

基于扫描核探针技术的大气气溶胶单颗粒物 源识别与解析方法研究与应用

李晓林 朱节清 郭盘林 王基庆 陆荣荣 裘惠源 李铭尧 姜 达
王永其 周 涛 李 燕 张桂林
(中国科学院上海原子核研究所 上海 201800)

摘要 将高分辨、高灵敏的扫描核探针(SNM)技术与人工神经网络(ANN)模式识别方法相结合,以单个气溶胶颗粒物化学表征为基础,开展大气气溶胶源识别与解析的新方法研究。摸索出单颗粒气溶胶SNM靶样的制备方法。建立了SNM多站多参量分析模式的数据获取系统和分析条件。用SNM测定了单个大气气溶胶粒子的元素谱特征。基于标准的误差反向传输神经网络算法,建立ANN模式识别系统,直接对单个气溶胶粒子的SNM分析能谱模式进行识别,判别其来源,计算源的贡献率。将建立的方法初步应用于上海市大气PM₁₀源识别与解析研究。结果表明该方法解析能力强,解析结果客观,具有查找未知污染源、解析低浓度污染源的特点。

关键词 气溶胶, 大气颗粒物, 扫描核探针, 人工神经网络, PM₁₀

中图分类号 X830.1

大气气溶胶作为分散在大气中的微小颗粒物,几乎和所有重大的大气环境问题密切相关^[1,2]。因此,大气气溶胶源识别与解析研究一直是大气环境研究的重要课题^[3]。

过去的二十年,传统的源识别与解析方法在大气气溶胶源解析研究中发挥了重要作用。传统的源识别与解析方法是以大气采样的总体分析(Bulk analysis)数据为基础,结合各种源解析计算方法,进行源解析的。由于总体分析结果是一个含各种排放源成分的混合结果,排放源物质化学成分的非线性独立性和平均化学成分的某些相似性,使得源解析计算方法的应用受到一定限制。此外,总体分析还有可能使某些颗粒物的特征元素,或者某些低浓度毒性元素检测不到,从而造成弱排放源和低浓度污染源的漏判^[4]。

随着环境问题研究的深入,低浓度、混合污染的环境监测和源解析研究对传统的大气气溶胶源解析方法提出挑战。人们开始注意到对单颗粒大气气溶胶的表征研究,形成了环境化学研究的一个新动向^[5,6]。研究表明,来自不同排放源的大气气溶胶,其化学组成特别是微量元素的组成具有各自的特征^[7,8]。因此,这种特征可视为大气气溶胶的源指纹。如果能对大气气溶胶采样进行单个颗粒分析,提取

和识别单个大气气溶胶颗粒物的化学特征谱,那么就能对大气气溶胶的来源作出直接和清晰的判断。并且,根据颗粒物数目的计数统计就能给出源贡献率。这是一种以单个颗粒物化学表征为基础的大气气溶胶源识别与解析新方法。它从根本上避免传统方法的弊端。我们称之为大气气溶胶源识别与解析的单颗粒方法(简称单颗粒法)。

1993年Artaxo等^[9]人采用扫描核探针(SNM)对南极大气气溶胶作了单颗粒分析。由于SNM具有 μm 尺度的空间分辨率和ppm水平的元素分析检出能力,Artaxo等人获得了C、N、O、Na、Mg、Al、Si、S、Cl、P、K、Ca、Mn、Fe、Ni、Cu、Zn、As、Br、Sr、Rb、Zr和Pb等二十几种主、微量元素的定量数据,确定出气溶胶粒子的新类型。在我国,1996年汪安璞等^[10]人对北京大气气溶胶单个颗粒的化学表征作了研究。同年,沙因等^[11]人采用中国科学院上海原子核研究所的长焦距扫描核探针,初步研究了单个气溶胶粒子的SNM分析方法。

此外,意大利的Caridi等人^[12]、新加坡国立大学的Orlic等人^[13]、比利时GENT大学的Maenhaut等人^[14]也先后采用SNM技术研究了单个大气颗粒物。这些研究都表明,SNM是单颗粒物分析的理想技术,利用单颗粒气溶胶的化学组分特征进行源识

中国科学院创新工程项目(KJXC2-SW-N01)和国家自然科学基金项目(19935020)共同资助

第一作者: 李晓林, 男, 1955年12月出生, 1996年于中国科学院上海原子核研究所获博士学位, 核分析技术及其应用专业

收稿日期: 2002-10-24

别与解析是很有前景的。

本文工作较系统地开展了基于 SNM 技术的单个气溶胶颗粒物源识别与解析研究。研究工作的基本内容是：(1) 建立快速、高分辨、高灵敏的单个气溶胶颗粒物的 SNM 分析技术；(2) 采用人工神经网络 (ANN) 方法直接对单个气溶胶粒子的 SNM 分析能谱 (如，质子激发 X 射线能谱) 进行模式识别，判别气溶胶颗粒物的来源，计算其源贡献率；

(3) 结合大气环境污染研究的实际需要，将该方法应用于上海市大气可吸入颗粒物 (PM_{10}) 的源识别与解析研究。

1 单颗粒气溶胶的扫描核探针分析

在 SNM 分析中，采用聚焦质子微束激发 X 射线分析 (Micro-PIXE) 技术，可获得单个气溶胶粒子中 10 多个主、微量元素的 PIXE 能谱。这些 Micro-PIXE 能谱含有组成单个气溶胶粒子的化学元素种类和含量的特征信息。我们称之为单颗粒气溶胶的元素特征谱 (或称元素指纹谱)。本次研究工作中，采用 SNM 技术的目的就是要获得单颗粒气溶胶的元素指纹谱。然而，单个大气气溶胶粒子的 SNM 分析，在样品制备、数据获取与处理系统等方面都对 SNM 技术提出挑战，围绕单颗粒分析的这些技术难点本工作展开了以下 SNM 方法学研究。

1.1 单颗粒样品的制备

制备合格靶样是单颗粒大气气溶胶 SNM 分析的关键技术之一。SNM 分析要求待测气溶胶颗粒应固定在一有机薄膜上，制成颗粒物稀疏合适 (以 10—20 μm 的间距为宜) 的靶样。理想的制靶方法是要保证在制靶过程中颗粒物的化学组分和分布不被改变。

目前，在单个气溶胶颗粒物的 SNM 分析中，制样多采用悬浮液制样法^[15]。其基本做法是：先将大气气溶胶样品掺入溶有树脂或尼龙类材料的有机溶液中，制成气溶胶粒子的悬浮液，再用此悬浮液制成靶样。该方法的弊端是悬浮液中气溶胶粒子的有机组分有可能被有机溶剂所溶解，以及气溶胶粒子的原始形貌随着悬浮液的机械搅拌有可能被破坏，从而造成气溶胶粒子的原始化学组分和元素分布发生改变。研究表明，采用悬浮液制样法会使气溶胶颗粒中有机形态的金属损失^[16]。

为了克服悬浮液制样法的不足，满足 SNM 分析的要求，本工作摸索出一种新的制样方法，简称散落法。具体步骤如下：

1) 2 mg 的尼龙粒子放入 5 mL 异丁醇中加热至

80℃溶解，制成尼龙溶液；2) 取 0.1 mL 该尼龙溶液，滴入纯水中，水面上形成约 $1\mu\text{m}$ 厚的尼龙膜；3) 立刻轻轻抖动气溶胶颗粒样，使之均匀地散落在有粘性的尼龙膜上，约 5 min 后尼龙膜固化，气溶胶粒子就被固定在尼龙膜上；4) 用孔径 10 mm 的铝制样品架从水中捞起尼龙膜，靶样就制备好了。

采用该方法制样，气溶胶颗粒物快速、直接地被固定在尼龙膜上，避免了样品在有机溶液中长时间接触和机械搅拌，从而免除了气溶胶颗粒物的化学组分和元素分布在制样过程中可能被改变之虑。显微镜观察和 SNM 分析实验表明 (图 1)，散落法制成的靶样膜薄，颗粒物相互完全分离，颗粒物的密度合适，且颗粒物固定牢固，能经受束流的长时间轰击。

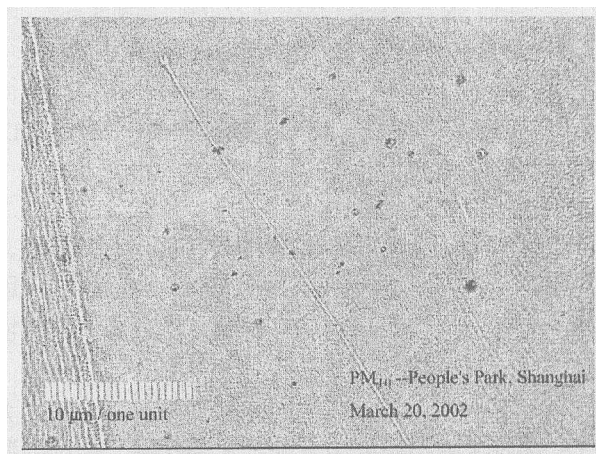


图 1 散落法制得的单个气溶胶粒子 SNM 靶样显微照片

Fig.1 A microscopic photo of single aerosol particles on the SNM target

1.2 SNM 分析的实验条件

单颗粒分析实验是在中国科学院上海原子核研究所的 SNM 装置上进行的。实验确定出的大气单颗粒 SNM 分析条件分述如下。

多站多参量数据采集与处理系统：为了能在一次分析中同时使用多种核分析技术，如质子激发的 X 射线分析 (PIXE)、卢瑟福背散射分析 (RBS) 和透射离子显微术 (STIM)，本工作采用了一套基于 SUN 工作站和 VME 计算机总线的多站多参量数据采集与处理系统 (图 2)。选用 SUN-S10 工作站为系统控制、数据处理、能谱和图形显示平台。其基本配置为 32 M 内存，2 G 硬盘和 8 mm 磁带机。运行开放式多用户多任务 UNIX 操作系统。采用 Motorola 公司的 VME 计算机传输总线，VME 计算机用于高速度、大数据量的数据缓存和实时预处理。它具有 16 M 内存空间、以太网接口、MVME147S

微处理器卡和 DR11WVME 总线接口。SUN-S10 与 VME 通过以太网进行数据通讯。快速数据获取箱 (FDAC) 用来采集来自不同探测器的能量信号 (E) 和束流扫描位置信号 (X, Y)。FDAC 由四个数据采集站组成, 并有一个 IMC (Interface Mast

Card) 接口。IMC 将各站采集的数据按事件方式 (每一组 E, X, Y 数据为一事件) 传给 VME 内存并接收来自 SUN-S10 的控制指令。数据从 FDAC 到 VME 计算机缓存区的最大传输带宽为 600—800 kbit/s。

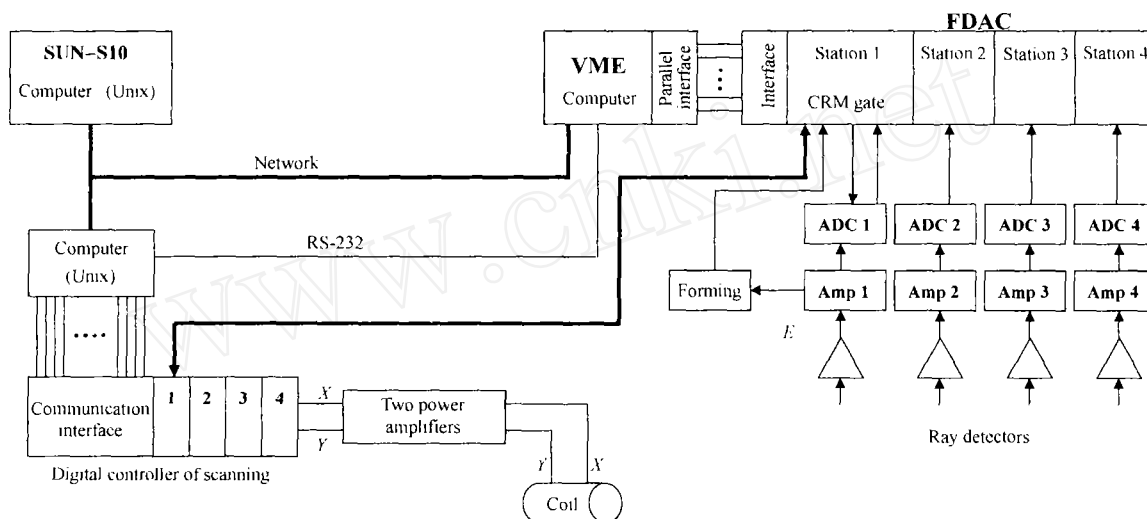


图2 SNM多站多参量数据获取系统

Fig.2 The system of data acquisition for SNM

束流条件: 4 MV 单端式静电加速器提供能量为 3 MV、初始流强为 $3.5 \mu\text{A}$ 的质子束流。初始束流经微束管道的物孔、光阑准直和限束, 再经四组合电磁四极透镜聚焦, 最终在气溶胶颗粒物表面上获得流强为 100—200 pA 的聚焦质子束。其束斑为 $5 \mu\text{m}$ 。用一法拉第筒监测透过靶样的束流积分。

探测条件: (a) Si (Li) 探测器安在靶样前方束流入射方向的 135° 角处, 用于 Micro-PIXE 分析, 其工作电压为 -1000 V , 对 ^{55}Fe 源 5.9 keV 的 X 射线的能量分辨率是 150 eV。主要测量单个气溶胶粒子中 Mg、Al、Si、S、P、Cl、K、Ca、Sc、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、Ge、As、Se、Br、Y、Rb、Sr、Mo、Cd、Zr 和 Pb 等元素; (b) Au (Si) 面垒探测器分别安在靶样前方束流入射方向的 170° 和靶样后方束流入射方向的 0° 角处, 用于 Micro-RBS 和 STIM 分析, 其工作电压 $+90 \text{ V}$, 对 ^{241}Am 的 5.486 MeV 的 α 粒子的能量分辨率为 12 keV。主要测定单个气溶胶粒子的粒径、形貌、分布, 以及 C、N、O 等轻的基体元素。

测量方式: (a) 定点测量方式: 让聚焦质子束流固定在一颗气溶胶粒子上进行轰击, 测量一个点上的 Micro-PIXE 谱和 Micro-RBS 谱。定点测量方式具有快速的优点, 能在几分钟至十几分钟内完成一颗气溶胶粒子的 Micro-PIXE 和 Micro-RBS 谱测

量。(b) 快速随机扫描方式: 让聚焦质子束在靶样的一个区域内作快速随机扫描, 获得一颗或多颗气溶胶粒子的元素分布图和面密度分布图。扫描方式是费时的。为获得一幅 $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ 的微量元素二维分布图, 常需 3—4 h 的测量时间。

本次工作中, 定点方式是提取单颗粒气溶胶元素特征谱的主要测量方式, 扫描方式仅用于少数颗粒中元素分布特征的研究。

2 单颗粒气溶胶元素特征谱的快速识别

如何根据 SNM 分析获得的单颗粒气溶胶元素谱数据判别颗粒物的来源, 是单颗粒指纹法研究的另一主要内容。目前国外大多采用的是谱数据定量分析结合多元数理统计的方法进行颗粒物源识别。然而, 大量单颗粒物的 SNM 谱数据定量计算和多元数理统计是非常费时和费事的。且很难实现数据处理的计算机自动化。此外, 常用的多元数理统计模型本身存在一些缺陷影响源解析结果的正确性^[3]。在我国, 沙因等^[11]人利用 SNM 元素二维分布图研究单颗粒气溶胶来源的方法, 这不失为一大胆尝试的方法。但测定单颗粒物 SNM 元素二维分布图同样是非常费时的。数据处理方法的这些不足将限制单颗粒指纹法的实际应用。

理想的识别方法应具有快速、自动、抗干扰性

好、源解析能力强和解析结果客观的特性。我们知道,某一样品的 Micro-PIXE 能谱的形状,即谱线的多寡、强弱与宽窄等,是一种非常有意义的模式信息。它蕴含着元素种类和浓度等信息。为此,本工作另辟蹊径,采用人工神经网络(ANN)技术直接对单个气溶胶粒子的 Micro-PIXE 能谱进行模式识别处理,判别其来源。采用这一识别方法具有两大优点。其一,直接对 Micro-PIXE 能谱进行模式识别,避开了谱数据定量计算和多元统计分析的繁琐,具

有快速识别大量单颗粒物元素指纹谱的能力。其二,与常用的多元统计方法相比,ANN 方法可处理复杂的非线性体系,对数据结构无任何条件限制。因此,源解析能力强、抗干扰性好、解析结果更客观。

人工神经网络是模拟生物神经系统结构进行信息传递与处理的计算机智能技术。本次工作采用标准的误差反向传输(BP)神经网络算法^[17],建立了 ANN 能谱模式识别系统 PATTERN(图 3)。该系统的参数与功能如下。

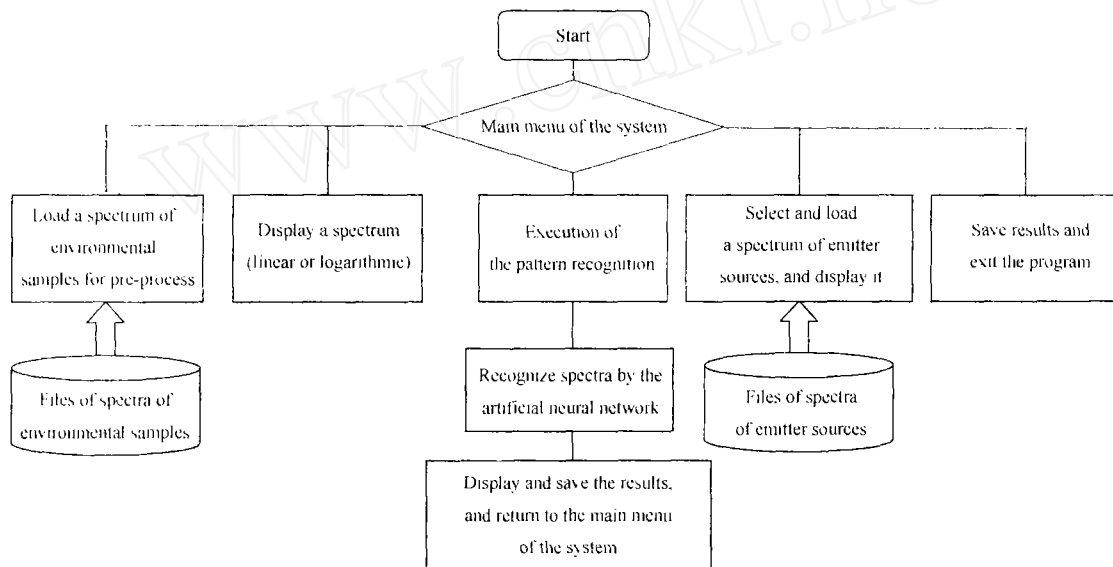


图 3 SNM 能谱人工神经网络模式识别系统 PATTERN 框图

Fig.3 The flow chart of the pattern recognition system PATTERN for SNM spectra

谱数据预处理:用 ANN 方法识别 SNM 分析的 Micro-PIXE 和 Micro-RBS 能谱目前国内外尚无先例。为了使系统获得好的识别效果,对用于训练和识别的能谱数据进行预处理:(1)将原始的 1024 道能谱压缩成 512 道,减少输入层神经元数目,同时不会丢失能谱信息,使网络训练加快;(2)谱数据作平滑处理,减少数据噪声,增强弱峰;(3)谱数据取对数,压制强峰,抬起弱峰,有利微量元素的谱峰识别;(4)谱数据标准化,用极差标准化使每道计数值在 0—1 之间。

系统的网络结构:大气气溶胶的源是多种多样的,而每一种源的单个气溶胶粒子又有多种亚类。显然,用一个网络来识别所有的大气单颗粒气溶胶是十分困难的,因为这样的网络很难训练成功。在 PATTERN 系统中采用建立网络库的方法克服这一困难。网络库中每一网络对应一种源。每一网络有三层神经元,即输入层,隐含层和输出层。输入层有 512 个神经单元,输出层为一个神经单元。隐含

层神经元数目由多次实验确定为 20。采用网络库方法使训练网络很容易。同时有利识别系统增添新的源网络,而无需对已有网络重新训练。

网络训练:BP 网络采用有教师的学习方式。训练样本包括教师信号和学生信号。当一个学生信号输入网络时,网络的希望输出是其对应的教师信号。训练某一源网络时,将属于该源的单颗粒气溶胶能谱和不属于该源的单颗粒气溶胶能谱(即干扰能谱)交替地输入网络训练。权重的修正用梯度下降法。用一组均匀分布于 -0.5 至 0.5 之间的随机数初始化网络权重。设置网络的训练误差为 0.09,当属于该源的单颗粒气溶胶能谱输入网络时,网络的输出值大于 0.7。当干扰能谱输入网络时,网络的输出值小于 0.3。实验确定的网络学习步长和惯性因子分别为 0.1 和 0.9。为了避免网络被训练过度(Overtrain)和产生过拟合(Overfit)现象,训练中认真选择有代表性的样本。网络库的源网络在几十分钟内就可训练成功。

源贡献率计算：由于采用了单颗粒识别，源贡献率的计算变得十分简单和直接。系统只需对识别的颗粒物按源得上归类计数，计算出的某源颗粒物数目占全部颗粒物总数目的百分比，就是某源的贡献率。

PATTERN 系统用 C++ 语言写成，在 Visual C++ 环境下编译，在 32 M 内存的 Pentium 166 MHz 微机上运行。PATTERN 有友好的 Windows 用户界面，可选择显示源能谱和未知能谱。上百个单颗粒气溶胶能谱在数分钟内识别完毕，给出气溶胶源识别及源贡献率的报告，大大缩短了数据处理时间。

3 单颗粒法的初步应用

大气气溶胶一直是城市空气污染的重点研究对象。随着对人类健康的日益重视，近年对城市大气可吸入颗粒物 (PM_{10} , $\leq 10\mu m$) 研究尤为重视^[18]。美国已于 1997 年提出了可吸入颗粒物的大气环境标准。上海是我国最大的工商业和金融城市，有人口一千二百万。也是目前世界空气污染严重城市之一。为了治理上海大气污染，首要任务是研究污染的来源。本次工作应用单颗粒法对上海市大气可吸入颗粒物源解析进行初步研究。

3.1 上海市大气单个 PM_{10} 的源特征

上海市大气颗粒物的主要排放源为土壤扬尘、建筑扬尘、汽车尾气、燃油烟尘、燃煤烟尘和冶金工业尘等^[19]。用 SNM 对六种源样的 PM_{10} 进行单颗粒分析。大气颗粒物排放源采样工作由上海市环境科学院大气研究所完成。

图 4 给出了不同排放源单个 PM_{10} 分析的典型 Micro-PIXE 能谱。可看出，不同源的单颗粒物的 Micro-PIXE 能谱在元素种类及其 X 射线强度方面都有明显不同。土壤扬尘的单颗粒物富含 K 元素，并有微量亲石元素 Rb 和 Sr。建筑扬尘（水泥）颗粒物富含 Ca、Fe，但其它种类元素较少。汽车尾气的单颗粒物以含毒性重金属元素 Pb 和卤素元素 Cl 和 Br 为特征。燃油烟尘的单颗粒物的特征则是有较高的 V、Ni 和 Cu。燃煤烟尘的单颗粒物元素种类相对多，有 S、K、Ca、Ti、Fe、Ni、Cu、Zn、Ga、As、Se、Br、Sr 和 Zr 等元素。其中 Ga、As 和 Se 是其它排放源颗粒物中未测到的元素。冶金工业尘的单颗粒物中富含金属元素 Cr、Fe 和 Ni，并有微量的 Pb 元素。

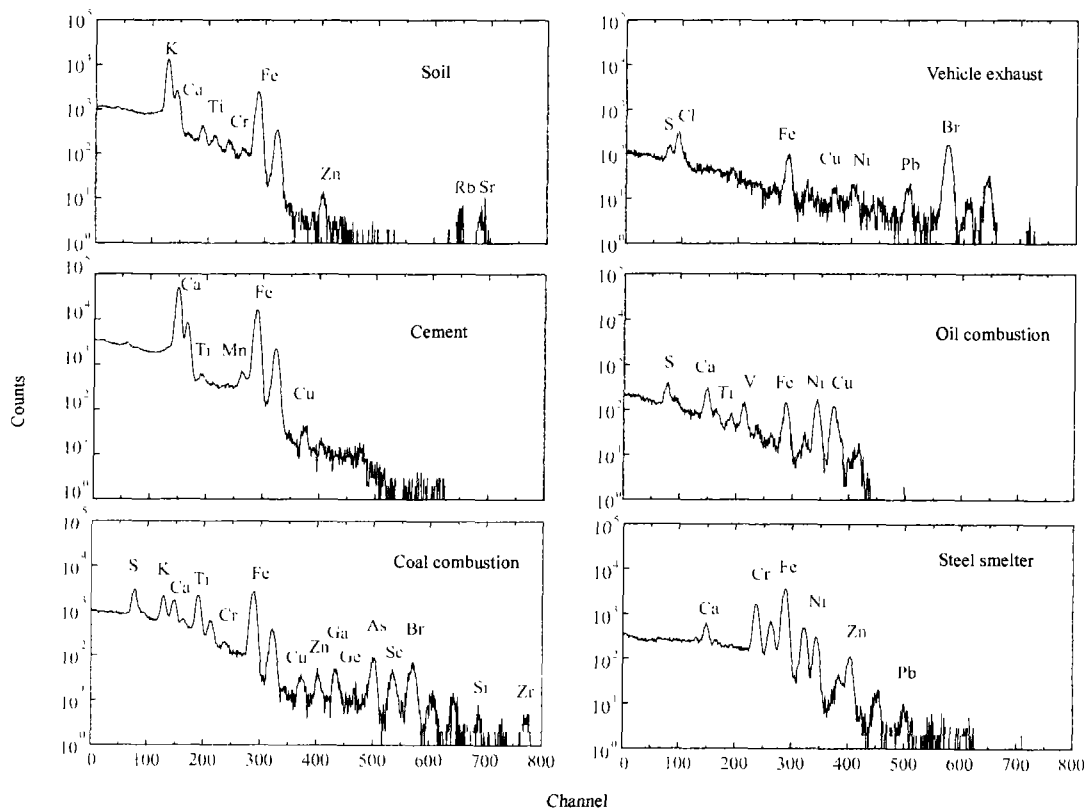


图 4 不同排放源中单颗粒 PM_{10} 的 Micro-PIXE 能谱

Fig.4 Micro-PIXE spectra of the single PM_{10} particles from different discharging sources

需要强调的是图 4 中列出的仅是各种排放源颗粒物的典型能谱。在一种排放源中大气颗粒物能谱有多种亚类型。各种排放源颗粒物 Micro-PIXE 能谱的源特征是 PM₁₀ 的“指纹”。因此,将各种排放源 PM₁₀ 的全部 Micro-PIXE 能谱放入识别系统 PATTERN 的源数据库,用于训练人工神经网络系统。

3.2 上海市大气 PM₁₀ 的源识别与解析

2000 年春季上海市环境科学院大气研究所对上海市区大气气溶胶进行了系统采样。本工作选择其中两观测点采样进行研究。两观测点分别位于市区中心人民公园内和市区北部交通枢纽共和新路立交桥旁。用 SNM 对样品的 PM₁₀ 进行单颗粒 Micro-PIXE 分析,将全部 PM₁₀ 颗粒物的 Micro-PIXE 能谱数据转入已训练好的 PATTERN 神经网络识别系统。该系统快速、自动地完成能谱的识别工作,给出 PM₁₀ 源识别与解析报告。

图 5 给出上海市大气 PM₁₀ 源识别与解析研究结果。同时,列出采用传统方法得到的上海市大气总悬浮颗粒物(TSP)污染源解析结果^[19],进行比较。从图 5 中可见,土壤和建筑扬尘是上海市大气 PM₁₀ 的最主要排放源,其对 PM₁₀ 的贡献率分别可高达 46.4% 和 36.7%。TSP 污染源解析也有同样结果。近年上海市一直在进行大规模城市区建设,土壤和建筑扬尘对 PM₁₀ 的高贡献率是与此密切相关的。

汽车尾气和燃煤烟尘是不可忽视的 PM₁₀ 排放源,其对 PM₁₀ 的贡献率可达 10% 以上。这与上海的能源结构直接相关。据统计,上海市近年煤和汽油的年消耗量分别在 3901.1 万吨和 100 万吨以上。汽车尾气排放和燃煤烟尘已成为可吸入大气颗粒物污染的重要排放源。我们注意到,在 TSP 污染源解

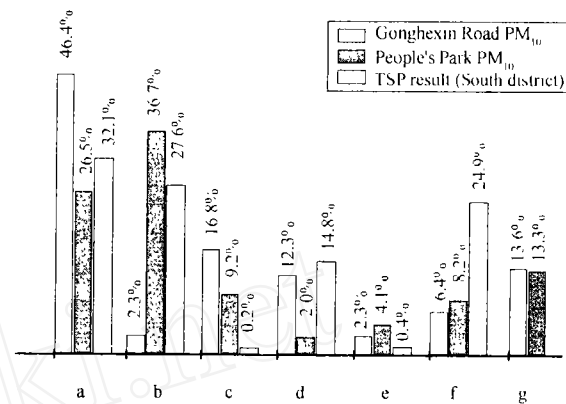


图 5 上海市大气 PM₁₀ 源识别与解析结果

(a)建筑扬尘(b)土壤扬尘(c)汽车尾气(d)燃煤烟尘
(e)燃油烟尘(f)钢铁烟尘(g)未识别

Fig.5 Origins of PM₁₀ particles in the atmosphere of Shanghai City

(a) Cement dust (b) Soil dust (c) Vehicle exhaust (d) Coal combustion dust (e) Oil combustion dust (f) Steel smelter dust (g) Unidentified

析结果中汽车尾气对大气颗粒污染的贡献率很低,在 0.2% 左右,几乎可忽略。这说明汽车尾气颗粒物粒度细小,更多地分布在小于 10 μm 的粒度范围。

基于大气单颗粒物分析的人工神经网络识别技术对查找未知污染源有良好的指示作用,本次工作查出约有 13% 的颗粒物不属于 PATTERN 识别系统中任何一已知排放源。这提示还存在一些未被认识的 PM₁₀ 排放源或排放源的亚类。用聚类分析对未知颗粒物进行分类,大致可分为 8 类(见表 1)。根据元素谱特征和已认识的排放源特征,对这些未知颗粒物的源作出一些推断。在今后研究中,应加强这些源的取样和分析工作。为了提高神经网络系统识别能力,建立完备的单颗粒指纹库是相当必要的。

表 1 未知 PM₁₀ 特征与源推测

Table 1 The character of unidentified PM₁₀ particles and the inference of discharging sources

分组 (颗粒物数目) Groups (number of particles)	元素谱特征 Character of elements		源推测 Inference of discharging sources
	主量元素 Major elements	微量元素 Trace elements	
No.1(9)	K	Fe	土壤扬尘亚类 Soil-dust-like
No.2(6)	Ca	Fe	建筑扬尘亚类 Cement-dust-like
No.3(8)	Ti,Fe		同上 Ditto
No.4(1)	K,Ba	Fe,Cu	?
No.5(1)	Fe,La	Cu,Zn	?
No.5(1)	S,Ca,Fe	Ti,Zn,Pb	钢铁工业烟尘亚类 Steel-smelter-like
No.6(1)	Cl,Ca,Cr,Fe,Zn	S,Ti	同上 Ditto
No.7(1)	S,Cl,Ca,Ti,Fe,Zn	Cr,Mn,Cu	同上 Ditto

在表1中有两颗未知颗粒物分别含有常量的Ba和La元素。在一般大气气溶胶中元素Ba和La是微量组分^[20]。这暗示存在某种富含Ba、La元素的低浓度大气颗粒物排放源。由此可见,单颗粒分析具有在大量颗粒物中检测极个别成分异常颗粒的能力。这对于识别与解析低浓度大气污染是十分重要的。

应当指出,上述对上海大气PM₁₀源识别与解析的研究是初步的。我们的目的仅是为了尝试一下单颗粒方法的应用效果。为了全面、深入研究上海大气PM₁₀,在今后研究中我们将分析更多采样点和不同季节的大气监测样品。同时应扩大源的取样和分析工作,建立完备的单颗粒指纹库。

4 结论

本次工作,将高分辨、高灵敏的扫描核探针技术与人工神经网络模式识别方法相结合,以单个大气颗粒物元素特征谱为基础,开展大气气溶胶源识别与解析的新方法研究,取得以下认识:

(1)扫描核探针技术可同时完成单个大气气溶胶粒子的10—20种元素分析,以及单颗粒物的粒度和形貌分析,是分析单个大气气溶胶颗粒物的强有力工具;

(2)人工神经网络模式识别方法可直接、快速地识别大量单颗粒的SNM能谱,易于实现计算机数据处理自动化,为大气污染源识别与解析提供一种新方法;

(3)单颗粒法初步用于上海市大气PM₁₀源识别与解析研究,结果表明该方法解析能力强,解析结果合理,并具有查找未知污染源、解析低浓度污染源的特点。

本文是单颗粒法研究中的部分工作,进一步深入的工作还在进行中。我们希望通过本项目的深入研究,能推动现代核分析方法与计算机智能技术在环境科学的应用,开展交叉研究,为我国大气污染防治提供新的微观实测数据和科学依据。

致谢 感谢上海市环境科学院大气研究所的陈明华工程师和杨晓燕高级工程师为本次研究工作提供了样品。

参考文献

- 刘静宜,等编著. 环境化学,北京:中国环境科学出版社,1987:188—192
LIU Jinyi, *et al.* Environment Chemistry. Beijing: China Environment Science Press, 1987: 188—192
- 唐孝炎主编. 大气环境化学,北京:高等教育出版社,1989:123—132
TANG Xiaoyan, ed. Atmosphere Environment Chemistry, Beijing: Higher Education Press, 1989: 123—132
- 汪安璞. 环境化学,1992,11(6):1—13
WANG Anpu. Environ Chem, 1992, 11(6): 1—13
- Grime G W. Analysis of Individual Environmental Particles Using MicroPIXE and Nuclear Microscopy. X-Ray Spectrometry, 1998, 27: 221—231
- 刘静宜. 环境化学若干研究动向,中国科学基金,1997,2:117—121
LIU Jinyi. Some study pulse of Environment Chemistry, Chinese Science fund, 1997, 2: 117—121
- 汪安璞. 环境化学,1999,18(1):10—15
WANG Anpu. Environ Chem, 1999, 18(1): 10—15
- Cohen D D, Bailey G M, Kondepudi R. Elemental Analysis by PIXE and Other IBA Techniques and Their Application to Source Fingerprinting of Fine Particle Pollution. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1996, B109/110: 218—226
- Swietlicki E, Krejci R. Source Characterization of the Central European Atmospheric Aerosol Using Multivariate Statistical Method. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1996, B109/110: 519—525
- Artaxo P, Rabello M L C. Nuclear microprobe analysis and source apportionment of individual atmospheric aerosol particles. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1993, B75: 521—525
- 汪安璞. 环境化学,1996,15(6):488—495
WANG Anpu. Environ Chem, 1996, 15(6): 488—495
- 沙因,石践,章佩群,等. 核技术,1996,19(4):229—232
SHA Yin, SHI Jian, ZHANG Peiqun, *et al.* Nucl Tech, 1996, 19(4): 229—232
- Caridi A, Cereda E, Crime E W, *et al.* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1993, B77: 524—529
- Orlic I, Osipowicz T, Watt F, *et al.* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1995, B104: 630—637
- Maenhaut W, Salomonovic R, Ptasiniski J, *et al.* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1997, B130: 576—581
- 沙因,石践,章佩群,等. 环境化学,1995,14(6):519—523
SHA Yin, SHI Jian, ZHANG Peiqun, *et al.* Environ Chem, 1995, 14(6): 519—523

- 16 Cereda E, Marcazzan G M B, Pedretti M, *et al.* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1995, **B104**: 625—629
- 17 程相君, 王春宁, 陈生潭. 神经网络原理及其应用, 北京, 国防工业出版社, 1995: 115—148
CHEN Xiangjun, WANG Chunng, CHEN Shengtan. The Principle and application of NN, Beijing: National Defense Industry Press, 1995: 115—148
- 18 张大年. 上海环境科学, 1999, **18**(4): 154—157
ZHANG Danian. Shanghai Environment Science, 1999, **18**(4): 154—157
- 19 陈明华, 陈静森, 李德. 上海环境科学, 1997, **16**(10): 15—17
CHEN Minghua, CHEN Jinsen, LI De. Shanghai Environment Science, 1997, **16**(10): 15—17
- 20 杨绍晋, 陈冰如, 杨亦男. 中子活化分析在大气环境研究中的应用. 中国科学院高能物理研究所中子活化分析实验室著, 中子活化分析在环境学、生物学和地学中的应用, 北京: 原子能出版社, 1992: 94—118
YANG Shaojin, CHEN Bingru, YANG Yinan. The application of NAA in Atmosphere Environment Study. In: NAA Lab of Insitutte of High Energy Physics, the Chinese Academy of Sciences, eds. The application of NAA in Environment, Biology and geology, Beijing: Atomic Energy Press. 1992: 94—118

The source identification and apportionment of aerosol particles in the atmosphere by scanning nuclear microprobes

LI Xiaolin ZHU Jieqing GUO Panlin WANG Jiqing LU Rongrong QIU Huiyuan LI Mingyao
JIANG Da WANG Yongqi ZHOU Tao LI Yan ZHANG Guiling

(Shanghai Institute of Applied physics, the Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

Abstract A new method combining the scanning nuclear microprobe (SNM) with the pattern recognition of artificial neural network (ANN) was studied for the source identification and apportionment of aerosol particles. A technique of preparing of single aerosol particle sample was developed. A multi-station and multi-parameter data system for SNM was set up. A ANN program package was used for the source identification and apportionment of aerosol particles based on the Micro-PIXE spectra. The new method was preliminarily applied to the PM₁₀ aerosol particles in the atmosphere of Shanghai city.

Key words Aerosol particle, Atmospheric particulate matter, Scanning nuclear microprobe, Artificial neural network, PM₁₀

CLC X830.1