

DOI: 10.7524/AJE.1673-5897.20141021003

孙海峰, 张勇, 解静芳. 正定矩阵因子分解模型在环境中多环芳烃源解析方面的应用[J]. 生态毒理学报, 2015, (10) 4: 25-33

Sun H F, Zhang Y, Xie J F. Applications of positive matrix factorization (PMF) for source apportionment of PAHs in the environment [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2015, (10) 4: 25-33 (in Chinese)

正定矩阵因子分解模型在环境中多环芳烃源解析方面的应用

孙海峰¹, 张勇^{2,3,*}, 解静芳¹

1. 山西大学环境与资源学院, 太原 030006
2. 厦门大学环境与生态学院 近海海洋环境科学国家重点实验室, 厦门 361102
3. 漳州职业技术学院, 漳州 363000

收稿日期: 2014-10-21 录用日期: 2014-12-10

摘要: 正定矩阵因子分解模型 (PMF) 自 1993 年开发至今 其在环境中持久性有毒物质 (PTS) 尤其是多环芳烃 (PAHs) 源解析中的应用取得了重大研究进展。简要介绍了 PMF 模型的基本原理 在综述该模型用于土壤/沉积物、大气及水体中 PAHs 源解析现状的基础上 结合其在实际工作的应用 评述了其在环境中 PAHs 源解析方面的应用潜力及发展前景。

关键词: 多环芳烃; 正定矩阵因子分解; 源解析; 沉积物; 土壤; 大气; 水

文章编号: 1673-5897(2015)2-025-09 中图分类号: X171.5 文献标识码: A

Applications of Positive Matrix Factorization (PMF) for Source Apportionment of PAHs in the Environment

Sun Haifeng¹, Zhang Yong^{2,3,*}, Xie Jingfang¹

1. College of Environment and Resource, Shanxi University, Taiyuan 030006, China
2. State Key Laboratory of Marine Environmental Science (Xiamen University), College of the Environment and Ecology, Xiamen University, Xiamen 361102, China
3. Zhangzhou Institute of Technology, Zhangzhou 363000, China

Received 21 October 2014 accepted 10 December 2014

Abstract: Since its being developed in 1993, great progress has been made in the application of positive matrix factorization (PMF) in source apportionment of persistent toxic substances (PTS), especially in that of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). In this article, the basic principle of PMF was introduced first, and then its applications in source apportionment of PAHs distributed in soil/sediment, atmosphere and water were reviewed. In addition, the prospects of PMF in source apportionment of PAHs distributed in different environmental media were described based on our recent experimental results.

Keywords: polycyclic aromatic hydrocarbons; positive matrix factorization; source apportionment; sediment;

基金项目: 国家自然科学基金 (No. 201507077, 21177102, 41121091); 教育部博士点基金 (No. 20130121130005)

作者简介: 孙海峰 (1986-) 男, 博士, 硕士生导师, 研究方向为环境化学, E-mail: hfsun86@sxu.edu.cn;

* 通讯作者 (Corresponding author), E-mail: yzhang@xmu.edu.cn

soil; atmosphere; water

环境污染物的源解析是污染控制的基础。受体模型作为一类进行多环芳烃 (PAHs) 源解析的重要方法,主要包括定性解析方法和定量解析方法^[1]。其中,定性解析方法,如特征化合物法、比值法等发展较早,且应用较为成熟^[2],但其仅能定性分析,不能区分具体的污染源类型及贡献率,得到的结果可靠性较差^[3]。因子分析/多元线性回归 (FA/MLR)、化学质量平衡模型 (CMB)、非负约束因子分解模型 (FA-NNC)、稳定同位素法、正定矩阵因子分解模型 (PMF) 作为主要的定量源解析手段,近年来在 PAHs 源解析方面得到了迅速发展和应用^[4-8]。但是,CMB 模型的成功应用离不开污染源指纹谱图,而对于持久性有毒物质 (PTS) 的污染源指纹谱图往往难以获得。加之,某些 PAHs 在环境介质中不稳定,直接应用该模型得到的源解析结果误差较大;FA/MLR 方法存在的问题是当一个或多个源踪物不是来自于同种类型的污染源时,其应用即会受到限制,且该方法得出的因子载荷和因子得分常出现负值,影响源解析的结果;FA-NNC 模型无法将输入数据的误差考虑在内,使其应用受到一定限制;稳定同位素法由于仪器设备造价较高,在应用上也受到不同程度限制。PMF 作为一种新型源解析受体模型,在求解过程中对因子载荷和因子得分做出非负约束,且可利用数据标准偏差来进行优化等,这使得因子载荷和得分更具可解释性和明确的物理意义。但迄今为止,PMF 模型在各环境介质中 PAHs 源解析方面应用的研究综述鲜见报道,且此领域的研究有待深入。

本文着重介绍了 PMF 模型在土壤/沉积物、大气和水 4 种环境介质中 PAHs 源解析方面的研究进展。同时,结合所在课题组目前开展的相关研究工作,评述了该领域一些新的研究动态,并提出了其今后可能的研究方向。

1 PMF 模型

PMF 模型是由芬兰赫尔辛基大学的 Paatero 于 1993 年开发的一种用于源解析的受体模型^[9]。随着 PMF2 和 PMF3 版本的发布,近来该模型已广泛应用于大气颗粒和 PTS 的源解析中^[10-12]。PMF 在对因子载荷和得分做非负约束时,可赋予每组数据一定的不确定性估计,使得模型解析结果与实际更加相符。本研究采用 PMF3 模型,基于算法 ME-2。PMF 法的基本计算公式为:

$$X = GF + E \quad (1)$$

式中,样品浓度数据矩阵 (X) 由 n 个样品的 m 种化合物的浓度组成 (n × m),F 矩阵表示主要源的指纹谱,G 矩阵表示主要源的贡献率,E 是残差矩阵 (n × m),其中每个元素 e_{ij} 定义如下:

$$e_{ij} = x_{ij} - \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} \quad (2)$$

式中 e_{ij} 、 x_{ij} 、 g_{ik} 和 f_{kj} 分别为 E、X、G 和 F 的矩阵元素。F 和 G 矩阵中的元素均为非负是 PMF 模型的约束条件。Q(E) 是模型的判据之一,只有当 Q(E) 收敛时才可做进一步分析,多次运行使 Q(E) 趋于自由度值。Q(E) 的计算公式为:

$$Q(E) = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m (e_{ij}/s_{ij})^2 \quad (3)$$

式中 s_{ij} 为第 i 个样品中第 j 种化合物的不确定性大小,其他各项含义如前所述。

PMF 模型在求解过程中需对每一数据的不确定性进行估计。本文所采用的不确定性计算方法如下:

$$s_{ij} = \begin{cases} 2 \times \text{MDL} & \text{当 } x_{ij} > L_{\text{MDL}} \\ \sqrt{(P \times x_{ij})^2 + (\text{MDL})^2} & \text{当 } x_{ij} \leq L_{\text{MDL}} \end{cases}$$

式中 s_{ij} 为变量的不确定值, x_{ij} 为变量的浓度, L_{MDL} 为变量的方法检测限, L_{MDL} 对低于检出限的数据采用的 1/2 代替。

2 PMF 在土壤/沉积物中 PAHs 源解析方面的应用

土壤/沉积物因有机质含量高成为 PAHs 的重要储库,同时也是 PAHs 迁移、转化的中转站^[13]。例如,存储于土壤中的 PAHs 可通过植物根系吸收而转移至植物体内,向下迁移进入深层土壤和地下水,或经食物链的生物累积作用进一步富集放大,进而对人类、生态健康安全产生严重威胁。近年来,诸多研究人员已将 PMF 模型广泛应用于河流沉积物和土壤 PAHs 的源解析中。Stout 等^[14]综合运用化学指纹图谱法、主成分分析 (PCA) 法和 PMF 法对美国 Little Menomonee River 沉积物中 PAHs 进行了源解析。3 种模型的分析结果均表明,城市排放、点源污染是其中 PAHs 的主要污染源。并利用 PMF 法得到了这 2 种污染源对致癌性 PAHs 的贡献率,分别为 73% 和 27%。Sofowote 等^[15]将 PMF、主成分分析/多元线性回归 (PCA/MLR) 2 种模型应用于哈密尔顿港口 26 个站位沉积物中 PAHs 的源解析。对比表明,2 种方法的解析结果总体一致,交通污

染、石油泄漏和炼焦是其主要污染源,对应的源贡献率分别为61%、19%和20%。其中,PMF模型还可将交通源拆分为汽油源和柴油源,相应的贡献率分别为28%和23%。因此,两者相比,运用PMF模型得到的解析结果更加全面、清晰。Motelay-Massei等^[16]运用PMF模型对法国塞纳河岸市区和工业区2个站位沉积物中PAHs进行了源解析。因子分析表明,交通污染(包括汽油源和柴油源)、工业释放、家庭取暖和燃烧释放是其主要污染源。近来,Kwon和Choi^[17]又利用PMF法得到了韩国蔚山土壤中被美国国家环境保护总局(US EPA)列为优先控制的16种亲体PAHs的主要污染源,包括汽油/重油燃烧、柴油燃烧、炼焦和煤/生物质燃烧,对应的源贡献率分别为14%、54%、23%和9%。

在国内,刘春慧等^[18]利用PMF和FA-NNC模型分析了大辽河沉积物中PAHs的污染源。研究表明,燃煤、生物质燃烧、交通源和炼焦是4种主要污染源。同时,两模型的解析结果存在一定差异,PMF得到的上述4种源的贡献率分别为43%、24%、17%和16%,而FA-NNC的为50%、22%、16%和12%。与之类似,Cao等^[19]又采用PMF和PCA/MLR法解析了汕头海岸带红树林沉积物中16种亲体PAHs的主要来源。各模型的计算值与实测值吻合均较好,但两模型所得解析结果亦存在一定差异。经PCA/MLR法分析得到,生物质/燃煤和交通源是主要污染源,其中交通源的平均贡献率为37%;而运用PMF模型分析得到,生物质/燃煤是主要来源,而交通源的贡献率仅为12%。但研究认为,相比FA-NNC、PCA/MLR,PMF模型的解析结果更加全面、可靠。Lang等^[20]将PMF模型应用于日照沿海表层沉积物中PAHs的源解析,从中获知石油污染和机动车尾气、燃煤、生物质燃烧和炼焦是其主要来源,对应的源贡献率分别为75%、9%、8%和8%。这表明,人为活动是日照沿海表层沉积物中PAHs的主要污染源,这与当地的渔业活动、能源结构密不可分。近来,Tian等^[21]利用PMF法研究了汾河沉积物中PAHs的来源及其贡献率。研究表明,汽车尾气对PAHs毒性当量(TEQ)的贡献率最高(47%),而燃煤对PAHs总浓度的贡献率最高(43%)。后来,该研究小组又利用此方法解析了干、湿季节太湖沉积物中PAHs的主要来源。因子分析表明,机动车尾气是最主要来源,但其贡献率在干、湿季节不同,分别为62%和53%。此外,其他源

主要包括燃煤和木质燃烧^[22]。此外,Feng等^[23]又将此方法运用于黄河中、下游表层沉积物中PAHs的源解析,研究显示,燃煤、交通源和生物质燃烧/炼焦是主要污染源,三者的源贡献率分别为34%~42%、25%~37%和29%~33%。

Wang等^[24]首次将PMF模型应用于土壤中,成功地解析出大连市表层土壤中PAHs在冬、夏两季的污染源。在夏季,燃煤、汽油和柴油燃烧是其主要来源,对应的源贡献率分别为46%、30%和24%;在冬季,锅炉燃煤、交通尾气和汽油源是表层土壤中PAHs的主要来源,其贡献率分别为72%、20%和8%。这体现了我国东北典型城市冬、夏两季显著的能源结构差异。Yang等^[25]分别运用多元线性回归(MLR)、Unmix和PMF模型解析了黄淮平原农田土壤中PAHs的来源,3种受体模型所得结果的相关性较好,木质/生物质燃烧、化石燃料燃烧和交通尾气是主要污染源。经PCA/MLR、Unmix和PMF模型分析得到的上述3种污染源的贡献率分别为28%、53%和19%,48%、21%和18%,37%、27%和16%。此外,利用PMF还可将化石燃料燃烧源拆分成2种源,其贡献率分别为20%和12%。这表明,运用PMF模型得到的解析结果更加丰富、有效。廖书林^[26]运用此模型对辽河口湿地表层土壤中PAHs进行了源解析。研究表明,2008年10月间,燃烧释放是其最主要来源,其贡献率为48%,此外,石油污染、交通燃油和炼焦的源贡献率分别为18%、20%和14%;在2009年5月间,石油/交通源的贡献率最大,为32%,其余3种源分别为燃煤、石油污染和炼焦,对应的源贡献率为29%、25%和14%;2009年8月间,石油、交通污染的源贡献率相对较高,分别为38%和33%,而燃煤和炼焦的分别为16%和13%。近来,Chen等^[27]利用PMF法解析了中国西北部乌鲁木齐市表层土壤中16种亲体PAHs的主要来源。因子分析表明,燃煤、柴油释放、汽油释放和石油源是4种主要污染源,对应的源贡献率分别为51%、19%、18%和12%。随之,Wang等^[28]又利用此方法对上海市土壤中PAHs进行了源解析,从中分离出6种主要的污染源,分别为成岩过程、燃煤、生物质燃烧、木榴油、炼焦和汽车尾气,对应的源贡献率分别为6%、21%、13%、16%、23%和21%。与之类似,Zheng等^[29]运用PMF模型分析了东海流域农村土壤中PAHs的来源。研究表明,煤/生物质燃烧、石油、商业用木榴油和机动车尾气是其主要来

源对应的源贡献率分别为24%、24%、17%、17%和18%。Ma等^[30]运用此模型分析了我国辽河三角洲地区土壤中16种亲体PAHs和正构烷烃(n-alkanes)的来源。同样分离出6种主要污染源,为石油源、生物质燃烧、气-土交换、燃煤、交通尾气和生物成因,对应的源贡献率分别为23%、23%、18%、17%、14%和6%。近来,Zhao等^[31]又将PMF模型运用于煤产区山西忻州土壤中PAHs的源解析,从中分离出3种主要污染源,为煤/生物质燃烧、煤/油类燃烧和炼焦,其源贡献率依次为33%、26%和24%。

3 PMF在大气中PAHs源解析方面的应用

PAHs普遍存在于大气环境中,可通过呼吸作用、饮食和皮肤接触等途径进入人体,严重危害着人体健康。据统计,世界范围内每年有504 Gt PAHs释放至大气中,其中排放量最高的为我国,高达106 Gt^[32]。因此,在全球/区域尺度内控制、消减大气中PAHs的污染水平对人体健康的保护至关重要。更值得关注的是,随地域的不同,大气中PAHs的来源方式存在较大差异,所以在区域尺度内明确大气中PAHs的主要来源及其贡献率对控制PAHs污染水平至关重要。PMF模型在PAHs源解析中的应用首先是在大气领域,且较为广泛。国际上,Larsen和Baker^[33]于2003年分别运用MLR、Unmix和PMF模型分析了美国巴尔的摩市大气中PAHs的主要来源,3种受体模型所得结果基本一致。汽车尾气(包括柴油和汽油燃烧)、燃煤和油类释放的贡献率分别为16%~26%、28%~36%和15%~23%。其中,仅PMF模型可将柴油源和汽油源分辨开,这表明PMF更适于大气中PAHs的源解析。2004年, Lee等^[34]对美国纽约东部哈德森河口大气中PAHs进行了监测,并用PMF模型对其进行了源解析。研究表明,该地区大气中PAHs的来源主要包括两大类:一是交通污染(如汽油、柴油挥发,石油蒸发和不完全燃烧);二是天然气的不完全燃烧。Okuda等^[35]研究了2005—2007年间中国西安市气溶胶中PAHs的平均污染水平,并运用PMF模型对其来源进行了解析。研究表明,交通源和燃煤是PAHs的主要来源,对应的源贡献率在冬、夏两季存在显著差异。例如,机动车尾气释放在冬季对 Σ PAHs的源贡献率为19%,而在夏季为44%。Callen研究小组^[36]测定了2001—2009年间西班牙萨拉戈萨市大气PM₁₀中19种PAHs的分布水平,并运用PMF、MLR两种模型分析了苯并芘(BaP)的主要来源及

其贡献率。结果显示,汽车尾气的源贡献率最高,为35%。其他源主要包括重型车辆、轻质燃油、天然气和燃煤,对应的源贡献率依次为28%、18%、10%和9%。2种模型所得结果的一致性再次印证了PMF模型用于大气PAHs源解析的可行性。于是,该研究小组继续利用PMF模型对2010—2011年间萨拉戈萨市大气PM₁₀中19种PAHs进行了源解析,主要包括燃煤、汽油、汽车尾气和固定源释放4种主要污染源,对应的平均源贡献率依次为24%、20%、32%和24%。此外,这4种污染源在暖季、冬季的贡献率存在一定差异,分别为32%、19%、35%和14%,20%、21%、32%和27%^[37]。Khairy和Lohmann^[38]于2010年夏季和2011年冬季研究了亚历山大港气相和颗粒相共44种PAHs(包括烷基化-母体-)的浓度分布,并分别运用FA/MLR、PMF和Unmix模型解析了PAHs的主要来源及其贡献率,3种模型的因子解析结果基本一致。柴油、汽油燃烧作为汽车尾气的主要组成部分,其源贡献率分别为36%~49%、19%~34%,天然气的源贡献率为11%~27%,石油源的为8%~18%。此外,PMF模型所得结果与真实值更为接近。Moedinadini等^[39]运用PMF模型解析了伊朗德黑兰市可吸入颗粒物中PAHs和n-alkanes的主要来源。因子分析表明,对于PAHs,柴油源是最主要来源,其贡献率达56%,其他源包括汽油源、木质燃烧/垃圾焚烧、工业源和道路颗粒,对应的源贡献率依次为16%、13%、9%和6%;对于n-alkanes,石油污染是最主要来源,平均贡献率为65%。石油污染与生物质燃烧的混合作用、生物成因与化石燃料的混合作用、生物成因是其他3种源,平均源贡献率分别为15%、12%和8%。近来,Hanedar等^[40]利用PMF法对土耳其伊斯坦布尔市不同功能区3个采样站位大气中PAHs进行了源解析,从中分离出5种主要污染源,为柴油机、汽油机、天然气、木质燃烧和其他源。对于城市站位1、2,各源贡献率分别为31%、17%、25%、15%和12%;23%、19%、31%、11%和16%,这表明交通污染和住宅供热是城市大气中PAHs的主要污染源。对于乡镇站位3,对应的源贡献率分别为木质燃烧38%、天然气31%、机动车(包括柴油机和汽油机)18%和其他源13%。由此推测,家庭烹饪或住宅取暖是乡镇地区大气中PAHs的主要污染源。后来,Aydin等^[41]又利用该方法得到了土耳其主要工业区周围大气中PAHs的主要来源,主要包括生物质/煤燃烧、炼

钢、原油和石油的不完全燃烧、汽油释放和柴油释放，对应的源贡献率依次为 40%、27%、27%、3% 和 3%。

在我国，运用 PMF 模型解析大气中 PAHs 来源的研究起步相对较晚。2008 年，刘书臻^[42]利用 PMF 法对环渤海西部大气中 PAHs 进行了源解析，所得实验结果与特征比值法估计的基本一致，这是我国较早用 PMF 模型进行大气 PAHs 源解析的实例之一。紧接着，于国光等^[43]利用 PMF 模型分析了北京大气颗粒物中 PAHs 的来源。研究表明，汽油源在各个季节的贡献率均超过了 40%，柴油源的贡献率在 19%~29% 之间。此外，冬季由于燃煤取暖，使燃煤源的相对贡献率增大。后来，Ma 等^[44]同样利用 PMF 模型研究了哈尔滨大气中 PAHs 的主要来源。采暖期，源贡献率最高的为锅炉燃煤（39%），其次是汽油源（34%）；而非采暖期，源贡献率最高的为汽车尾气（59%），其次是地面蒸发（18%），这体现了我国典型东北城市能源结构的季节性差异特征。近来，Wang 等^[45]运用 PMF 模型解析了我国东海区 PM_{2.5} 中 PAHs 的来源及其贡献率。因子分析表明，机动车尾气和燃煤是最主要污染源，其年均源贡献率分别为 27% 和 24%。其次是生物质燃烧、石油残渣和气界面交换，对应的年均源贡献率分别为 17%、16% 和 16%。此外，主要污染源及其贡献率存在显著的季节性差异。例如，在秋、冬两季，燃煤和机动车尾气是最主要污染源，其平均贡献率分别为 35% 和 31%；而在夏、春两季，气界面交换是最主要的污染源，其在两季的贡献率分别为 60% 和 27%。国际间区域大气中 PAHs 的污染和源解析研究是控制

其污染水平的关键环节，但目前鲜见 PMF 模型在相关研究方面的应用。作者所在研究小组借助亚太经合组织（AMETEC）研究了亚太 8 个国家典型城、乡大气中 PAHs 的污染分布（图 1 所示），并用 PMF 模型解析了其来源（图 2 所示）。PMF 主因子个数为 4 时，得到的 Q(E) 值在 176.4 至 177.1 之间，比 Q(E) 理论值^[46]（168）高约 6%，表明 Q(E) 值在非常合理的范围内。因此，选择 4 个主因子进行分析。所得结果表明，15 种 PAHs 总浓度的模型预测值与实测值非常接近。运用 PMF 模型分析得到 4 个源分别为交通源、炼焦、燃煤和生物质燃烧。对于城市站位，交通尾气是最主要污染源，其贡献率为 53%，其他 3 种源的贡献率依次是炼焦 26%、燃煤 17% 和生物质燃烧 4%；对于乡镇站位，生物质燃烧的源贡献率最高，达 59%，而燃煤、交通源和炼焦的源贡献率分别为 21%、14% 和 6%。该研究表明，PMF 模型可用于国际区域大气中 PAHs 的源解析，这也为今后相关领域的研究提供了新的思路和技术支持。

4 PMF 在水体中 PAHs 源解析方面的应用

近年来，关于有机污染物，尤其是 PAHs 的源解析研究已扩展到水环境领域^[47]。研究表明，城市降雨径流污染已成为水体水质恶化及水生生态系统破坏的重要因素^[48-49]。了解城市道路径流中 PAHs 的含量、来源及贡献率对于控制水体中 PAHs 的污染水平至关重要。边璐等^[50]采用 PMF 和 PCA/MLR 2 种模型对上海市内高架道路径流中的 PAHs 进行了源解析。因子分析表明，交通源为高架道路径流

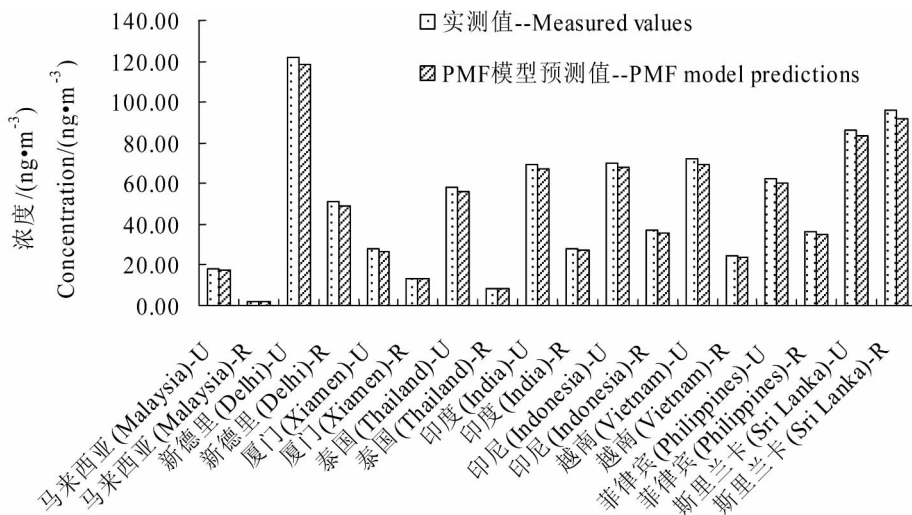


图 1 PAHs 总浓度的模型预测值和实测值 (U: 城市; R: 乡镇)

Fig. 1 The comparison of measurement and expectation value of PAHs concentrations (U: Urban; R: Rural)

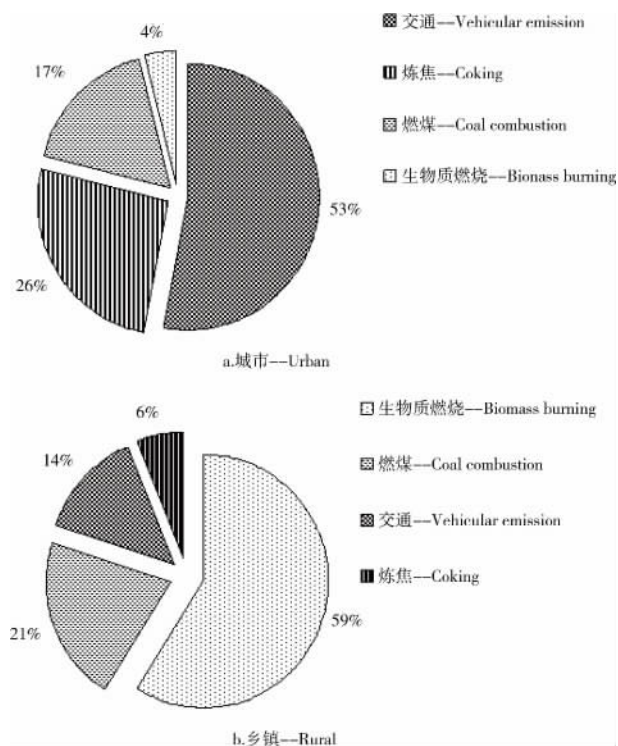


图2 各排放源对PAHs总浓度的贡献率
Fig. 2 Functional variations of source contributions to the measured atmospheric PAHs concentration

中PAHs的最主要来源,其余3种源为石油源、燃气源和其他源。2种模型的解析结果存在一定差异:PMF得到的源贡献率依次为38%、22%、26%和14%;与之对应,PCA/MLR得到的源贡献率依次为44%、29%、18%和9%。此外,两种模型的计算值与实测值拟合均较好,表明PMF模型可用于水体中PAHs的源解析。近来,Yang等^[51]以晋江主流至泉州湾段为研究对象,利用PMF法对其中的PAHs进行了源解析,从中分离出3种主要污染源,为燃煤、交通尾气和木质/生物质燃烧,对应的源贡献率分别为35%、29%和36%。Qin等^[52]同样运用PMF模型对我国巢湖水-悬浮颗粒-沉积物三相中的PAHs进行了源解析,均分离出3个主要的污染因子,为燃煤、机动车尾气和生物质燃烧,对应的源贡献率分别为40%、39%和21%。目前,PMF模型虽逐渐被引入至水体PAHs的源解析中,但仍处于起步阶段,尚存在较大的研究空间。

5 总结与展望

由以上讨论可知,与其他定量受体模型相比,PMF模型可依据数据的“不确定性”给予数据相应的权重,并在最终结果中包含相应的信息;在对缺失

或是低于检出限的数据做出类似替代时,可赋予其更大的不确定性以减少这些数据对源解析结果的干扰;可对因子载荷和因子得分做出非负约束,从而使结果更加合理。因此,此方法在不同环境介质中PAHs的源解析方面颇具潜力,也为环境法医学这一新兴学科的发展提供了强有力的技术支持。同时,现有PMF法的实际应用研究有待深入、拓展,例如PAHs的大气长距离传输特性迫切需要将此模型应用于国际间区域大气PAHs的源识别中;PMF模型在水体PAHs源解析的应用有待进一步加强,在动、植物体中PAHs源解析方面的应用也是今后重要的研究方向。

通讯作者简介:张勇(1962-),男,博士,博士生导师,主要研究方向为环境化学。

参考文献(References):

- [1] 田福林,陈景文,敖江婷. 受体模型应用于典型持久性有毒物质的来源解析研究进展[J]. 环境化学, 2009, 28(3): 319-327
Tian F L, Chen J W, Ao J T. Research progression source apportionment of typical persistent toxic substances based on receptor models [J]. Environmental Chemistry, 2009, 28(3): 319-327 (in Chinese)
- [2] Katsoyiannis A, Sweetman A J, Jones K C. PAH molecular diagnostic ratios applied to atmospheric sources: A critical evaluation using two decades of source inventory & air concentration data from the UK [J]. Environmental Science & Technology, 2011, 45: 8897-8906
- [3] Tobiszewski M, Namiesnik J. PAH diagnostic ratios for the identification of pollution emission sources [J]. Environmental Pollution, 2012, 162: 110-119
- [4] 赵洪涛,尹澄清,陈梅雪. 长江三角洲河网地区典型城镇街尘中多环芳烃的污染特征[J]. 生态毒理学报, 2009, 4(1): 123-130
Zhao H T, Yin C Q, Chen M X. The pollution characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons in street dust from a typical town in the Yangtze River Delta [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2009, 4(1): 123-130 (in Chinese)
- [5] Katsoyiannis A, Breivik K. Model-based evaluation of the use of polycyclic aromatic hydrocarbons molecular diagnostic ratios as a source identification tool [J]. Environmental Pollution, 2014, 184: 488-494
- [6] Hu N N, Huang P, Liu J H, et al. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface sed-

- iments of the Bohai Sea ,China [J]. *Environmental Science and Pollution Research* ,2013 ,20: 1031 – 1040
- [7] Crane J L. Source apportionment and distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons , risk considerations , and management implications for urban stormwater pond sediments in Minnesota , USA [J]. *Archives of Environmental Contaminations and Toxicology* ,2014 ,66: 176 – 200
- [8] Zhang Y G , Liu M Z , Chen H H , et al. Source identification of polycyclic aromatic hydrocarbons in different ecological wetland components of the Qinkenpao Wetland in Northeast China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety* ,2014 ,102: 160 – 167
- [9] 张俊刚,王跃思,王珊,等. 北京市大气中NMHC的来源特征研究[J]. *环境科学与技术* ,2009 ,32(5): 35 – 39
- Zhang J G , Wang Y S , Wang S , et al. Source apportionment of non-methane hydrocarbon in Beijing using positive matrix factorization [J]. *Environmental Science and Technology* ,2009 ,32(5): 35 – 39 (in Chinese)
- [10] Soonthornnonda P , Zou Y H , Christensen E R. PCBs in Great Lakes sediments , determined by positive matrix factorization [J]. *Journal of Great Lakes Research* ,2011 ,37(1) : 54 – 63
- [11] Zou Y H , Christensen E R , Li A. Characteristic pattern analysis of polybromodiphenyl ethers in Great Lakes sediments: A combination of eigenspace projection and positive matrix factorization analysis [J]. *Environmetrics* ,2013 ,24(1) : 41 – 50
- [12] Taiwo A M , Harrison R M , Shi Z B. A review of receptor modeling of industrially emitted particulate matter [J]. *Atmospheric Environment* ,2014 ,97: 109 – 120
- [13] 陈静,王学军,陶澍,等. 天津地区土壤多环芳烃在剖面中的纵向分布特征[J]. *环境科学学报* ,2004 ,24(2) : 286 – 290
- Chen J , Wang X J , Tao S , et al. Vertical distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils in Tianjin Area [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae* ,2004 ,24(2) : 286 – 290 (in Chinese)
- [14] Stout S A , Graan T P. Quantitative source apportionment of PAHs in sediments of little Menomonee River , Wisconsin: Weathered creosote versus urban background [J]. *Environmental Science & Technology* ,2010 ,44(8) : 2932 – 2939
- [15] Sofowote U M , Mccarry B E , Marvin C H. Source apportionment of PAH in Hamilton Harbour suspended sediments: Comparison of two factor analysis methods [J]. *Environmental Science & Technology* ,2008 ,42(16) : 6007 – 6014
- [16] Motelay-Massei A , Ollivon D , Carban B , et al. PAHs in the bulk atmospheric deposition of the Seine river basin: Source identification and apportionment by ratios , multivariate statistical techniques and scanning electron microscopy [J]. *Chemosphere* ,2007 ,67(2) : 312 – 321
- [17] Kwon H O , Choi S D. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in soils from a multi-industrial city South Korea [J]. *Science of the Total Environment* ,2014 , (470 – 471) : 1494 – 1501
- [18] 刘春慧,田福林,陈景文,等. 正定矩阵因子分解和非负约束因子分析用于大辽河沉积物中多环芳烃源解析的比较研究[J]. *科学通报* ,2009 ,54(24) : 3817 – 3822
- Liu C H , Tian F L , Chen J W , et al. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments of the Daliao River , China: Positive matrix factorization and factor analysis with non-negative constrains [J]. *Chinese Science Bulletin* ,2009 ,54: 3817 – 3822 (in Chinese)
- [19] Cao Q M , Wang H , Chen G Z. Source apportionment of PAHs using two mathematical models for mangrove sediments in Shantou coastal zone , China [J]. *Estuaries and Coasts* ,2011 ,34: 950 – 960
- [20] Lang Y H , Yang X , Wang H , et al. Diagnostic ratios and positive matrix factorization to identify potential sources of PAHs in sediments of the Rizhao offshore , China [J]. *Polycyclic Aromatic Compounds* ,2013 ,33(2) : 161 – 172
- [21] Tian Y Z , Li W H , Shi G L , et al. Relationships between PAHs and PCBs , and quantitative source apportionment of PAHs toxicity in sediments from Fenhe reservoir and watershed [J]. *Journal of Hazardous Materials* ,2013 ,248: 89 – 96
- [22] Tian Y Z , Shi G L , Liu G R , et al. Source contributions and spatiotemporal characteristics of PAHs in sediments: Using three-way source apportionment approach [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry* ,2014 ,33(8) : 1747 – 1753
- [23] Feng J L , Li X Y , Guo W , et al. Potential source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface sediments from the middle and lower reaches of the Yellow River , China [J]. *Environmental Science and Pollution Research* ,2014 ,21(19) : 11447 – 11456
- [24] Wang D G , Tian F L , Yang M , et al. Application of positive matrix factorization to identify potential sources of PAHs in soil of Dalian , China [J]. *Environmental Pollution* ,2009 ,157(5) : 1559 – 1564
- [25] Yang B , Zhou L L , Xue N D , et al. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils of Huanghuai Plain , China: Comparison of three receptor models [J]. *Science of the Total Environment* ,2013 ,443(15) : 31 – 39

- [26] 廖书林. 辽河口湿地土壤中多环芳烃的分布特征及来源解析[D]. 青岛: 中国海洋大学, 2011
Liao S L. Distribution and sources apportionment of PAHs from Liaohe Estuarine Wetland soils [D]. Qingdao: Ocean University of China, 2011
- [27] Chen M, Huang P, Chen L. Polycyclic aromatic hydrocarbons in soils from Urumqi, China: Distribution, source contributions, and potential health risks [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2013, 185(7): 5639–5651
- [28] Wang X T, Miao Y, Zhang Y, et al. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in urban soils of the megacity Shanghai: Occurrence, source apportionment and potential human health risk [J]. *Science of the Total Environment*, 2013, 447: 80–89
- [29] Zheng T H, Ran Y, Chen L G. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in rural soils of Dongjiang River Basin: Occurrence, source apportionment, and potential human health risk [J]. *Journal of Soils and Sediments*, 2014, 14: 110–120
- [30] Ma C L, Ye S Y, Lin T, et al. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils of wetlands in the Liao River Delta, Northeast China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, 80: 160–167
- [31] Zhao L Z, Hou H, Shuangguan Y X, et al. Occurrence, sources, and potential human health risks of polycyclic aromatic hydrocarbons in agricultural soils of the coal production area surrounding Xinzhou, China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2014, 108: 120–128
- [32] Shen H Z, Huang Y, Wang R, et al. Global atmospheric emissions of polycyclic aromatic hydrocarbons from 1960 to 2008 and future predictions [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(12): 6415–6424
- [33] Larsen R K, Baker J E. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere: A comparison of three methods [J]. *Environmental Science & Technology*, 2003, 37(9): 1873–1881
- [34] Lee J H, Gigliotti G L, Offenbergh J H, et al. Sources of polycyclic aromatic hydrocarbons to the Hudson River airshed [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(35): 5971–5981
- [35] Okuda T, Okamoto K, Tanaka S, et al. Measurement and source identification of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the aerosol in Xi'an, China, by using automated column chromatography and applying positive matrix factorization (PMF) [J]. *Science of the Total Environment*, 2010, 408(8): 1909–1914
- [36] Callen M S, Iturmendi A, Lopez J M, et al. Source apportionment of the carcinogenic potential of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) associated to airborne PM₁₀ by a PMF model [J]. *Environmental Science & Pollution Research*, 2014, 21: 2064–2076
- [37] Callen M S, Lopez J M, Iturmendi A, et al. Nature and sources of particle associated polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in the atmospheric environment of an urban area [J]. *Environmental Pollution*, 2013, 183: 166–174
- [38] Khairy M A, Lohmann R. Source apportionment and risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmospheric environment of Alexandria, Egypt [J]. *Chemosphere*, 2013, 91: 895–903
- [39] Moeinaddini M, Sari A E, Bakhtiari A R, et al. Source apportionment of PAHs and n-alkanes in respirable particles in Tehran, Iran by wind sector and vertical profile [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2014, 21(12): 7757–7772
- [40] Hanedar A, Alp K, Kaynak B, et al. Toxicity evaluation and source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) at three stations in Istanbul, Turkey [J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 488–489: 437–446
- [41] Aydin Y M, Kara M, Dumanoglu Y, et al. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) in ambient air of an industrial region in Turkey [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, 97: 271–285
- [42] 刘书臻. 环渤海西部地区大气中的 PAHs 污染[D]. 北京: 北京大学, 2008
Liu S Z. Atmospheric PAH contamination in the Western Watershed of Bohai Sea, China [D]. Beijing: Peking University, 2008
- [43] 于国光, 王铁冠, 朱先磊, 等. 北京市西北郊大气气溶胶中多环芳烃的源解析 [J]. *环境化学*, 2008, 27(2): 245–250
Yu G G, Wang T G, Zhu X L, et al. Source apportionment of PAHs in aerosol of northwest of Beijing [J]. *Environmental Chemistry*, 2008, 27(2): 245–250 (in Chinese)
- [44] Ma W L, Li Y F, Qi H, et al. Seasonal variations of sources of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) to a northeastern urban city, China [J]. *Chemosphere*, 2010, 79(4): 441–447
- [45] Wang F W, Lin T, Li Y Y, et al. Sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} over the East China Sea, a downwind domain of East Asia continental outflow [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, 92: 484–492
- [46] Eberly S. US EPA. EPA PMF 1.1 User's Guide [M]. Washington DC: us EPA, 2005

- [47] Chung C Y , Lai W L , Gau H S , et al. Interpretation and apportionment source of polycyclic aromatic hydrocarbons from Neighboring Rivers in Dapeng Bay (Taiwan) [J]. *Water Environment Research* , 2013 , 85 (4) : 308 - 316
- [48] Lee J H , Bang K W. Characterization of urban stormwater runoff [J]. *Water Research* , 2000 , 34(6) : 1773 - 1780
- [49] 马振邦,倪宏刚,魏建兵,等. 城市小集水区降雨径流污染来源解析[J]. *生态环境学报*, 2011 , 20(3) : 468 - 473
Ma Z B , Ni H G , Wei J B , et al. Source apportionment of stormwater pollution in small urban catchment [J]. *Ecology & Environmental Sciences* , 2011 , 20(3) : 468 - 473 (in Chinese)
- [50] 边璐,李田,侯娟. PMF 和 PCA/MLR 法解析上海市高架道路地表径流中多环芳烃的来源 [J]. *环境科学* , 2013 , 34(10) : 3840 - 3846
- Bian L , Li T , Hou J. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons using two mathematical models for runoff of the Shanghai elevated inner highway , China [J]. *Environmental Science* , 2013 , 34(10) : 3840 - 3846 (in Chinese)
- [51] Yang D , Qi S H , Zhang Y , et al. Levels , sources and potential risks of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in multimedia environment along the Jinjiang River mainstream to Quanzhou Bay , China [J]. *Marine Pollution Bulletin* , 2013 , 76: 298 - 306
- [52] Qin N , He W , Kong X Z , et al. Distribution , partitioning and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in the water-SPM-sediment system of Lake Chaohu , China [J]. *Science of the Total Environment* , 2014 , 496: 414 - 423 ◆