

# 大气汞污染模拟研究进展及控制策略优化方法

朱云<sup>1,2</sup>, 王书肖<sup>1</sup>, Che-Jen Lin<sup>2,3</sup>, 郝吉明<sup>1</sup>, Carey Jang<sup>4</sup>, 王龙<sup>1</sup>

(1. 清华大学环境科学与工程系, 北京 100084; 2. 华南理工大学环境科学与工程学院, 广州 510006; 3. Department of Civil Engineering, Lamar University, Beaumont, TX 77710-0024, USA; 4. USEPA/Office of Air Quality Planning & Standards, RTP, NC 27711, USA)

**摘要:**简评了国内外大气汞污染模拟相关研究情况, 指出目前我国大气汞排放模拟及污染控制研究工作非常缺乏, 严重影响了我 国汞污染控制策略制定以及“汞环境外交纠纷”的积极应对; 并据此建议应该对我国大气汞污染模拟及控制策略优化进行系统研究, 其研究内容包括: 汞排放清单的建立、大气汞的长程输送、响应面模型软件(response surface modeling-Hg, RSM-Hg)的研发、汞污染控制策略优化 4 个方面. 阐述了基于“RSM-Hg”的“汞污染控制策略优化”研究方法及流程, 并提出 RSM-Hg 的研发重点是可控源排放-汞污染水平响应表面模型(RSM)建模. “中国大气汞污染模拟及控制策略优化”研究工作的开展, 将有利于加深对汞科学及我国汞污染的现状和时空分布特征的理解, 并将奠定多行业汞污染排放协同控制优化的科学基础.

**关键词:**汞污染; 大气汞模型; 响应面模型; 控制策略优化; 汞响应面模型软件

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2011)06-1851-06

## Development and Optimization of Mercury Emission Control Strategies Using Advanced Modeling Approaches

ZHU Yun<sup>1,2</sup>, WANG Shu-xiao<sup>1</sup>, Che-Jen Lin<sup>2,3</sup>, HAO Ji-ming<sup>1</sup>, Carey Jang<sup>4</sup>, WANG Long<sup>1</sup>

(1. Department of Environmental Science and Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China; 2. College of Environmental Science & Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510006, China; 3. Department of Civil Engineering, Lamar University, Beaumont, TX 77710-0024, USA; 4. USEPA/Office of Air Quality Planning & Standards, RTP, NC 27711, USA)

**Abstract:** Atmospheric mercury models are an ideal assessment tool that can be used to simulate the emissions, transformation, deposition, and the trans-boundary transport of mercury. Researches related to the atmospheric mercury modeling were reviewed. It is found that research in the modeling of mercury transport and its control are insufficient in China, which would undermines the formulation of mercury pollution control policy and the resolution of environmental disputes for mercury. It is suggested that more research in atmospheric mercury modeling and its emission control policy should be systematically carried out in China. The research context should include mercury emission estimate, long-range transport, response surface modeling-Hg (RSM-Hg) development, and emission control strategy optimization. The approaches of optimizing emission control strategies were discussed. The process of building the Response Surface Model between mercury emission and atmospheric mercury pollution was illustrated. The research of mercury emission control strategies will be aimed to improving our understanding in mercury fate and transport as well as the state of mercury pollution, and to providing the scientific basis for mercury emission control in China.

**Key words:** mercury pollution; atmospheric mercury model; response surface modeling (RSM); control policy optimization; response surface modeling Hg (RSM-Hg)

美国环保署(USEPA)和世界卫生组织(WHO)均将汞列为具有持久性、生物蓄积性及毒性极高的全球性污染物. 20 世纪 80 年代末和 90 年代, 科学家在没有人造和自然汞污染来源的北欧和北美偏远地区的大片湖泊中发现鱼体高甲基汞(MeHg)负荷<sup>[1]</sup>, 并证实人为排放的汞通过大气长距离迁移后的沉降是产生这一汞污染的主要原因, 从此, 在西方发达国家兴起了一轮大气汞污染研究热潮<sup>[2]</sup>. 大气中的汞主要以 3 种形式存在: 气态单质汞(GEM)、活性气态汞(RGM)和颗粒态汞(PHg). GEM 在大气中的停留时间长达  $0.5 \sim 2 \text{ a}$ <sup>[3]</sup>, 可以进行远距离传

输. RGM 和 PHg 在大气中停留时间比较短, 容易通过干湿沉降返回到地面<sup>[3-5]</sup>. 据美国环保署估算大约有 50% ~ 70% 的人为汞排放来源于化石燃料的燃烧, 其中 50% 以上来自中国、印度及其它亚洲国家<sup>[6,7]</sup>. 中纬度地区的极地西风带可以将东亚地区的汞输送到北美, 并在不同地区沉降, 从而加重了北

收稿日期: 2010-06-21; 修订日期: 2010-08-19

基金项目: 国家自然科学基金重点项目(20937002); 中美合作项目(OR13810-001.04); 2009 年教育部青年骨干教师国内访问学者计划项目

作者简介: 朱云(1972~), 男, 博士, 副教授, 主要研究方向为环境模拟与信息系统, E-mail: zhuyun@scut.edu.cn

美的汞污染<sup>[6,8]</sup>.

大气汞污染模型是动态描述上述汞污染状况、汞沉降及跨界传输的主要技术手段. 借助先进的模型模拟及其数值后处理技术, 人们将可以清楚地知道区域汞污染状况、存在汞污染问题的热点地区以及进行汞污染控制策略优化. 本文基于对国内外大气汞污染模型研究进展及我国的实用需求分析, 建议对我大气汞污染模拟及控制策略优化进行系统地研究, 并指出了主要研究内容及技术关键.

1 大气汞污染模型及其应用介绍

现有的大气汞污染模型可以分为全球尺度和区域尺度两大类, 分别适用于不同目标范围的大气汞污染状况模拟. CTM-Hg<sup>[9]</sup>、DEHM<sup>[10]</sup>、GRAHM<sup>[11]</sup>、MSCE-HM<sup>[12]</sup>和 GEOS-Chem<sup>[13]</sup>是自洽封闭边界的全球尺度大气汞污染模型, 这些模型由全球汞排放

驱动并受测量数据约束. 区域尺度的大气汞模型按其建模体系可细分为 3 类: 扩散类<sup>[14]</sup>、拉格朗日类<sup>[15]</sup>和欧拉类<sup>[16~20]</sup>, 目前应用较多的是欧拉类的区域大气汞模型, 尤以 USEPA 推荐的 CMAQ-Hg<sup>[18]</sup>应用较为广泛. 区域汞模型的初始条件 (initial conditions, IC) 和边界条件 (boundary conditions, BC) 通常由全球汞模型提供, 因此, 二类模型经常根据不同的应用目的结合使用. 例如: Pongprueksa 等<sup>[21]</sup>使用 CMAQ-Hg 模拟北美大气汞污染状况时就采用了 GEOS-Chem 提供的 IC、BC 数据, 而且他们发现 BC 中的汞浓度对区域模型的输出有很大影响.

CMAQ 是 USEPA 为仿真分析各种复杂大气物理、化学过程而开发的数学模型. 在 4.5 版本之后的 CMAQ 均提供了大气汞污染模拟的支持, 被简称为 CMAQ-Hg. CMAQ-Hg<sup>[22]</sup>目前已经被广泛应用于北美、欧洲大陆、以及东亚区域的大气汞污染过程模拟, 图 1 为 CMAQ-Hg 模型运行框架.

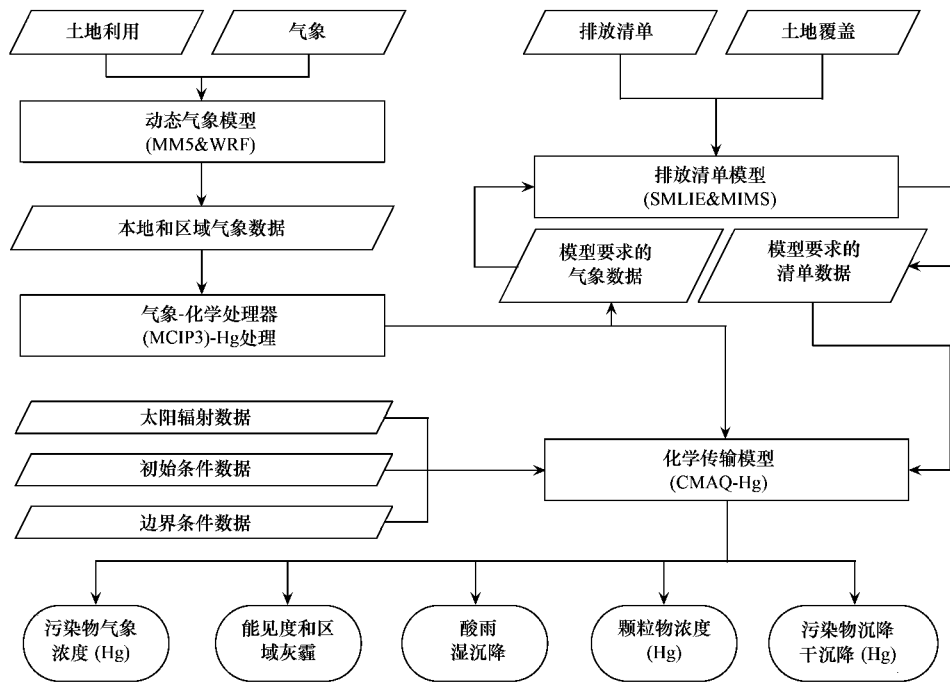


图 1 CMAQ-Hg 模型运行框架  
Fig. 1 Framework of CMAQ-Hg simulation

2 大气汞污染模拟研究进展

2.1 国内相关研究进展

我国是世界上最大的汞排放源地区, 有研究<sup>[23]</sup>显示约有 1/3 的全球总汞排放量来自于中国的人为排放. Streets 等<sup>[24]</sup>编制了 1999 年我国人为汞排放清单, 结果显示总汞排放量为 (536 ± 236) t; Wu

等<sup>[23]</sup>的研究进一步指出上述总汞的排放以年均 2.9% 的速率增加, 至 2003 年达到了 (679 ± 307) t. 我国人为汞排放高的主要原因是中国是世界第一煤炭消费大国, 煤炭平均汞含量 (约 0.15 ~ 0.20 μg/g) 高于世界平均含量 (0.13 μg/g)<sup>[23~25]</sup>, 而且汞污染排放控制能力较弱.

目前, 国内已经开展的大气汞污染研究主要集

中在以下 4 个领域:①大气汞的形态分布及测定方法<sup>[25~27]</sup>;②汞排放源清单的建立及排放因子的估算<sup>[23,24,28~30]</sup>;③局部受污染地区或某些城市区域汞的形态分析及浓度分布<sup>[31~35]</sup>;④CMAQ-Hg 模型的初步应用<sup>[36]</sup>。

## 2.2 国外相关研究进展

20 世纪 90 年代以来,北美和欧洲学者发现人为排放的汞可以经由大气长程输送并在异地沉降、积累造成远距离跨界汞污染<sup>[1]</sup>,由此西方发达国家越来越重视汞的跨国界输送、迁移转化和沉降方面的研究<sup>[7]</sup>。近年来,国际上围绕大气汞的来源、跨国界传输和迁移转化规律等的研究主要集中在以下 3 个方面:①大气汞化学及汞地球环境循环<sup>[3,4]</sup>;②汞排放源清单的建立及对汞模型模拟结果影响评价<sup>[7,18,37]</sup>;③大气汞浓度、输送、转化、沉降过程模拟,模型验证及不确定性分析<sup>[8,18,37,38]</sup>。

尽管目前我国人为汞排放清单的研究工作还很欠缺,但我国已被认为是全球大气汞排放最多的国家之一<sup>[23,24,38]</sup>。因此,国际上针对我国汞排放的跨国界传输问题也开展了一些专题研究,如:东亚和中国汞浓度及其分布的测量、模型模拟应用等<sup>[37,38]</sup>,Li 等<sup>[38]</sup>受 2001 年 4 月亚太区域悬浮颗粒物研究计划(ACE-Asia)的资助采用 4 维变量 Top-down 估算方法修正了中国 2001 年汞的排放量为 1 140 t。

由于我国还没有系统地开展过中国区域汞污染浓度和沉降分布方面的研究,这导致了国际上针对我国汞污染问题研究所依赖的排放清单可靠性不高,同时也使得这些研究不能准确地描述我国的大气汞的形成、迁移和循环过程。因此,国际上已报道的中国汞污染状况以及跨界长程输送影响数据具有很大的不确定性,难以真实反映我国目前的汞污染状况并据此制定相应的控制策略。

## 2.3 研究方向建议

全球大气汞排放的区域性差异十分明显,整体上看,发达国家的排放量已经得到控制,但对于大多数的发展中国家而言,随着经济的高速发展,大气汞排放量升高的压力十分严峻<sup>[2]</sup>。比较遗憾的是,我国是人为大气汞排放量位列第一的发展中国家<sup>[38]</sup>,而与之相应的排放模拟及污染控制研究却非常缺乏,严重影响了我我国汞污染控制策略制定以及“汞环境外交纠纷”的积极应对。

纵观国内外的相关文献报导,研究者们比较关注大气汞的来源、大气中不同形态汞的分布特征、大气不同形态汞的迁移转化行为、大气汞的长程输送

及干湿沉降等问题,但未能对我国大气汞污染状况开展系统研究,更没有与汞污染控制策略优化方法相关的研究报道。因此,笔者建议结合我国在大气汞污染宏观管理、控制及潜在的跨国环境外交纠纷的实际需求,就中国大气汞污染模拟及控制策略优化进行系统地研究;其研究内容将包括:①汞排放清单的建立、②大气汞的长程输送、③响应面模型软件(response surface modeling-Hg, RSM-Hg)的研发、④汞污染控制策略优化 4 个方面。

“汞排放清单的建立<sup>[23,24,28~30]</sup>”和“大气汞的长程输送<sup>[6,37~39]</sup>”国内外已经有相关的研究报道,因此,其研究重点是将二者有机结合,建立适合我国国情的大气汞污染模型模拟成套技术及排放清单。“RSM-Hg”是“汞污染控制策略优化”的决策辅助工具,目前还罕见相关研究报道,这二者的研究方法及其内容解释如下。

## 3 RSM-Hg 研发

利用 CMAQ-Hg 模型可以对我国多个汞排放控制策略所对应的情景进行模拟,通过对模拟结果的统计分析,可以将我国可控源排放对汞污染水平的影响函数化,建立中国可控源排放-汞污染水平的响应表面模型(response surface modeling<sup>[40]</sup>, RSM)。在 RSM 的基础上,可开发 RSM-Hg 软件以提供汞污染控制策略优化所需的一系列功能。

RSM-Hg 研发重点在于可控源排放-汞污染水平响应表面模型(RSM)建模。例如:按行业将人为可控的汞排放源细分为 24 类(如燃煤电厂、金冶炼、锌冶炼、铅冶炼、铜冶炼、炼汞、水泥、灯管、交通、生物质燃烧等);以指定年份的排放量为基准年排放(如 2008 年)并将其控制因子定为 1,各行业如果在目标年(如 2015 年)的排放量减少则其控制因子 < 1,极限情况为零排放则其控制因子为 0,各行业如果在目标年排放量增大则其控制因子 > 1,一般最大的排放增加是 2 倍,即控制因子为 2。当 24 个行业控制因子变化范围为 0~2,且控制因子连续变化的最小步长为 1%时,则对应 24 个行业各自的 200 个变量的控制情景组合的全排列高达  $\left[\frac{2-0}{0.01}\right]^{24} = 1.677\ 721\ 6 \times 10^{55}$ 。受系统计算时间限制(CMAQ-Hg 模拟一种情景的月平均浓度耗时 > 12 h),CMAQ-Hg 运算的情景组合不宜超过 400。因此,如何结合大气汞污染形成和反应的机制,合理地建立 RSM,以解决基于微小(≤ 400)样本量的海量

( $1.677\,721\,6 \times 10^{55}$ ) 连续控制情景的预测,并将其快速预测结果的误差控制在容许范围内,是该项研究内容的核心技术瓶颈.

4 汞污染控制策略优化

图 2 为大气汞污染控制策略评估及优化研究流程,其研究步骤如下. ①依据目标年(2015)能源消耗及经济、人口增长情况来确定人为可控源的控制、增长范围(如:行业整体极限情况是全部控制即 0%,相对基准年最大可能增加的排放是 200%,则:总体排放范围为 0~2). ②在控制范围内进行 Latin hypercube 采样<sup>[41]</sup>,生成人为可控源控制情景矩阵(如:24 个行业 120 个组合控制情景,其排放控制因子在 0~2 之间呈 Latin hypercube 均布). ③将指定年份(如 2008)的自然和人为汞排放清单作为基准

年清单;然后将基准年人为汞排放清单乘以不同组合控制情景下的控制因子可以得到各人为控制情景下对应的排放清单,再将该清单与基准年自然汞排放清单融合,并结合基准年的气象数据和其他必要数据来进行 CMAQ-Hg 模拟. ④采用高维 Kriging<sup>[42]</sup>插值方法进行系统建模,建立可控源排放-汞污染水平表面响应模型(RSM),实现任选控制因子范围内(如 0~2)的排放组合及其所带来汞污染状况的连续快速响应. ⑤基于 RSM 开发 RSM-Hg 工具软件,将汞污染控制策略对应的行业排放控制因子作为连续变化的输入条件,使 RSM-Hg 能快速预测出不同控制策略下的中国汞污染状况,并能筛选得出满足环境目标的不同控制策略组合方案;该组合方案经过 RSM-Hg 处理后可得各行业削减的汞量(t/a)并与各行业汞削减的不同经济成本(万元/t)相乘,再

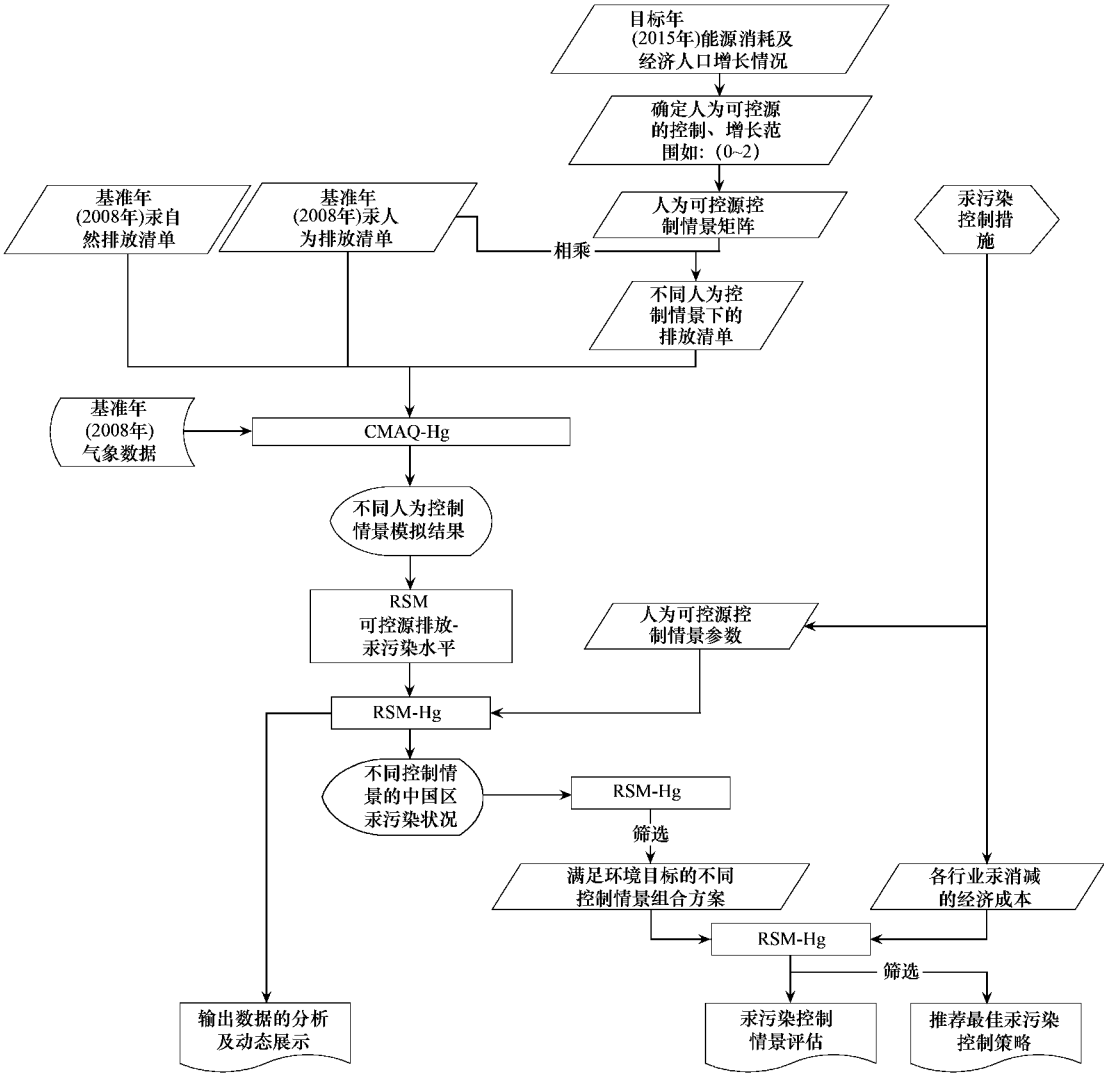


图 2 大气汞污染控制策略评估及优化

Fig. 2 Technical approaches to evaluating and optimizing mercury emission control policies

经过 RSM-Hg 处理后则可以对控制策略进行评估;进一步筛选后可得满足环境目标前提下的经济成本最小的汞污染宏观控制策略。⑥RSM-Hg 还可以进行各种控制情景下的汞污染状况数据分析及动态展示。

## 5 结论

(1)我国的大气汞污染模拟研究工作刚刚起步,而美、欧等西方发达国家则已经具备了较好的研究基础和经验。可以在美国环保署最新的 CMAQ-Hg 基础上发展出适合我国国情的汞污染模型模拟成套技术及配套排放源清单,并研发出基于响应面模型(RSM)的多行业汞污染排放协同控制情景评估软件 RSM-Hg,从而为我国汞污染控制策略的制定和优化提供科学的、可靠的模型方法和数据基础。

(2)“中国大气汞污染模拟及控制策略优化”研究工作的开展,将有望填补我国在系统利用大气汞模型进行汞污染状况模拟、预测和控制情景建模上的缺失,将有利于加深对汞科学及我国汞污染的现状和时空分布特征的理解,并将奠定多行业汞污染排放协同控制优化的科学基础。

## 参考文献:

- [1] Linqvist O, Johansson K, Aastrup M, *et al.* Mercury in the Swedish environment: recent research on causes, consequences and corrective methods[J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 1991, **55**: 1-261.
- [2] 冯新斌, 仇广乐, 付学吾等. 环境汞污染[J]. *化学进展*, 2009, **21**(2/3): 436-457.
- [3] Schroeder W H, Munthe J. Atmospheric mercury-an overview[J]. *Atmospheric Environment*, 1998, **32**(5): 809-822.
- [4] Bergan T, Gallardo L, Rodhe H. Mercury in the global troposphere; a three-dimensional model study [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**: 1575-1585.
- [5] 王少锋, 冯新斌, 仇广乐, 等. 大气汞的自然来源研究进展[J]. *地球与环境*, 2006, **34**(2): 1-11.
- [6] Jaffea D, Prestbobb E, Swartzendruber P, *et al.* Export of atmospheric mercury from Asia [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**: 3029-3038.
- [7] Wilson S J, Steenhuisen F, Pacyna J M. Mapping the spatial distribution of global anthropogenic mercury atmospheric emission inventories [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**: 4621-4632.
- [8] Seigneur C, Vijayaraghavan K, Lohman K. Modeling the atmospheric fate and transport of mercury over North America: power plant emission scenarios [J]. *Fuel Processing Technology*, 2004, **85**: 441-450.
- [9] Seigneur C, Vijayaraghavan K, Lohman K, *et al.* Global source attribution for mercury deposition in the United States [J].

- Environmental Science and Technology*, 2004, **38**(2): 555-569.
- [10] Skov H, Christensen J, Goodsite M E, *et al.* Fate of elemental mercury in the arctic during atmospheric mercury depletion episodes and the load of atmospheric mercury to the arctic [J]. *Environmental Science and Technology*, 2004, **38**(8): 2373-2382.
- [11] Dastoor A P, Davignon D, Theys N, *et al.* Modeling dynamic exchange of gaseous elemental mercury at polar sunrise [J]. *Environmental Science and Technology*, 2008, **42**(14): 5183-5188.
- [12] Travníkov O. Contribution of the intercontinental atmospheric transport to mercury pollution in the Northern Hemisphere [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**: 7541-7548.
- [13] Selin N E, Jacob D J. Seasonal and spatial patterns of mercury wet deposition in the United States: Constraints on the contribution from North American anthropogenic sources [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(21): 5193-5204.
- [14] Petersen G, Iverfeld A, Munthe J. Atmospheric mercury species over central and northern Europe. Model calculations and comparison with observations from the nordic air and precipitation network for 1987 and 1988 [J]. *Atmospheric Environment*, 1995, **29**(1): 47-67.
- [15] Lee D S, Nemitz E, Fowler D. Modelling atmospheric mercury transport and deposition across Europe and the UK [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, **35**(32): 5455-5466.
- [16] Xu X H, Yang X S, Miller D R, *et al.* A regional scale modeling study of atmospheric transport and transformation of mercury. I. Model development and evaluation [J]. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**(28): 4933-4944.
- [17] Pai P, Niemi D, Powers B. North American inventory of anthropogenic mercury emissions [J]. *Fuel Processing Technology*, 2000, **65**: 101-115.
- [18] Bullock J O R, Brehme K A. Atmospheric mercury simulation using the CMAQ model: Formulation description and analysis of wet deposition results [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(13): 2135-2146.
- [19] MacLeod M, McKone T E, Mackay D, *et al.* Mass balance for mercury in the San Francisco Bay Area [J]. *Environmental Science and Technology*, 2005, **39**(17): 6721-6729.
- [20] Voudouri A, Kallos G. Validation of the integrated RAMS-Hg modelling system using wet deposition observations for eastern North America [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(27): 5732-5745.
- [21] Pongprueksa P, Lin C J, Lindberg S E. Scientific uncertainties in atmospheric mercury models III: Boundary and initial conditions, model grid resolution, and Hg(II) reduction mechanism [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(8): 1828-1845.
- [22] Lin C J, Pongprueksa P, Russell B J O, *et al.* Scientific uncertainties in atmospheric mercury models II: Sensitivity analysis in the CONUS domain [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(31): 6544-6560.
- [23] Wu Y, Wang S X, Streets D G, *et al.* Trends in anthropogenic

mercury emissions in China from 1995 to 2003 [ J ]. Environmental Science and Technology, 2006, **40** ( 17 ): 5312-5318.

[ 24 ] Streets D G, Hao J M, Wu Y, *et al.* Anthropogenic mercury emissions in China [ J ]. Atmospheric Environment, 2005, **39**: 7789-7806.

[ 25 ] 方凤满,王起超,郝庆菊. 大气汞的来源、形态及环境过程研究现状[ J ]. 环境导报, 2001, ( 2 ): 18-21.

[ 26 ] 陈乐怡,张晓山,林玉环,等. 大气环境中汞的形态及其分析方法[ J ]. 环境化学, 1999, **18**( 6 ): 584-588.

[ 27 ] 陈武. 大气中不同形态汞的采集与分析方法进展[ J ]. 化学工程与装备, 2009, **7**: 209-213.

[ 28 ] 王起超,沈文国,麻壮伟. 中国燃煤汞排放量估算[ J ]. 中国环境科学, 1999, **19** ( 4 ): 318-321.

[ 29 ] 蒋靖坤,郝吉明,吴烨,等. 中国燃煤汞排放清单的初步建立[ J ]. 环境科学, 2005, **26** ( 2 ): 34-39.

[ 30 ] 李广辉,冯新斌,李仲根. 竖罐炼锌过程中汞的大气排放量[ J ]. 清华大学学报( 自然科学版 ), 2009, **49**( 12 ): 2001-2004.

[ 31 ] 王平安,张成,王春晓. 重庆市北碚区大气汞时空变异研究[ J ]. 西南大学学报, 2007, **29**( 3 ): 125-129.

[ 32 ] 万奇,冯新斌,郑伟,等. 长白山地区大气气态总汞含量的季节性特征研究[ J ]. 环境科学, 2008, **29**( 2 ): 296-299.

[ 33 ] 满洪喆,杨永奎,王定勇. 重庆市主城区大气汞调查研究[ J ]. 西南大学学报( 自然科学版 ), 2009, **31**( 9 ): 131-137.

[ 34 ] 李红英,罗津晶,李金兰. 厦门市秋冬季节大气汞污染调查[ J ]. 环境科学与管理, 2009, **34**( 9 ): 48-53.

[ 35 ] 李仲根,冯新斌,李平,等. 垃圾填埋场大气汞的浓度和形态[ J ]. 环境科学研究, 2009, **22**( 4 ): 450-455.

[ 36 ] 权建农,张晓山,张蕾,等. 我国燃煤汞沉降的数值模拟[ J ]. 高原气象, 2009, **28**( 1 ): 159-164.

[ 37 ] Li P, Gregory R C, Bhupesh A, *et al.* A regional analysis of the fate and transport of mercury in East Asia and an assessment of major uncertainties [ J ]. Atmospheric Environment, 2008: **42**: 1144-1159.

[ 38 ] Li P, Chai T F, Carmichael G R, *et al.* Top-down estimate of mercury emissions in China using four-dimensional variational data assimilation [ J ]. Atmospheric Environment, 2007, **41**: 2804-2819.

[ 39 ] Lin C J, Pan L, Streets D G, *et al.* Estimating mercury emission outflow from east asia using CMAQ-Hg [ J ]. Atmospheric Chemistry & Physics, 2010, **10**: 1853-1864.

[ 40 ] Khayet M, Seman M N A, Hilal N. Response surface modeling and optimization of composite nanofiltration modified membranes [ J ]. Journal of Membrane Science, 2010, **349**( 1-2 ): 113-122.

[ 41 ] Larson V E, Golaz J C, Jiang H L, *et al.* Supplying local microphysics parameterizations with information about subgrid variability: Latin hypercube sampling [ J ]. Journal of the Atmospheric Sciences, 2005, **62**( 11 ): 4010-4026.

[ 42 ] Aelion C M, Davis H T, Liu Y, *et al.* Validation of Bayesian kriging of arsenic, chromium, lead, and mercury surface soil concentrations based on internode sampling [ J ]. Environmental Science and Technology, 2009, **43**( 12 ): 4432-4438.