

影响中国近地面 γ -HCH 浓度和沉积量的贡献源评估

田崇国¹,任南琪¹,马建民²,李一凡^{1,2*} (1.哈尔滨工业大学市政环境工程学院,城市水资源与水环境国家重点实验室,国际持久性有毒物质联合研究中心,黑龙江 哈尔滨 150090; 2.加拿大环境部科学技术局,多伦多 M3H 5T4)

摘要: 采用 CanMETOP 模型,模拟了 2005 年欧洲(去除前苏联所占区域)、印度、中国和前苏联 4 个主要的 γ -HCH 土壤残留区域的 γ -HCH 通过挥发、大气传输和沉积对中国环境的影响.结果表明,中国东部和西部地区近地面的年均浓度分别为 10~100pg/m³ 和 1~10pg/m³.中国本地源对东中部和东北部的浓度贡献在 90%以上,对东南部地区的贡献为 30%~80%,印度源对该地区的贡献为 10%~30%;印度源对西部的近地面浓度贡献在 50%以上;欧洲源和前苏联源主要影响西北地区,贡献比例均在 10%左右.中国本地源对东北区域的总沉积贡献最大(75%),西北区域和南部区域的总沉积均以印度源贡献为主,贡献比例分别为 63%和 67%.整个中国,年总沉积量为 691t,贡献比例依次为印度源(55.1%),中国源(31.6%),欧洲源(3.6%),前苏联源(2.5%).

关键词: 模拟; γ -HCH; 中国; 大气远距离传输

中图分类号: X131 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2009)09-0897-05

Sources of γ -HCH in Chinese air at near-surface level and deposited to Chinese soil. TIAN Chong-guo¹, REN Nan-qi¹, MA Jian-min², LI Yi-fan^{1,2*} (1.International Joint Research Center for Persistent Toxic Substances, State Key Laboratory of Urban Water Resource and Environment, School Municipal and Environmental Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150090, China; 2.Science and Technology Branch, Environment Canada, Ontario M3H 5T4, Canada). *China Environmental Science*, 2009,29(9): 897~901

Abstract: CanMETOP model was employed to assess the contributions to γ -HCH in Chinese air and soil from four major γ -HCH residual regions, including India, the former Soviet Union (FSU), Europe (excluding the FSU), and China itself in 2005. Modeled annual average air concentrations of γ -HCH at 1.5 m height above ground surface ranged for 10~100 pg/m³ in eastern region, and 1~10 pg/m³ in western region of China. The former was mainly due to Chinese source (30%~80%), while the major of the later was attributable to Indian source (> 50%). The European and FSU sources both mostly contributed to the Chinese northwestern region (10%). The contributions of deposition in China were also different in different area. Chinese source dominated the deposition of γ -HCH in the northeastern area (75%), while Indian source made the largest contribution in northwestern (63%) and southern (67%) areas of China. For whole China, annual total deposition of γ -HCH in 2005 was 691 t, among which, 55.1% was from India, 31.6% was from China, 3.6% was from Europe, and 2.5% was from the FSU.

Key words: simulation; γ -HCH; China; long-range atmospheric transport

全球 γ -HCH 的土壤残留主要集中在欧洲(去除前苏联,以下简称欧洲)、印度、中国和前苏联 4 个区域。 γ -HCH 可以通过大气远距离传输(LRAT)^[1-2],在西风波和季节环流的影响下,亚欧大陆的 γ -HCH 通过大气向东、北方向传输的过程中,中国是其跨太平洋之前的主要影响区域.由于 γ -HCH 可以对生态环境造成潜在的影响,特别是通过食物链富集,对人体健康构成严重的威胁^[3],本研究在前期工作的基础上^[4],利用 CanMETOP

模型,以修正的 2005 年全球 γ -HCH 土壤残留清单为初始条件,使用清单分离的方法模拟了全球 4 个 γ -HCH 主要污染源区域土壤中残留的 γ -HCH 通过挥发、大气远距离传输以及沉积作用对中国(不包括台湾)环境的影响,并对污染源的贡献进行了评估.

收稿日期: 2009-01-04

基金项目: 中国-北美林丹合作项目

* 责任作者, 教授, ijrc_pts_paper@yahoo.com

1 研究方法

CanMETOP 模型的详细描述见文献[4]. 作者先期研究结果表明,2005 年的全球 γ -HCH 土壤残留为 13584t,其中残留量较大的地区为欧洲(3701t),印度(3004t),中国(1899t),前苏联(1223t).这 4 个区域的 γ -HCH 土壤残留量占全球总残留量的 72%,是全球 γ -HCH 土壤残留的集中区域.

要定量评估一个污染源区对某一受体区域的影响,就必须将污染源区分离,除污染源清单不同,其他条件均相同的条件下进行系列模拟,以确定某一个特定污染源区对受体区域的影响.Ma 等^[5]曾使用 CanMETOP 模型和清单分离方法评估了北美的不同毒杀芬污染源区域对五大湖区的影响.这种方法可以表示为:

$$r_{it} = \sum f_i / \sum f_t \quad (1)$$

式中: r_{it} 为使用第 i 个区域的清单与使用总清单模拟的某类表征方式(如浓度、沉积量等)的比值; $\sum f_i$ 和 $\sum f_t$ 分别为使用第 i 个区域的清单和使用总清单模拟的受体区域某类表征方式的平均值或汇总值.

为定量评估这 4 个主要污染区土壤中的 γ -HCH 通过挥发、大气输运和沉积效应对中国环境产生的影响,本研究利用修正的全球 γ -HCH 土壤残留清单,采用清单分离模拟的方法共进行了 5 次模拟,分别为全球 γ -HCH 土壤残留清单 (S1);仅有中国 γ -HCH 土壤残留清单(S2);仅有印度 γ -HCH 土壤残留清单(S3);仅有欧洲 γ -HCH 土壤残留清单(S4);仅有前苏联 γ -HCH 土壤残留清单(S5).

2 结果与讨论

2.1 中国近地面大气 γ -HCH 年均浓度及 4 个主要源区的贡献

图 1a 是使用 S1 清单模拟的年均距地面 1.5m 高度(近地面)的 γ -HCH 大气浓度.由图 1a 可见,较高的 γ -HCH 大气浓度出现在中国东部地区,最高浓度与本地残留量较高的地区相对应.东部、西部地区近地面的年均浓度分别为 $10 \sim 100 \text{ pg/m}^3$, $1 \sim 10 \text{ pg/m}^3$.图 1b 和图 1c 分别为使用

S2 和 S3 清单模拟的年均近地面的 γ -HCH 大气浓度与使用 S1 清单模拟的年均近地面的 γ -HCH 大气浓度的比值;图 1d 分别为使用 S4 和 S5 清单模拟的年均近地面 γ -HCH 大气浓度与使用 S1 清单模拟的 γ -HCH 大气浓度的比值.近地面半挥发性污染物浓度主要由本地源挥发和大气传输两部分贡献组成,中国本地土壤中残留的 γ -HCH 对东部地区近地面大气浓度贡献比例较大,在东中部和东北部的贡献基本在 90%以上,而在东南部地区为 30%~80%(图 1b),印度源对该地区的贡献为 10%~30%(图 1c).在西风带和印度季风的共同影响下,中国西部地区的污染物主要来自印度源^[6].印度源通过大气远距离传输对中国西部地区近地面 γ -HCH 大气浓度的贡献比例普遍为 50%~80%,在喜马拉雅山脉南坡的贡献比例达到 80%以上.由于欧洲源距中国距离较远,前苏联土壤中 γ -HCH 残留量相对较低,这 2 个源区对中国近地面 γ -HCH 大气浓度的贡献主要集中在西北部地区,且贡献比例均在 10%左右(图 1d).

2.2 中国 γ -HCH 年总沉积分布及 4 个主要源区的贡献

由于地面的摩擦作用、土-气交换、水-气交换以及风速相对较小等因素的综合影响,大气远距离传输效应在近地面表现得十分微弱.POPs 的大气远距离传输主要发生在中高对流层^[7],然后通过大气沉积,是其从污染源区迁移到其他地区的主要途径^[8-10].图 2 是利用 S1 清单模拟的 γ -HCH 年总沉积量.由图 2 可见, γ -HCH 沉积量的空间分布与年均近地面 γ -HCH 大气浓度空间分布(图 1a)差异很大.最大沉积量出现在中国西南地区青藏高原的南坡,在 $1.0 \times 10^8 \text{ pg/m}^2$ 以上,这与印度源在该地区高空形成较高的大气浓度和处于多雨地带相对应^[11].除此以外,沉积量的分布趋势基本呈现从东南 $[(0.5 \times 10^8 \sim 1.0 \times 10^8) \text{ pg/m}^2]$ 向西北减少的趋势,最低沉积量在新疆和内蒙古北部的沙漠地区 $[(1.0 \times 10^6 \sim 5.0 \times 10^6) \text{ pg/m}^2]$,这大体与中国年降水量的空间分布特征相同^[12].

根据近地面 γ -HCH 年均浓度分布(图 1a)和年总沉积量分布(图 2),将中国分为西北(WNC)、东北(ENC)和南部(SC)3 个区域(图 2).根据分区,利用

S1~S5 清单模拟的 3 个区域的年总沉积量计算 4 个源区的贡献率绘制于图 3.使用 S1 清单模拟得出 2005 年 γ -HCH 在中国总沉积量为 691t,4 个主要源区的总贡献比例为 92.8%,其中印度源占 55.1%,中国源占 31.6%,欧洲源占 3.6%,前苏联源占 2.5%. 4 个主要源区对 WNC、ENC 和 SC 的沉积量贡献为 89.2%,96.5%,92.7%.

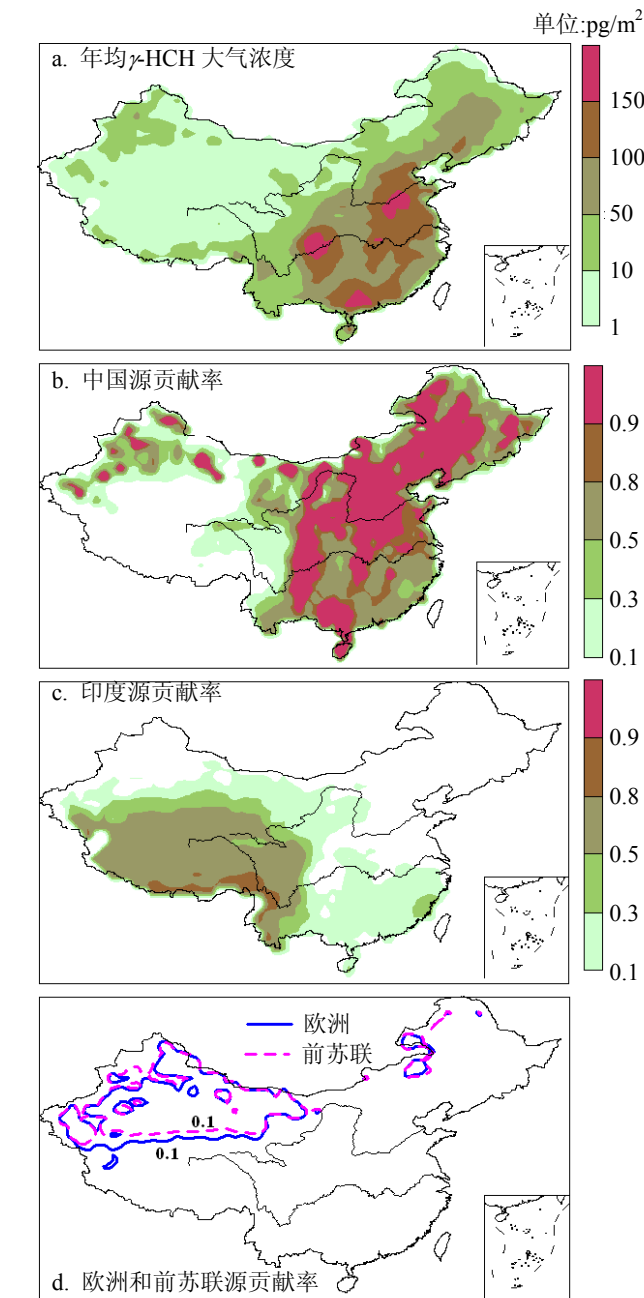


图 1 2005 年距地表 1.5 m 高度大气中 γ -HCH 年均浓度及 4 个源区的贡献率

Fig.1 Annual average concentration of modeled daily γ -HCH air concentration at 1.5 m height above ground surface in 2005 and contribution ratios from the 4 major sources

由图 3 可见,WNC 区 2005 年总沉积量为 142t,对该地区影响较大的为印度源和欧洲源^[6],贡献比例分别为 62.8%和 10.4%;而中国源和前苏联源的贡献比例较小,分别为 8.4%和 7.6%.ENC 区 2005 年总沉积量为 147t,由于东亚季风和污染源区分布的综合影响^[13-15],中国源的贡献比例最大,达到 75.5%;其次为印度源,贡献比例为 15.3%;欧洲和前苏联的贡献比例只有 3.0%和 2.6%.SC 区 2005 年总沉积量为 403t,由西风带、亚洲季风以及污染源分布的共同作用,印度源的贡献比例为 66.9%,中国源的贡献比例为 23.7%,而欧洲源和前苏联源的贡献比例仅为 1.4%和 0.6%.

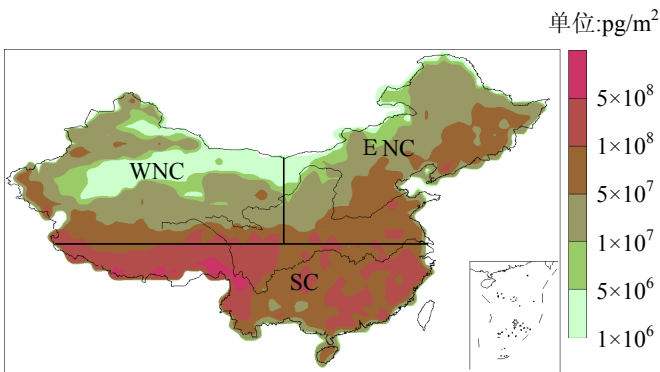


图 2 2005 年中国 γ -HCH 年总沉降量 (干沉积+湿沉积)

Fig.2 Modeled γ -HCH total (wet+dry) depositions in China in 2005

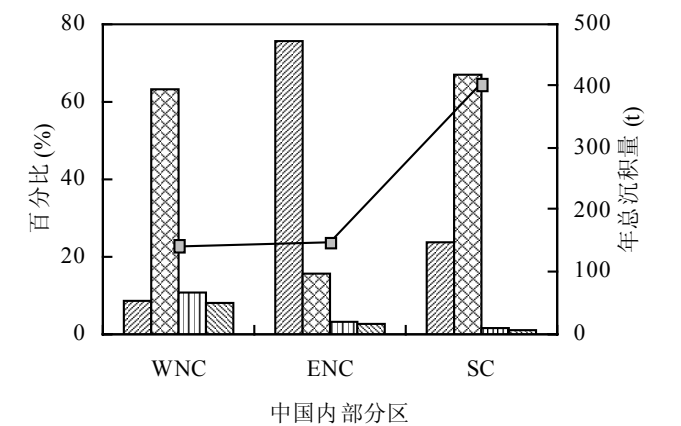


图 3 2005 年中国 3 个区域的大气中 γ -HCH 沉积总量及 4 个主要源区贡献比例

Fig.3 Total depositions of γ -HCH for 3 regions in China in 2005 and the contribution rates from the 4 major sources

中国 印度 欧洲
前苏联 沉积量

2.3 印度源通过沉积效应对中国环境影响的变化趋势

鉴于近地面的大气传输效应相对微弱,因此从沉积量的角度讨论印度源对中国环境的影响.

在任意一个网格 (i,j) 总沉积量 (F_t) 是干沉积和湿沉积量之和,干沉积量 (F_d) 和湿沉积量 (F_w) 的表达式为:

$$F_d = v_d^{\text{eff}}(i, j)C_a(i, j) \quad (2)$$

$$F_w(i, j) = \int_0^\infty A(i, j)C_a(i, j)dz \quad (3)$$

式中: v_d^{eff} 为距地面 1.5m 处颗粒物有效沉积速率; C_a 为距地面 1.5m 处 γ -HCH 的大气浓度; A 为湿清除系数,是气-水分配系数和降水率的函数,这 2 个参数的确定方法参见文献[16].

在中国境内,将 S3(印度)清单模拟的各网格年湿沉积量与年总沉积量进行对比,可见年总沉积量主要是以湿沉积为主,普遍为 80%~90%,在西南部地区以及西北、东北个别地区达到了 90%以上(图4).干沉积是污染物在一定浓度下缓慢向地表环境介质转移的过程,而湿沉积只在降雨期间发生,相对于干沉积是一个短期快速的过程,其与降雨量和降雨时间有着密切的关系^[17].有资料表明,形成中国降雨的水汽来源很大一部分来自阿拉伯海和孟加拉湾^[18],水汽经印度次大陆上空时就可以携带大气中的 γ -HCH 进入中国,并在一定的气象条件下,使其主要以湿沉积的方式转移到中国境内的地表环境中.

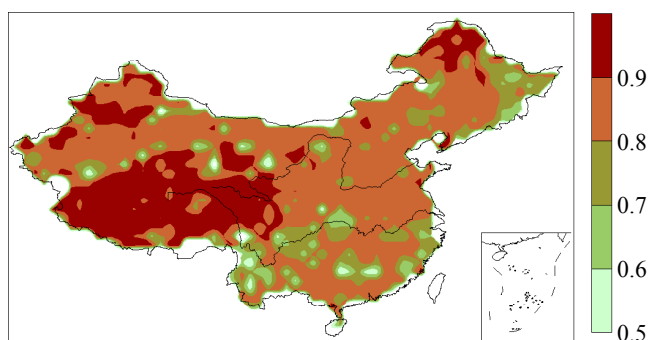


图4 使用 S3 清单模拟的 2005 年中国 γ -HCH 年湿沉积量与总沉积量的比值

Fig.4 Ratios between annual wet and total depositions of γ -HCH in China in 2005 modeled using S3 inventory

变化,对使用 S3 清单模拟的 3 个区域的月均沉积总量进行标准化处理,可以表示为:

$$DV_{i,j} = \frac{D_{mi,j} - D_{ai}}{S_i} \quad (4)$$

式中:DV 为标准差标准化的逐月日均沉积量变化; D_m 为逐月日均沉积量; D_a 为年日均沉积量; i 代表划分的中国 3 个区域; j 为月份,1~12 月; S 为均方差.

由图 5 可见,印度源对中国 3 个区域的影响随时间变化趋势存在显著差异,变化形式与来自孟加拉湾和阿拉伯海的水汽输送通道随季节变化相似^[19].1 月份来自阿拉伯海的水汽经帕米尔高原给西北地区带来一定的降水^[20],同时 γ -HCH 随着水汽进入 WNC 区并沉积下来的通量也相应增大.随后,水汽通道开始东移,来自印度地区的气流、水汽进入西北地区的通量明显减少,水汽开始向我国东南地区延伸,来自印度源的 γ -HCH 在 SC 区的沉积量开始逐渐增大.印度季风和东亚季风的爆发和阶段性北进,使 ENC 区和 WNC 区的沉积量开始显著增大.当夏季风开始衰退,冬季风逐步形成,在 WNC 区和 ENC 区以西北风为主,在 SC 区域以东北风为主,印度源的 γ -HCH 进入中国的通量明显降低,3 个区域的沉积量也显著下降.

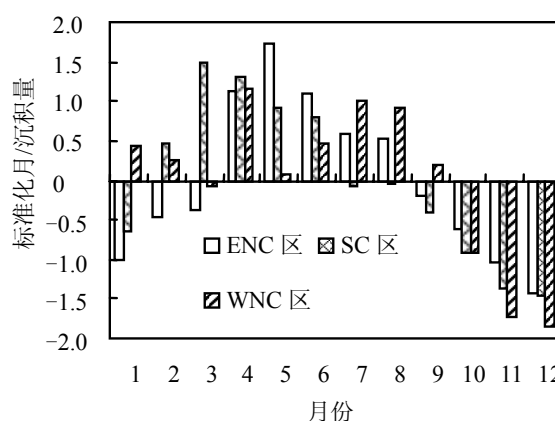


图5 使用 S3 清单模拟的中国 3 个区域的标准月沉积量变化

Fig.5 Normalized monthly total depositions in 3 regions in China modeled using S3 inventory

3 结论

3.1 中国本地源通过挥发和大气远距离传输只

对中国东中部和东北部地区的近地面大气的 γ -HCH 浓度影响较大,而对南部和西北部地区影响较小,这 2 个区域的主要贡献来自印度源.4 个主要源区对我国西北地区(WNC)、东北地区(ENC)和南部地区(SC)的总沉积量贡献为 89.2%、96.5%和 92.7%.

3.2 对于整个中国,2005 年 γ -HCH 总沉积量为 691t,贡献比例从大到小依次为印度源(55.1%),中国源(31.6%),欧洲源(3.6%),前苏联源(2.5%),4 个源区的总贡献比例为 92.8%.

参考文献:

- [1] Beyer A, Mackay D, Matthies M, et al. Assessing long-range transport potential of persistent organic pollutants [J]. *Environ. Sci. Technol.*, 2000,34(4):699-703.
- [2] Shen L, Wania F, Lei Y D, et al. Atmospheric distribution and long-range transport behavior of organochlorine pesticides in North America [J]. *Environ. Sci. Technol.*, 2005,39(2):409-420.
- [3] Sarkar S K, Bhattacharya B D, Bhattacharya A, et al. Occurrence, distribution and possible sources of organochlorine pesticide residues in tropical coastal environment of India. An overview [J]. *Environ. Int.*, 2008,34(7):1062-1071.
- [4] 田崇国,任南琪,马建民,等.2005 年全球主要污染区 γ -HCH 土壤残留的模拟与验证 [J]. *中国环境科学*, 2009,29(8):785-789.
- [5] Ma J, Venkatesh S, Li Y F, et al. Tracking toxaphene in the North American Great Lakes basin.1. Impact of toxaphene residues in the U.S. soils [J]. *Environ. Sci. Technol.*, 2005,39(21):8123-8131.
- [6] Li J, Zhu T, Wang F, et al. Observation of organochlorine pesticides in the air of the Mt. Everest region [J]. *Ecotox. Environ. Saf.*, 2006,63(1):33-41.
- [7] Koziol A S, Pudykiewicz J A. Global-scale environmental transport of persistent organic pollutants [J]. *Chemosphere*, 2001, 45(8):1181-1200.
- [8] Wania F, Mackay D. Tracking the distribution of persistent organic pollutants: control strategies for these contaminants will require a better understanding of how they move around the globe [J]. *Environ. Sci. Technol.*, 1996,30(9):390-396.
- [9] Wania F, Dugani C B. Assessing the long-range transport potential of polybrominated diphenyl ethers: a comparison of four multimedia models [J]. *Environ. Toxicol. Chem.*, 2003,22(6): 1252-1261.
- [10] Barber J L, Sweetman A J, Van W D, et al. Hexachlorobenzene in the global environment: emissions, levels, distribution, trends and processes [J]. *Sci. Total Environ.*, 2005,349(1-3):1-44.
- [11] 苗秋菊,徐祥德,施小英.青藏高原周边异常多雨中心及其水汽输送通道 [J]. *气象*, 2004,30(12):44-47.
- [12] 严华生,严小冬.中国降水场的时空分布变化 [J]. *云南大学学报(自然科学版)*, 2004,26(1):38-43.
- [13] Ding Y H. Summer monsoon rainfalls in China [J]. *J. Meteor. Soc. Japan*, 1992,70(1B):397-421.
- [14] 窦艳伟.中国林丹网格化使用清单及个别地区环境归趋和健康风险初步研究 [D]. 北京:北京大学, 2006.
- [15] Li Y F, Cai D J, Shan Z J, et al. Gridded usage inventories of technical hexachlorocyclohexane and lindane for China with 1/6° latitude by 1/4° longitude resolution [J]. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, 2001,41(3):261-266.
- [16] Ma J, Daggupaty S M, Harner T, et al. Impacts of lindane usage in the Canadian prairies on the Great Lakes ecosystem . 2. Modeled fluxes and loadings to the Great Lakes [J]. *Environ. Sci. Technol.*, 2004,38(4):984-990.
- [17] 叶常明.多介质环境污染研究 [M]. 北京:科学出版社, 1997: 49-52.
- [18] 徐祥德,陶诗言,王继志,等.青藏高原—季风水汽输送“大三角扇型”影响域特征与中国区域旱涝异常的关系 [J]. *气象学报*, 2002,60(3):257-266.
- [19] 周长艳,李跃清,李 薇,等.青藏高原东部及邻近地区水汽输送的气候特征 [J]. *高原气象*, 2005,24(6):880-888.
- [20] 林振耀,吴祥定.青藏高原水汽输送路径的探讨 [J]. *地理研究*, 1990,9(3):30-40.

作者简介: 田崇国(1976-),男,黑龙江甘南县人,哈尔滨工业大学博士研究生,主要从事持久性有毒物质多介质环境模拟研究.发表论文 2 篇.