率容 易出现偏高或偏低的情况;而PMF模型、UNMIX模型 难以区分成分相似的源类型,但在计算源贡献率时具 有一定的优势,不会出现负值或偏高或偏低的情况。 因此,在土壤污染源解析中,有时需要将不同的受体 模型结合起来,更加精确地对源类型及其贡献率进行 综合判别和计算,对研究区土壤污染源类型和总贡献 率进行重新整合和计算,其中源类型遵循细分原则, 源贡献以PMF模型、UNMIX模型为主,得到最终结果 为自然源 30.1%、工业源 37.4%、交通源 18.0%、农药-污灌源 14.5%。

3 结论

(1)研究区土壤 Cd、Hg、As、Pb、Cr、Cu、Zn、Ni 8 种重金属含量的平均值和中位值均未超过《土壤环境 质量 农用地土壤污染风险管控标准(试行)》(GB 15618—2018)风险筛选值,整体处于较低水平。

(2)通过以上3种受体模型结果可知,自然源是 导致研究区土壤Cd、Pb、As、Cu、Zn污染的主要因素, 总贡献率为30.1%;Cr、Ni污染的主要来源是工业源, 总贡献率为37.4%;Hg污染主要与交通源、农药-污 灌源有关,总贡献率分别为18.0%、14.5%。

(3)通过对比3种模型发现,PCA-APCS-MLR模型在判别主要的污染源类型时具有较大优势,而PMF模型、UNMIX模型在计算源贡献率时较为准确。

参考文献:

 [1]环境保护部自然生态保护司.土壤污染与人体健康[M].北京:中国 环境科学出版社, 2013:57-71. Department of Natural Ecological Protection, Ministry of Environmental Protection. Soil pollution and hu-

Table 5 Fitting accuracy of each source analytical model to neavy metal elements											
元素 Element	PCA-A	APCS-MLR 模型		PMF模型	UNMIX 模型						
	标准误差	决定系数	标准误差	决定系数	标准误差	决定系数					
	Standard error	Determination coefficient	Standard error	Determination coefficient	Standard error	Determination coefficient					
Cd	0.069	0.843	0.054	0.767	0.056	0.893					
Hg	0.019	0.885	0.017	0.879	0.010	0.971					
As	1.453	0.564	1.204	0.583	1.637	0.527					
Pb	12.900	0.712	10.540	0.592	14.060	0.663					
Cr	4.310	0.948	2.533	0.906	3.413	0.968					
Cu	3.230	0.826	2.614	0.820	3.416	0.809					
Zn	20.690	0.573	20.660	0.559	22.280	0.513					
Ni	1.144	0.957	1.001	0.893	1.183	0.955					

表3 各源解析模型对重金属元素的拟合精度 Table 3 Finiting accuracy of each course analytical model to become model along

www<u>.aer.org.cn</u>

ALL 2188

农业环境科学学报 第41卷第10期

man health[M]. Beijing: China Environmental Science Press, 2013:57-71.

- [2] 陈怀满.环境土壤学[M]. 第三版.北京:科学出版社, 2018:33-35.
 CHEN H M. Environmental soil science[M]. 3rd Edition. Beijing: Science Press, 2018:33-35.
- [3] 陈俊芳. 浅谈我国土壤污染[J]. 农村经济与科技, 2020, 31(7): 20-21. CHEN J F. A brief discussion on soil pollution in China[J]. Rural Economy and Science-Technology, 2020, 31(7): 20-21.
- [4] 环境保护部,国土资源部.全国土壤污染状况调查公报[R].北京: 环境保护部,国土资源部,2014. Ministry of Environmental Protection, Ministry of Land and Resources. National soil pollution survey bulletin[R]. Beijing: Ministry of Environmental Protection, Ministry of Land and Resources, 2014.
- [5] 生态环境部. 2019 中国生态环境状况公报[R]. 北京: 生态环境部, 2019: 37. Ministry of Ecology and Environment. 2019 bulletin on China's ecological environment[R]. Beijing: Ministry of Ecology and Environment, 2019: 37.
- [6] 骆永明, 滕应. 我国土壤污染的区域差异与分区治理修复策略[J]. 中国科学院院刊, 2018, 33(2):145-152. LUO Y M, TENG Y. Regional difference in soil pollution and strategy of soil zonal governance and remediation in China[J]. Bulletin of Chinese Academy of Sciences, 2018, 33(2):145-152.
- [7] 张小敏, 张秀英, 钟太洋, 等. 中国农田土壤重金属富集状况及其空间分布研究[J]. 环境科学, 2014, 35(2):692-703. ZHANG X M, ZHANG X Y, ZHONG T Y, et al. Spatial distribution and accumulation of heavy metal in arable land soil of China[J]. *Environmental Science*, 2014, 35(2):692-703.
- [8] WU J, LU J, LI L, et al. Pollution, ecological-health risks, and sources of heavy metals in soil of the northeastern Qinghai-Tibet Plateau[J]. *Chemosphere*, 2018, 201:234-242.
- [9] 陈雅丽, 翁莉萍, 马杰, 等. 近十年中国土壤重金属污染源解析研究 进展[J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(10):2219-2238. CHEN Y L, WENG L P, MA J, et al. Review on the last ten years of research on source identification of heavy metal pollution in soils[J]. Journal of Agro-Environmental Science, 2019, 38(10):2219-2238.
- [10] 李娇, 吴劲, 蒋进元, 等. 近十年土壤污染物源解析研究综述[J]. 土 壤通报, 2018, 49(1):232-242. LI J, WU J, JIANG J Y, et al. Review on source apportionment of soil pollutants in recent ten years[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2018, 49(1):232-242.
- [11] 于旦洋, 王颜红, 丁茯, 等. 近十年来我国土壤重金属污染源解析 方法比较[J]. 土壤通报, 2021,52(4):1000-1008. YU D Y, WANG Y H, DING F, et al. Comparison of analysis methods of soil heavy metal pollution sources in China in last ten years[J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2021,52(4):1000-1008.
- [12] SHI T, MA J, WU X, et al. Inventories of heavy metal inputs and outputs to and from agricultural soils: A review[J]. *Ecotoxicology and En*vironmental Safety, 2018, 164:118–124.
- [13] 刘恩峰, 沈吉, 朱育新, 等. 太湖表层沉积物重金属元素的来源分析[J]. 湖泊科学, 2004, 16(2):113-119. LIU E F, SHEN J, ZHU Y X, et al. Source analysis of heavy metals in surface sediments of Lake Taihu[J]. Journal of Lake Science, 2004, 16(2):113-119.

- [14] CHEN L, ZHOU S, WU S, et al. Combining emission inventory and isotope ratio analyses for quantitative source apportionment of heavy metals in agricultural soil[J]. *Chemosphere*, 2018, 204:140-147.
- [15] 杜展鹏, 王明净, 严长, 等. 基于绝对主成分-多元线性回归的滇池 污染源解析[J]. 环境科学学报, 2020, 40(3):1130-1137. DU Z P, WANG M J, YAN C, et al. Pollution source apportionment of Lake Dianchi based on absolute principal component score-multiple linear regression[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2020, 40(3):1130-1137.
- [16] 柴磊, 王新, 马良, 等. 基于 PMF 模型的兰州耕地土壤重金属来源 解析 [J]. 中国环境科学, 2020, 40(9): 3919-3929. CHAI L, WANG X, MA L, et al. Sources appointment of heavy metals in cultivated soils of Lanzhou based on PMF models[J]. China Environmental Science, 2020, 40(9): 3919-3929.
- [17] 刘玲玲,安燕飞,马瑾,等.基于UNMIX模型的北京城区公园土壤 重金属源解析[J].环境科学研究,2020,33(12):2856-2863. LIU L L, AN Y F, MA J, et al. Source apportionment of soil heavy metals in Beijing urban park based on the UNMIX model[J]. Research on Environmental Science, 2020, 33(12):2856-2863.
- [18] HU W, WANG H, DONG L, 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.
- [19] 宋志廷, 赵玉杰, 周其文, 等. 基于地质统计及随机模拟技术的天 津武清区土壤重金属源解析[J]. 环境科学, 2016, 37(7): 2756-2762. SONG Z T, ZHAO Y J, ZHOU Q W, et al. Applications of geostatistical analyses and stochastic models to identify sources of soil heavy metals in Wuqing District, Tianjin, China[J]. Environmental Science, 2016, 37(7): 2756-2762.
- [20] 任加国, 王彬, 师华定, 等. 沱江上源支流土壤重金属污染空间相 关性及变异解析[J]. 农业环境科学学报, 2020, 39(3):530-541. REN J G, WANG B, SHI H D, et al. Spatial correlation and variation analysis of soil heavy metals contamination in upper source tributary of Tuojiang River, China[J]. Journal of Agro -Environment Science, 2020, 39(3):530-541.
- [21] 秦先燕,李运怀,孙跃,等.环巢湖典型农业区土壤重金属来源解 析[J].地球与环境, 2017, 45(4):455-463. QIN X Y, LI Y H, SUN Y, et al. Source apportionment of soil heavy metals in typically agricultural region around Chaohu Lake, China[J]. Earth and Environment, 2017, 45(4):455-463.
- [22] 霍明珠, 高秉博, 乔冬云, 等. 基于 APCS-MLR 受体模型的农田土 壤重金属源解析[J]. 农业环境科学学报,2021,40(5):978-986. HUO M Z, GAO B B, QIAO D Y, et al. Source apportionment of heavy metals in farmland soil based on the APCS-MLR model[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2021, 40(5):978-986.
- [23] 尹国庆, 江宏, 王强, 等. 安徽省典型区农用地土壤重金属污染成 因及特征分析[J]. 农业环境科学学报, 2018, 37(1):96-104. YIN G Q, JIANG H, WANG Q, et al. Analysis of the sources and characteristics of heavy metals in farmland soil from a typical district in Anhui Province[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2018, 37(1):96-104.
- [24] 宁翠萍, 李国琛, 王颜红, 等. 细河流域农田土壤重金属污染评价 及来源解析[J]. 农业环境科学学报, 2017, 36(3):487-495. NING

2022年10月 王彬,等:基于地统计学的土壤污染源解析模型差异对比

C P, LI G C, WANG Y H, et al. Evaluation and source apportionment of heavy metal pollution in Xihe watershed farmland soil[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2017, 36(3):487–495.

- [25] 陈锦芳, 方宏达, 巫晶晶, 等. 基于 PMF 和 Pb 同位素的农田土壤中 重金属的分布与来源解析[J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(5): 1026-1035. CHEN J F, FANG H D, WU J J, et al. Distribution and source apportionment of heavy metals in farmland soils using PMF and lead isotopic composition[J]. Journal of Agro-Environment Science, 2019, 38(5):1026-1035.
- [26] 黄华斌, 林承奇, 胡恭任,等. 基于 PMF 模型的九龙江流域农田土 壤重金属来源解析[J]. 环境科学, 2020, 41(1):430-437. HUANG H B, LIN C Q, HU G R, et al. Source appointment of heavy metals in agricultural soils of the Jiulong River Basin based on positive matrix factorization[J]. Environmental Science, 2020, 41(1):430-437.
- [27] 刘昭玥, 费杨, 师华定, 等. 基于 UNMIX 模型和莫兰指数的湖南省 汝城县土壤重金属源解析[J]. 环境科学研究, 2021, 34(10): 2446– 2468. LIU Z Y, FEI Y, SHI H D, et al. Source apportionment of soil heavy metals in Rucheng County of Hunan Province based on UNMIX model combined with Moran index[J]. Research on Environmental Science, 2021, 34(10): 2446–2468.
- [28] 卢鑫, 胡文友, 黄标, 等. 基于 UNMIX 模型的矿区周边农田土壤重 金属源解析[J]. 环境科学, 2018, 39(3):1421-1429. LU X, HU W Y, HUANG B, et al. Source apportionment of heavy metals in farmland soils around mining area based on UNMIX model[J].*Environmental Science*, 2018, 39(3):1421-1429.
- [29] 艾建超, 王宁, 杨净. 基于 UNMIX 模型的夹皮沟金矿区土壤重金 属源解析[J]. 环境科学, 2014, 35(9):3530-3536. AI J C, WANG N, YANG J. Source apportionment of soil heavy metals in Jiapigou goldmine based on the UNMIX model[J].*Environmental Science*, 2014, 35(9):3530-3536.
- [30] 侯沁言, 张世熔, 马小杰, 等. 基于GIS 的凯江流域农田重金属污染评价研究[J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(7):1514-1522.
 HOU Q Y, ZHANG S R, MA X J, et al. Evaluation of heavy metal pollution in farmland soil of the Kaijiang watershed based on GIS[J].

Journal of Agro-Environment Science, 2019, 38(7):1514-1522.

- [31] MA L, WANG L, JIA Y, et al. Arsenic speciation in locally grown rice grains from Hunan Province, China: Spatial distribution and potential health risk[J]. Science of the Total Environment, 2016, 557/558:438– 444.
- [32] 刘瑞雪, 乔冬云, 王萍, 等. 湘潭县农田土壤重金属污染及生态风 险评价[J]. 农业环境科学学报, 2019, 38(7):1523-1530. LIU R X, QIAO D Y, WANG P, et al. Heavy metal pollution and potential ecological risk assessment in farmland soils located in Xiangtan County in Hunan Province, China[J]. Journal of Agro-Environmental Science, 2019, 38(7):1523-1530.
- [33] HUANG Y, DENG M, WU S, et al. A modified receptor model for source apportionment of heavy metal pollution in soil[J]. Journal of Hazardous Materials, 2018, 354:161-169.
- [34] ACOSTA J A, FAZ A, MARTÍNEZ-MARTÍNEZ S, et al. Enrichment of metals in soils subjected to different land uses in a typical Mediterranean environment (Murcia City, southeast Spain) [J]. Applied Geochemistry, 2011, 26(3):405-414.
- [35] MOKHTARZADEH Z, KESHAVARZI B, MOORE F, et al. Potentially toxic elements in the middle east oldest oil refinery zone soils: Source apportionment, speciation, bioaccessibility and human health risk assessment[J]. Environmental Science and Pollution Research International, 2020, 27(32):40573-40591.
- [36] 郭海彦,周卫军,张杨珠,等.长沙"百里茶廊"茶园土壤重金属含量及环境质量特征[J].环境科学,2008,29(8):2320-2326. GUOHY,ZHOUWJ,ZHANGYZ, et al. Content of soil heavy metals and characteristics of environmental quality in tea plantations of Changsha Baili tea zone[J]. *Environmental Science*, 2008, 29(8):2320-2326.
- [37] ZHOU P L, YAO Y Y, YAN F D, et al. Cadmium accumulation characteristic in a soil-rice system in Zhejiang Province, China[J]. Advance Journal of Food Science and Technology, 2016, 11 (12): 817– 826.

(责任编辑:叶飞)