

基于地统计条件模拟的土壤重金属污染范围预测方法研究*

谢云峰¹ 杜平¹ 曹云者¹ 柳晓娟¹ 陈同斌² 杜晓明¹ 李发生¹

(1. 中国环境科学研究院环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012;

2. 中国科学院地理科学与资源研究所环境修复中心, 北京 100101)

摘要 常用的空间插值模型在土壤污染范围预测时存在平滑效应, 导致高值区被平滑和低值区被高估, 在划定污染区范围时也往往忽视了插值结果存在的偏差。以某土壤重金属污染区域为例, 利用地统计条件模拟方法预测土壤中 Cu、Pb 的空间分布, 在多次模拟结果的基础上估算污染概率, 基于概率阈值确定污染区范围。研究表明, 地统计条件模拟方法获得的土壤 Cu、Pb 模拟结果统计特征与调查样点的统计特征基本一致, 且空间分布格局也相似。基于污染概率的污染区范围确定方法可以定量评估污染区范围预测的不确定性, 对提高土壤污染治理效果与科学制定环境管理决策具有重要意义。

关键词 土壤 重金属 条件模拟 序贯高斯模拟 污染概率

DOI:10.15985/j.cnki.1001-3865.2015.01.001

Estimating the area of heavy metal contaminated soil using geostatistical conditional simulation XIE Yunfeng¹, DU Ping¹, CAO Yunzhe¹, LIU Xiaojuan¹, CHEN Tongbin², DU Xiaoming¹, LI Fasheng¹. (1. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012; 2. Center for Environmental Remediation, Institute of Geographic Sciences and Natural Resources Research, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101)

Abstract: The smooth effects of widely used spatial interpolation methods will lead to underestimate the local high concentration area and to overestimate the local low concentration area. Moreover, the uncertainty of the contaminated areas produced by spatial interpolation methods was ignored. In this study, geostatistical conditional simulation was applied to map the spatial distribution of soil pollutants. The results indicated that geostatistical conditional simulation reproduced the statistical characteristics and variogram of soil investigation samples. The series of conditional simulation results were combined to calculate the probability of exceeding specified soil environmental standards. The probability map were used to delineate the area where more potential to contaminations and to explicitly assessment of uncertainty. The pollution probability based method can be very helpful in the soil pollution control and environmental management decision making.

Keywords: soil; heavy metals; conditional simulation; sequential gaussian simulation; pollution probability

了解土壤污染物的空间分布是修复污染场地及制定相关环境管理决策的基础, 但目前没有直接获取土壤污染物空间分布的技术和方法, 只有在调查样点的基础上通过数学模型运算才能获取研究区内污染物的空间分布。空间插值方法是土壤污染空间分布制图最常用的手段, 克里格插值方法是比较常用的空间插值模型^[1]。在土壤污染的研究中关注的重点是空间变化剧烈的区域^[2], 而克里格插值方法对数据进行平滑处理后会使得某些变化剧烈区域(甚至异常区)的重要信息丢失^[3]。为克服克里格插值方法的不足, 地统计条件模拟方法逐渐发展成熟。地统计条件模拟的结果具有与实测数据相同的频率

直方图, 且模拟结果与实测结果具有相同的空间自相关关系^[4]。本研究以某土壤重金属污染区为例, 利用地统计条件模拟方法进行土壤污染物空间分布预测, 基于污染概率确定污染区范围, 并将地统计条件模拟方法的预测结果与空间插值方法进行对比, 分析地统计条件模拟方法在土壤污染区范围预测方面的优势和不足, 以期对土壤污染调查与环境治理决策提供技术支持。

1 模拟方法

不同空间插值模型的理论基础不一样, 但本质上都是通过空间建模生成充分逼近要素空间分布特

第一作者: 谢云峰, 男, 1981 年生, 博士, 副研究员, 主要从事污染场地风险评价研究。

* 国家自然科学基金资助项目(No.41301229); 环保公益性行业科研专项(No.201409047)。

征的函数方程。插值的精度取决于对要素空间变异性与空间相关性的反映^[5]。克里格插值方法基于样点数据的半方差分析,强调数据结构的作用,不仅考虑调查样点对预测点的影响,而且考虑调查样点之间的相互影响^[6],因此,理论上克里格插值可以给出有限区域内区域化变量的最佳线性无偏估计量,目前克里格插值方法在地质学、生态学等领域得到广泛的应用^[7-9]。然而,克里格插值实质上是一种线性平滑低通滤波器,是对条件数学期望平均值的估计^[10]。克里格插值方法完成了对空间格局的认知,但不能再现空间结构,极值点都被平滑掉,使某些重要信息丢失^[11],且克里格插值方法不能保证条件化到统计量,其估值结果的直方图和协方差与原数据计算结果有很大偏差。

地统计条件模拟强调结果的整体相关性,它从整体上对区域变量空间分布提供了不确定性的度量,克服了克里格插值方法存在的种种缺陷。地统计条件模拟算法自产生以来,发展了很多新的理论和方法,并在石油、地质、环境、土壤等领域得到广泛的应用^[12-20],其发展方向也呈现出由估值理论向条件模拟研究转变的趋势。应用于土壤污染分布制图时,地统计条件模拟方法与克里格插值方法的思路完全不同,克里格插值方法获得的土壤污染物空间分布只有一个确定性的结果,污染范围的确定直接根据相关标准划定即可,地统计条件模拟方法是基于概率分布的思路,该方法可同时获得多个模拟结果,确定污染区范围时,只能通过超过相关标准的概率阈值来定。

地统计条件模拟的算法较多,本研究主要采用序贯高斯模拟(SGS)方法,该方法是贝叶斯理论的一个应用,根据现有数据计算待模拟点值的条件概率分布,从该分布中随机取值作为模拟现实。每得出一个模拟值,就把它连同原始数据、此前得到的模拟数据一起作为条件数据进入下一点的模拟,因此随着模拟的进行,条件数据集不断扩大。由于算法简单、灵活、计算方便,SGS方法是最常用的算法之一^[21-22]。

2 样品采集与数据处理

2.1 样品采集与分析

研究区位于北京市通州区中部,面积约 605 km²,主要土壤类型为褐潮土、砂姜潮土,农业种植以玉米和小麦为主。自 20 世纪 60 年代起,当地大

部分农田利用生活污水进行灌溉。根据研究区域的特点,采用均匀布点采样的原则在整个研究区域内共采集土壤样品 137 个,取样深度 0~20 cm。土样经室内风干过 100 目尼龙网筛。土壤样品采用美国环境保护署(USEPA)推荐的 3050B 方法消煮,消煮液过滤后,定容至 100 mL。由于本研究侧重于方法学探讨,因此仅选择土壤中 Cu 和 Pb 两种污染物开展相关研究,采用火焰-原子吸收光谱仪测定 Cu、Pb 含量;分析过程所用试剂均为优级纯,所用的水均为亚沸水,分析过程均加入国家标准土壤参比物质(GSS-1)进行分析质量控制,分析样品的重复数为 10%~15%^[23]。

2.2 数据处理方法

数据统计分析使用 R 软件,半变异函数拟合采用 GS+7.0 软件,序贯高斯模拟采用 GSLIB 软件,空间分布制图使用 ESRI ArcGIS 9.0 软件。为了与插值方法进行比较,利用普通克里格插值方法和指示克里格插值方法进行土壤重金属污染分布制图。地统计条件模拟过程中,将研究区域按照 50 m×50 m 的大小划分网格,网格中心点位置作为模拟预测点位,整个研究区域共 30 967 个网格,模拟次数为 1 000 次。

3 结果与讨论

3.1 地统计条件模拟结果的统计特征

随机选取 6 个地统计条件模拟结果进行统计分析,分析结果见表 1。由表 1 可见,地统计条件模拟结果与样点统计结果非常接近,Cu 模拟结果平均值在 22.41~23.79 mg/kg,误差(相对于样点统计值,下同)不大于 1.09 mg/kg,模拟结果的标准差略高于样点统计值,误差不大于 0.7 mg/kg;四分位数的统计结果表明,第一分位值 Q1 的误差相对较小,低于 0.7 mg/kg;中值和第三分位值 Q3 误差分别在 0.61~2.02、0.32~2.19 mg/kg;模拟结果最大值均在 53 mg/kg 以上,比样点统计最大值高 11.28~15.70 mg/kg;模拟结果最小值在 0.02 mg/kg 左右,比样点统计最小值低约 8.2 mg/kg。Pb 模拟结果平均值在 27.27~28.20 mg/kg,误差小于 0.5 mg/kg;模拟结果的标准差在 5.02~5.71 mg/kg,误差在 0.6 mg/kg 以内;模拟结果第一分位值 Q1、中值和第三分位值 Q3 的误差均小于 1 mg/kg。Pb 模拟结果最大值在 48.68~58.78 mg/kg,比样点统计最大值高 7.18~17.28 mg/kg;模拟结果最小值在 0.60~6.71

表 1 土壤中 Cu、Pb 地统计条件模拟结果的统计特征
Table 1 Descriptive statistics of geostatistical conditional simulated soil Cu and Pb concentration

重金属	项目	平均值 /(mg·kg ⁻¹)	标准差 /(mg·kg ⁻¹)	变异系数 /%	最大值 /(mg·kg ⁻¹)	第三分位数 Q3 /(mg·kg ⁻¹)	中值 /(mg·kg ⁻¹)	第一分位数 Q1 /(mg·kg ⁻¹)	最小值 /(mg·kg ⁻¹)
Cu	样点统计值	22.70	6.47	28.50	42.11	26.76	21.77	18.25	8.22
	结果 1	22.72	7.05	31.04	55.47	27.54	22.75	17.92	0.01
	结果 2	22.57	6.77	30.00	57.81	27.15	22.54	17.96	0.02
	结果 3	23.59	7.17	32.27	54.32	28.95	23.62	18.28	0.01
	结果 4	23.27	6.90	29.66	53.39	27.96	23.22	18.55	0.03
	结果 5	23.79	7.15	30.06	54.79	28.69	23.79	18.91	0.02
	结果 6	22.41	6.91	30.83	55.22	27.08	22.38	17.70	0.03
Pb	样点统计值	27.75	5.18	18.68	41.50	31.63	27.51	24.37	12.54
	结果 1	27.43	5.29	19.29	48.68	31.08	27.59	23.99	1.26
	结果 2	27.27	5.02	18.40	51.84	30.73	27.26	23.84	6.71
	结果 3	27.97	5.47	19.56	53.68	31.69	27.97	24.23	4.59
	结果 4	27.33	5.50	20.10	49.84	31.11	27.47	23.69	0.60
	结果 5	28.09	5.71	20.31	58.78	31.72	27.96	24.22	5.29
	结果 6	28.20	5.14	18.24	52.96	31.60	28.17	24.76	6.06

mg/kg,比样点统计最小值低 5.83~11.94 mg/kg。总体来看,模拟结果再现了样点数据的统计特征,且没有插值方法的平滑效应,样点的标准差和变异系数没有被降低。

3.2 地统计条件模拟的土壤 Cu 和 Pb 空间分布

仅通过 1 次条件模拟实现的结果在空间上存在较大不确定性,因此,利用多次模拟实现的期望值表示重金属的空间分布。基于地统计条件模拟和普通克里格插值的土壤 Cu、Pb 空间分布见图 1。由图 1 可见,地统计条件模拟的 Cu、Pb 空间分布与普通克里格插值结果相似,普通克里格插值模拟结果相对平滑,地统计条件模拟因加入了随机因素,在空间上存在波动。从地统计条件模拟的方差分布(见图 1(e)、图 1(f))可知,在样点较稀疏和研究区边缘区域方差较大。总体来看,Cu 含量在研究区域西北部相对较高,东南部较低。Pb 在西部和中部区域有两个相对较高的区域,在东南部较低。

3.3 土壤中 Cu、Pb 的污染概率

不同模拟结果显示了土壤重金属空间分布的随机性,单次模拟结果的污染区在空间上分布差异较大,因此仅基于一次模拟结果评估土壤重金属污染会存在较大的偏差。地统计条件模拟的优点是通过多次(≥ 1000 次)的重复模拟,再现土壤重金属空间分布的波动性,基于多次模拟结果,评估土壤重金属空间分布的不确定性。进行土壤重金属污染评价时,需要采用污染概率的方法,即基于多次模拟获取的单点含量分布特征,估算超过

污染阈值的概率 P 。

$$P = n(x')/N$$

式中: $n(x')$ 为模拟值大于污染阈值的个数,个; N 为模拟次数,次。

基于地统计条件模拟和指示克里格插值的土壤 Cu、Pb 污染区域划分结果见图 2。地统计条件模拟结果显示,研究区西部 Cu 污染概率较高,研究区西部和中部 Pb 污染概率较高。Cu、Pb 的污染概率总体相对较低,这可能与研究区的污染区域较小,污染样点较少有关。地统计条件模拟结果与指示克里格插值的结果相似,但指示克里格插值的结果高估了污染样点周边的清洁样点。

3.4 污染概率阈值的确定

污染概率阈值的选择对污染区面积估算有显著的影响,污染概率阈值设置过大,可能会把原本污染区域错认为清洁区域,而概率阈值太小,可能将清洁区域错认为污染区域。污染区域错定为清洁区域将低估土壤重金属污染的风险,清洁区错定为污染区则会夸大污染风险,进而增加土壤污染修复成本。从土壤环境健康角度来看,低估污染的损失要大于高估污染。为了辅助污染阈值选择,GOOVAERTS 等^[24]提出了损失函数法,通过估算经济损失的方式来确定最佳阈值,通过比较不同污染概率下的污染评价错误导致的经济损失,确定最佳的阈值。损失函数是用于评估某一区域错划分为安全或污染区所产生的总损失,该方法在计算过程中需要知道污染区被错估为清洁

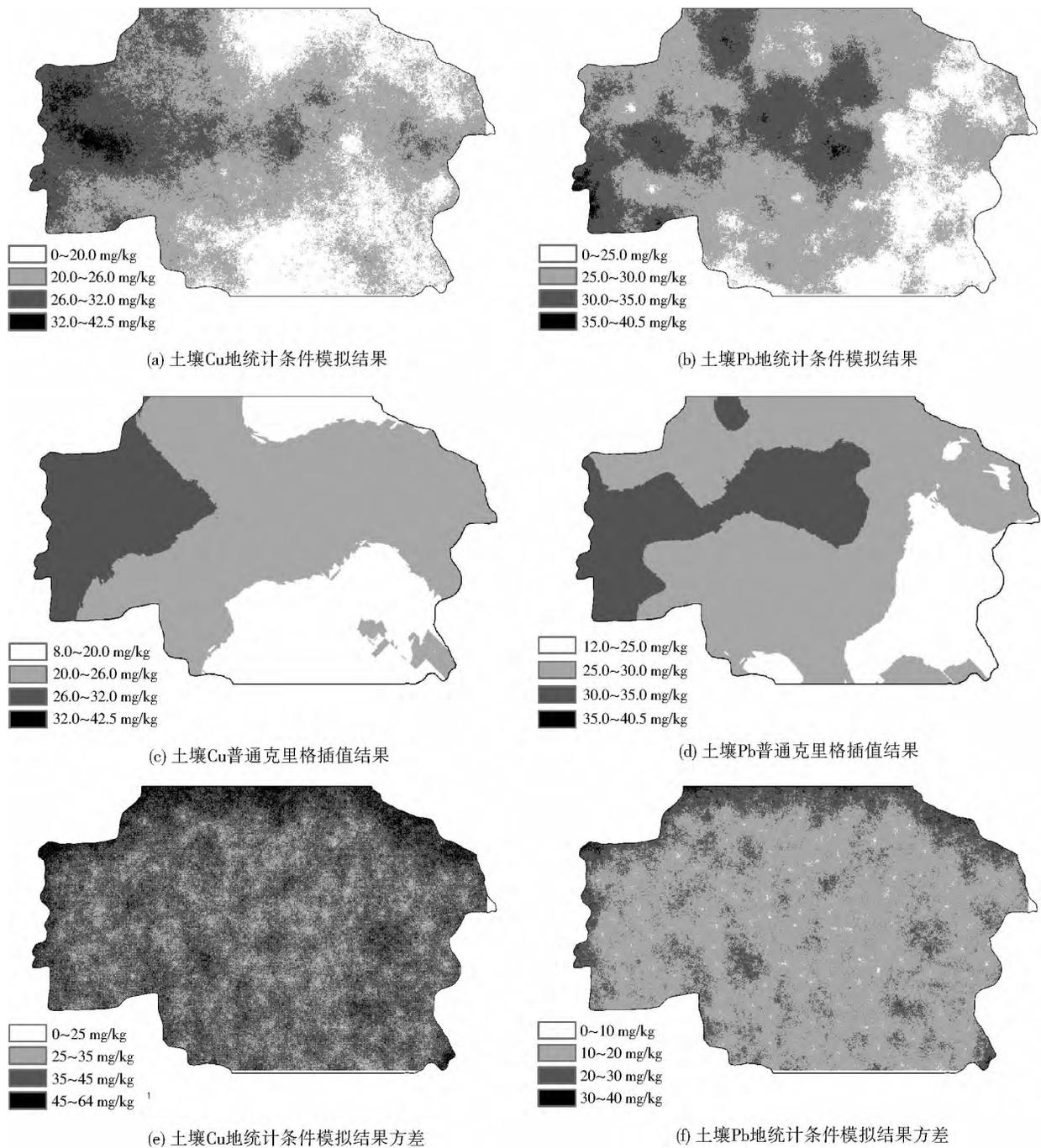


图 1 基于地统计条件模拟和普通克里格插值的土壤 Cu 和 Pb 空间分布

Fig.1 The spatial distribution map of soil Cu and Pb produced by geostatistical conditional simulation and ordinary kriging. 区域导致的健康损失以及清洁区被错估为污染区产生的经济损失,由于增加修复成本产生的经济损失相对容易估算,而污染的健康损失估算非常困难,限制了该估算方法的应用^[25]。

基于污染阈值概率进行的污染区划分属于统计学思路,该思路与目前常用的确定性插值方法如反距离加权和克里格插值方法等存在明显不同。确定性插值方法给每个待评价网格确定性值,直接与污染阈值比较判定是否污染。插值方法的误差不可避

免,但应用插值结果时往往忽略误差部分,这可能导致决策的偏差。地统计条件模拟方法给出每个待评价网格土壤污染物的统计分布特征,在此基础上估计待评价网格超过污染阈值的概率。基于统计学概率的思路确定污染区范围可以估计污染区范围划定的不确定性,进而预估土壤污染治理修复工程量面临的不确定性,制定更好的土壤修复方案。某种程度上,基于概率阈值方法进行环境决策时比确定性插值方法困难,因为概率阈值方法直接让决策者面

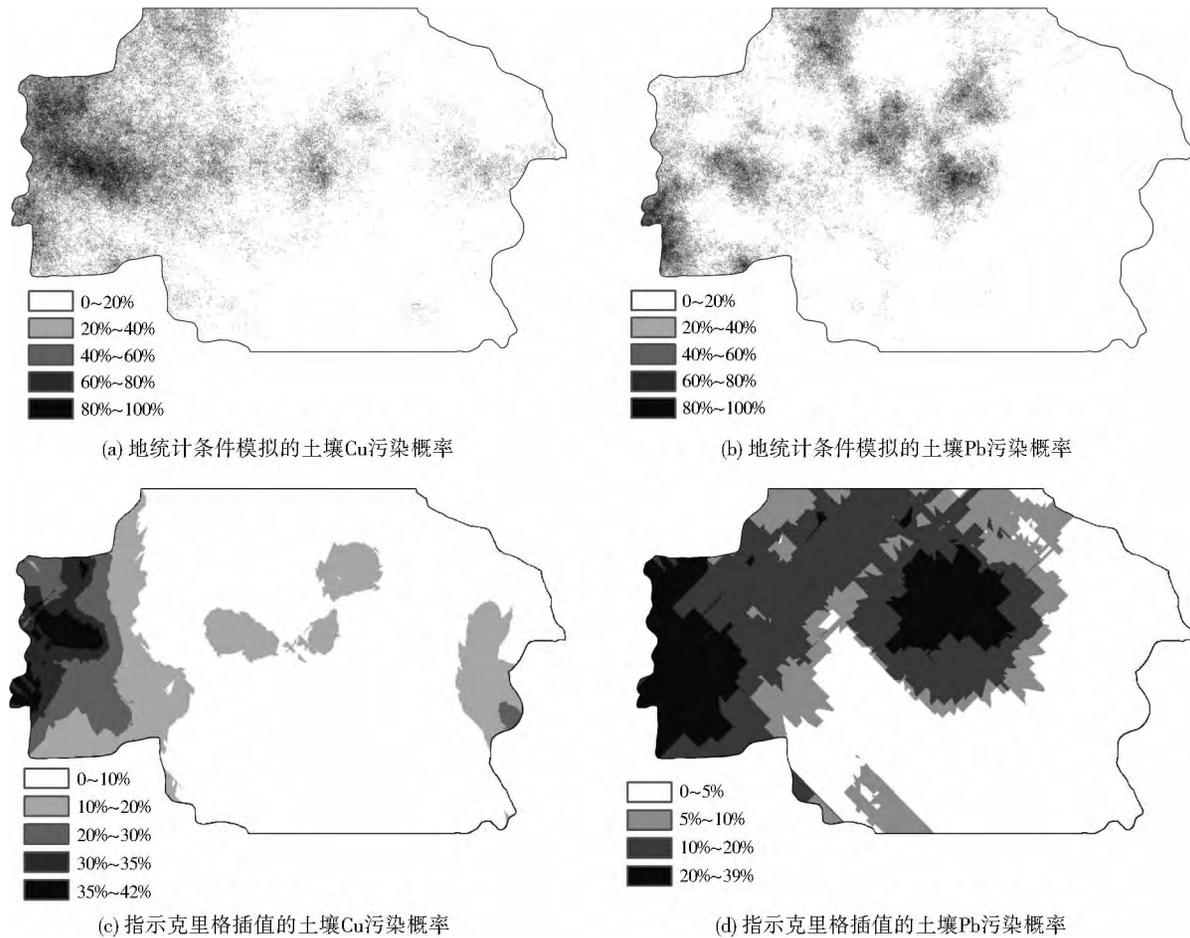


图2 基于地统计条件模拟和指示克里格插值的土壤 Cu 和 Pb 的污染概率分布
Fig.2 The probability map of soil Cu and Pb contamination predicted by geostatistical conditional simulation and indicator kriging

对于模拟结果的不确定性,在进行决策时更加谨慎。概率阈值可以综合考虑研究区域土地利用的信息、污染来源及释放特征、污染物性质及环境行为、污染物风险水平等,未来应在这些方面开展相关研究工作,实践中,对不确定性较大区域,也可以通过适当增加调查样点,提高污染区范围估计精度。

4 结论

(1) 基于地统计条件模拟方法获得了研究区土壤中重金属 Cu、Pb 的统计特征,模拟结果与调查样点的统计特征基本一致。研究区土壤中 Cu、Pb 的地统计条件模拟结果空间分布格局与克里格插值方法的模拟结果相似,但地统计条件模拟方法消除了克里格插值法的平滑效应。

(2) 应用地统计条件模拟方法时,单次模拟结果在空间上存在一定波动性,必须通过大量模拟现实,基于统计特征确定污染概率,通过确定污染阈值估计研究区内污染区面积。基于污染概率的污染区

面积估计可以对修复决策的不确定性进行评估,为修复工程规划设计提供参考。

参考文献:

- [1] XIE Y, CHEN T B, LEI M, et al. Spatial distribution of soil heavy metal pollution estimated by different interpolation methods: accuracy and uncertainty analysis[J]. Chemosphere, 2011, 82(3): 468-476.
- [2] 史舟, 李艳, 程街亮. 水稻土重金属空间分布的随机模拟和不确定评价[J]. 环境科学, 2007, 28(1): 209-214.
- [3] 谢云峰, 陈同斌, 雷梅, 等. 空间插值模型对土壤 Cd 污染评价结果的影响[J]. 环境科学学报, 2010, 30(4): 847-854.
- [4] 王学军. 应用转向带法进行土壤铜和铅含量的条件模拟[J]. 应用生态学报, 2002, 13(12): 1667-1670.
- [5] 朱会义, 刘述林, 贾绍凤. 自然地理要素空间插值的几个问题[J]. 地理研究, 2004, 23(4): 425-432.
- [6] 张团峰, 王家华. 试论克里金估计与随机模拟的本质区别[J]. 西安石油学院学报: 自然科学版, 1997, 12(2): 52-55.
- [7] GOOVAERTS P. Geostatistical modelling of uncertainty in soil science[J]. Geoderma, 2001, 103(1/2): 3-26.
- [8] LU A, WANG J, QIN X, et al. Multivariate and geostatistical analyses of the spatial distribution and origin of heavy metals

in the agricultural soils in Shunyi, Beijing, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 425: 66-74.

[9] LV J, LIU Y, ZHANG Z, et al. Multivariate geostatistical analyses of heavy metals in soils: spatial multi-scale variations in Wulian, Eastern China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2014, 107: 140-147.

[10] ORTIZ B V, PERRY C, GOOVAERTS P, et al. Geostatistical modeling of the spatial variability and risk areas of southern root-knot nematodes in relation to soil properties [J]. *Geoderma*, 2010, 156(3/4): 243-252.

[11] 孙英君, 王劲峰, 柏延臣. 地统计学方法进展研究 [J]. *地球科学进展*, 2004, 19(2): 268-274.

[12] 戴明新, 赵玉杰, 白志鹏, 等. 序贯高斯法模拟新沂东海农业区土壤空间变异性 [J]. *中国环境科学*, 2007, 27(2): 221-225.

[13] 赵永存, 孙维侠, 黄标, 等. 不同随机模拟方法定量土壤镉含量预测的不确定性研究 [J]. *农业环境科学学报*, 2008, 27(1): 139-146.

[14] 李艳, 史舟, 李洪义, 等. 滨海盐土盐分空间分布的条件模拟和不确定性研究 [J]. *土壤通报*, 2008, 39(1): 9-15.

[15] ZANOLIN A, DE FOUQUET C, GRANIER J, et al. Geostatistical simulation of the spatial variability of an irrigated maize farm plot [J]. *Comptes Rendus Geosciences*, 2007, 339(6): 430-440.

[16] FRANCO C, SOARES A, DELGADO J. Geostatistical modeling of heavy metal contamination in the topsoil of Guadiamar River Margins (Spain) using a stochastic simulation technique [J]. *Geoderma*, 2006, 136(3/4): 852-864.

[17] JUANG K W, CHEN Y S, LEE D. Using sequential indicator simulation to assess the uncertainty of delineating heavy-metal contaminated soils [J]. *Environmental Pollution*, 2004, 127(2): 229-238.

[18] 许尔琪, 张红旗. 伊犁新垦区土壤有机质的克里金插值和条件模拟多尺度分析 [J]. *土壤*, 2013, 45(1): 91-98.

[19] GOOVAERTS P, TRINH H T, DEMOND A, et al. Geostatistical modeling of the spatial distribution of soil dioxins in the vicinity of an incinerator. 1. Theory and application to Midland, Michigan [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(10): 3648-3654.

[20] GOOVAERTS P, TRINH H T, DEMOND A H, et al. Geostatistical modeling of the spatial distribution of soil dioxin in the vicinity of an incinerator. 2. Verification and calibration study [J]. *Environmental Science & Technology*, 2008, 42(10): 3655-3661.

[21] JOURNEL A, DEUTSCH C. *Gslib geostatistical software library and users guide* [M]. New York: Oxford University Press, 1998.

[22] DEUTSCH C V. *Geostatistical reservoir modeling* [M]. New York: Oxford University Press, 2002.

[23] ZHENG Y M, CHEN T B, HE J Z. Multivariate geostatistical analysis of heavy metals in topsoils from Beijing, China [J]. *Journal of Soils and Sediments*, 2008, 8(1): 51-58.

[24] GOOVAERTS P, WEBSTER R, DUBOIS J P. Assessing the risk of soil contamination in the Swiss Jura using indicator geostatistics [J]. *Environmental and Ecological Statistics*, 1997, 4(1): 31-48.

[25] CATTLE J A, MCBRATNEY A B, MINASNY B. Kriging method evaluation for assessing the spatial distribution of urban soil lead contamination [J]. *Journal of Environmental Quality*, 2002, 31(5): 1576-1588.

编辑: 丁 怀 (修改稿收到日期: 2014-12-10)

大气污染防治法 27 年首次全面修订

2014 年 11 月 22 日, 十二届全国人大常委会第十二次会议开始审议大气污染防治法修订草案, 这是该法自 1987 年施行至今的首次全面修订。据悉, 草案共八章一百条, 对既有条款进行了大规模地增删、调序、重新组织, 其中重点区域大气污染联合防治一章为完全新增的内容。草案依据新修订的环境保护法, 强化了政府、企业和公众责任, 补充完善了重点领域污染防治、区域联防联控、总量控制和实施排污许可等制度和措施, 加大了对违法行为的处罚力度, 对公众关心的雾霾治理等问题作出回应。

于 2015 年 1 月 1 日起正式施行的新环保法, 首次将环保任务纳入本级政府及负责人的考核内容, 与此相对应, 本次大气污染防治法修订也建立了大气环境保护目标责任制和考核评价制度。草案规定, 县级以上人民政府应当将大气环境保护目标任务完成情况纳入对本级人民政府负有大气环境保护监督管理职责的部门及其负责人和下级人民政府及其负责人的考核内容, 作为对其考核评价的重要依据。考核结果应当向社会公开。根据草案, 未来全国每个省、自治区、直辖市都将被分配各自的重点大气污染物排放总量控制目标, 由国务院环境保护主管部门制定, 并逐层分解落实至排污单位。在此基础上, 国家将逐步推行重点大气污染物排污权的有偿使用和交易。

草案明确规定了排污许可证制度。根据草案, 必须取得排污许可证的单位有: 排放工业废气或大气污染防治法第五十四条规定名录中所列有毒有害大气污染物的企业事业单位, 集中供热设施的燃煤热源生产运营单位, 其他按照规定应当取得排污许可证的单位。草案规定, 排污许可的具体办法和实施步骤由国务院规定。此次修法十分关注重点领域大气污染防治。在燃煤、工业方面, 明确国家采取措施逐步降低煤炭消费比重, 细化对多种污染物的协同控制措施; 在机动车方面, 强化对新生产机动车、在用机动车、油品质量环保达标的监督管理。

企业和个人违法成本低, 是大气污染环境治理“久治不愈”的原因之一。对此, 草案强化了责任方的法律责任。对无证、超标、超总量、监测数据作假等污染违法行为, 草案规定了没收违法产品和违法所得、处以罚款、责令停产整治、行政拘留以及责令停业、关闭等行政处罚, 对受到罚款处罚拒不改正的实行按日计罚。草案对公民个人的法律责任也作出规定。根据草案, 违反大气污染防治法规定, 在人口集中地区、机场周围、交通干线附近以及当地人民政府划定的区域内露天焚烧秸秆、落叶等产生烟尘污染等物质的, 以及在城市人民政府禁止的时段和区域内燃放烟花爆竹的, 处 200 元以上 2 000 元以下的罚款。此外, 草案还取消了现行法中 50 万元的处罚上限, 代以倍数类惩罚标准。如造成一般或者较大大气污染事故的, 按所造成直接损失的 1 倍以上 3 倍以下计算罚款, 造成重大或特大大气污染事故的, 按直接损失 3 倍以上 5 倍以下计算罚款。

(摘自《中国环保网》2014-12-23)