DOI:10.13671/j.hjkxxb.2015.0046

黄蕊珠,陈焕盛,葛宝珠,等.2015.京津冀重霾期间 PM_{2.5}来源数值模拟研究[J].环境科学学报,35(9):2670-2680 Huang R Z, Chen H S, Ge B Z, *et al.* 2015.Numerical study on source contributions to PM_{2.5} over Beijing-Tianjin-Hebei area during a severe haze event [J].Acta Scientiae Circumstantiae,35(9):2670-2680

京津冀重霾期间 PM25 来源数值模拟研究

黄蕊珠^{1,2},陈焕盛^{1,*},葛宝珠¹,姚石泉¹,王哲¹,杨文夷^{1,2},陈学舜^{1,2},朱莉莉³, 黄思^{1,2},王自发¹

1. 中国科学院大气物理研究所,大气边界层物理和大气化学国家重点实验室,北京 100029

2. 中国科学院大学,北京 100049

3. 中国环境监测总站,北京 100012

收稿日期:2014-10-25 修回日期:2015-01-16 录用日期:2015-01-31

摘要:厘清 PM_{2.5}的来源是开展重霾污染防治的前提条件.本研究利用嵌套网格空气质量预报模式系统(NAQPMS)及其耦合的污染来源追踪技术,针对 2013 年 1 月我国中东部的重霾污染过程,定量模拟分析京津冀各城市 PM_{2.5}浓度的来源和相互贡献.研究结果表明,NAQPMS 模式能够合理反映京津冀不同城市 PM_{2.5}浓度的变化特征.京津冀各城市近地面 PM_{2.5}浓度主要受本地排放影响,本地贡献率介于 29.8%~63.7%.而 800 m 高空层各城市 PM_{2.5}浓度以外来贡献为主(69.3%~86.3%).在污染最严重的东南部地区(包括邢台、邯郸、沧州和衡水),PM_{2.5}浓度受区域外的山东和河南的显著影响,贡献率可达 25.2%~31.5%.因此,在京津冀区域内进行协同减排控制的同时,需进一步将山东、河南等省份纳入联防联控范围,才能有效防控重霾污染.

关键词:NAQPMS;灰霾;污染来源追踪;京津冀

文章编号:0253-2468(2015)09-2670-11 中图分类号:X513 文献标识码:A

Numerical study on source contributions to PM_{2.5} over Beijing-Tianjin-Hebei area during a severe haze event

HUANG Ruizhu^{1,2}, CHEN Huansheng^{1,*}, GE Baozhu¹, YAO Shiquan¹, WANG Zhe¹, YANG Wenyi^{1,2}, CHEN Xueshun^{1,2}, ZHU Lili³, HUANG Si^{1,2}, WANG Zifa¹

1. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

3. China National Environmental Monitoring Center, Beijing 100012

Received 25 October 2014; received in revised form 16 January 2015; accepted 31 January 2015

Abstract: Identification of the source regions of $PM_{2.5}$ and quantification of their contributions are critical for efficient haze pollution control. In this study, the Nested Air Quality Prediction Model System (NAQPMS) coupled with an online source-tagging module was employed to simulate an extreme severe haze episode over Beijing-Tianjin-Hebei (BTH) area in January 2013. A detailed quantification of the source contributions from different regions was provided. The simulation was validated through comparison with surface observations, which suggested that the model could reasonably reproduce the temporal and spatial variations of $PM_{2.5}$ concentrations during this episode. The results of the source-tagging calculation suggested that local emissions were the dominated sources of the surface $PM_{2.5}$, accounting for 29.8% to 63.7% contributions of the surface $PM_{2.5}$ concentrations. On the other hand, $PM_{2.5}$ at 800 m layer was mainly contributed by the sources of the surrounding areas with the contributed ratio from 69.3% to 86.3%. For the most polluted southeast BTH area (including Xingtai, Handan, Cangzhou and Hengshui), emissions from Shandong and Henan provinces had significant contribution to

作者简介: 黄蕊珠(1989—),女,E-mail: hrz305@163.com; * 通讯作者(责任作者),E-mail: chenhuansheng@mail.iap.ac.cn Biography: HUANG Ruizhu(1989—), female, E-mail: hrz305@163.com; * Corresponding author,E-mail: chenhuansheng@mail.iap.ac.cn

基金项目:中国科学院战略性先导项目(No.XDB05030203,XDB05030101);国家自然科学基金(No.41405119,41305113);环保公益性行业科研 专项(No.201509014);国家科技支撑计划项目(No.2014BAC22B04)

Supported by the CAS Strategic Priority Research Program (No.XDB05030203, XDB05030101), the National Natural Science Foundation of China (No. 41405119, 41305113), the Environmental Public Welfare Research Project(No.201509014) and the National Key Technology R&D Program(No. 2014BAC22B04)

the $PM_{2.5}$ pollution with the largest contributions 25.2% and 31.5% at surface and 800 m layer, respectively. Therefore, the control of haze pollution over BHT areas should not only focus on the collaborative emission control within BHT areas but also take into account the joint emission control for BHT regions, Shandong and Henan Provinces.

Keywords: NAQPMS; haze; source tagged; Beijing-Tianjin-Hebei area

1 引言(Introduction)

随着经济的高速发展和城市化进程的不断加 快,粗放型经济增长方式的高强度排放导致我国大 气污染日益严重,呈现出烟煤型与机动车污染共存 的新型大气复合污染特征(郝吉明等,2012;王书肖 等,2010).2013 年1月我国中东部10省市出现了持 续严重的灰霾污染天气,其中,京津冀地区污染最 严重,北京共计22天 PM,5日均浓度超过空气质量 二级标准(75 μg·m⁻³), PM₂₅小时最高值达到 680 μg·m⁻³, 石家庄 PM_{2.5}小时浓度最高超过 1000 μg·m⁻³(王跃思等,2013).持续重污染事件引起了 政府部门和社会各界的高度重视,2013年9月国务 院正式公布《大气污染防治行动计划》,要求至2017 年全国 PM10浓度普降 10%,京津冀、长三角、珠三角 等区域的 PM, 5浓度分别下降 25%、20% 和 15% 左 右,北京市细颗粒物年均浓度控制在 60 μg·m⁻³左 右.北京市人民政府在此基础上相继推出了《北京市 2013-2017年清洁空气行动计划》、《北京市空气重 污染应急预案(试行)》等,重点解决北京市的空气 污染问题.研究表明,京津冀地区重霾污染成因受多 方面因素共同影响(王开燕等,2006;高健等,2012; 杨欣等,2014).从气象条件上看,相对湿度高、低温、 较低的边界层、弱风和高频率的大雾等异常气象条 件是导致重霾污染的重要外因(高怡等,2014; Huang et al., 2014a). 王跃思等(2014a) 研究发现, 灰 霾爆发期由化石燃料燃烧和机动车排放产生的大 量 NO_x 是 SO₂转换为硫酸盐的重要原因.韩霄等 (2014b)和 Ji 等(2014)认为,在北京地区引发灰霾 的主要气溶胶物种为硫酸盐、硝酸盐和铵盐,且重 霾事件中二次气溶胶占比例更大(Huang et al., 2014).因此,大气污染防治的核心在于厘清 PM2.5的 来源,尤其是二次生成的气溶胶来源.

目前,关于京津冀地区大气污染物来源的研究 主要集中在对污染排放及区域输送特征等方面(胡 敏等,2011;王雪松等,2009;张强等,2012;王自发 等,2008),高分辨率空气质量数值模式成为定量分 析城市污染物来源的重要研究手段之一(Wu et al., 2011).胡敏等(2011)对我国 30 个城市的 PM₁₀进行

源解析,认为 PM₁₀主要来自扬尘、燃煤、工业排放、 机动车排放等 6 类源,王雪松等(2009)利用 CAMx 模式对北京臭氧污染来源分析的结果表明,北京受 本地臭氧前体物影响占46%,天津、河北南部的区 域输送贡献占有重要份额.Wu等(2011)利用 NAQPMS 模式及其在线源解析模块(Wang et al., 2001;Li et al., 2008) 对北京 SO2、PM10 和 NO2的来源 进行了源-受体关系解析,发现近地层本地贡献约为 65%~90%,而高空层外来贡献大于 50%.这些早期 的研究主要关注 PM₁₀、臭氧等污染物的排放和地区 来源,而没有对 PM,,的来源做进一步分析.近年来, 由于细颗粒物 PM25污染日益显著(吴兑,2014;王跃 思等,2014b;韩力慧等,2005),仅仅针对 PM10、臭氧 等的研究已不能满足政府部门控制大气污染的需 求.王自发等(2014)利用 NAQPMS 在线源解析模型 得出来自区域外的跨城市群输送对京津冀 PM,,浓 度贡献为 20%~35%. Wang 等(2014)利用 CMAQ 模 型对 2013 年 1 月河北东南部的重霾污染物来源研 究发现,河北北部和北京、天津是石家庄的主要区 域贡献源,河北北部和河南是邢台和邯郸的重要污 染来源.但直到目前为止,关于京津冀地区城市和城 市之间 PM25 输送的研究报道较少.在实施空气质量 应急预案和联防联控时,往往需要具体到地市层面 的减排措施.因此,本研究以 2013 年 1 月的重霾污 染过程为案例,基于 NAQPMS 模式及其污染来源追 踪技术,详细分析静稳天气下京津冀各城市之间及 与周边省份 PM,5的源-受体关系,从而为空气质量 应急预案和区域联防联控提供支持,为今后空气污 染治理提供参考依据.

2 模式介绍与设置(Model description and setup)

2.1 模式介绍

NAQPMS 是由中国科学院大气物理研究所自 主研发的多尺度、多物种的空气质量模拟预报系统 (王自发等,2006),已被广泛应用于东亚地区沙尘、 酸雨、臭氧、颗粒物等污染的形成机制和跨界输送 研究(李杰等,2014;杨文夷等,2014;Ge et al., 2014),并已在全国多个省市(如北京、上海、广东 等)实现空气质量业务化实时预报(Wu et al., 2012; 王茜等, 2010).NAQPMS 属于第三代空气质 量模式,基于"一个大气"理念设计,详细考虑了空 气污染物的平流、扩散、干湿沉降及化学转化等过 程,其中,气相化学使用 CBM-Z 机制,液相化学采用 改进的 RADM2 机制,无机气溶胶采用 ISORROPIA 机制,二次有机气溶胶基于 Odum 等(1997)的计算 方案.沙尘和海盐的产生可在线计算,分别采用罗淦 等(2006)和 Athanasopoulou 等(2008)发展的方案. 模式中也考虑了气溶胶表面的非均相化学过程,包 含了 28 个化学反应(Li *et al.*,2013).

此外,NAQPMS模式耦合了在线源识别与追踪 模块,通过对源排放和化学生成的标记追踪污染物 的生消演变,可定量计算不同地区、行业排放对目 标地区污染物的浓度贡献.与传统敏感性试验方法 相比,该方法能保证模拟过程中污染物的生成效率 保持不变,从而减小了非线性过程误差,同时不需 要对模拟过程进行多次设定,可节约大量计算时间. 该方法已被多次应用于污染物的区域或城市间输 送定量评估(Li et al., 2008;陈焕盛等,2010;Wu et al., 2011).本文使用的模式源追踪技术是对一次 PM_{2.5}的排放地和二次 PM_{2.5}的生成地进行标记,其 中,二次生成的 PM_{2.5}包括硫酸盐、铵盐、硝酸盐和二 次有机气溶胶,将 PM_{2.5}来源贡献追溯到这些组分的 生成地.

2.2 模式设置

模拟区域以京津冀为中心,采用3层嵌套.第一 层覆盖整个东亚地区,网格数为183×173(东西×南 北),网格分辨率为45 km×45 km;第二层为我国中 东部地区,网格数为211×199,网格分辨率为15 km ×15 km;第三层包含京津冀、山东、山西等地区,网 格数为220×214,网格分辨率为5 km×5 km.外层选 择较大的区域可以保证长期模拟过程中内层区域 具有较为合理的侧边界,并可充分考虑其它地区对 京津冀的影响.垂直方向不等距地分为20层,其中, 约有7~8 层位于边界层内.

NAQPMS 逐小时的气象场由中尺度气象模式 WRFv3.5 提供,包括气温、湿度、降水、风向风速和 云量等.WRF模式的初边界条件采用 GDAS(Global Data Assimilation System)模式的 FNL分析数据集. NAQPMS 的模拟时段为 2012 年 12 月 16 日至 2013 年 1 月 31 日,其中,前半个月为模式初始化时间,取 2013 年 1 月的模拟结果用于分析.模式的积分时间 步长为 5 min,输出频率为 1 h.模式的初边界条件采 用全球模式 MOZARTv2.4 的模拟结果.

为实现污染来源追踪,引入 GIS 技术,以行政区 划为基础对模式网格做地理标记.将整个模拟区域 划分为 23 个地区,分别为:河北省 11 个城市、北京 市、天津市、内蒙古、辽宁、山西、河南、山东、中国其他 省份,以及韩国、日本、世界其他国家、海域等(图 1a).



图1 京津冀及周边地区污染来源地划分(a)、气象观测站点(空心方框)和污染观测站点(实心圆点)及一次 PM_{2.5}排放速率(b,1~8 表示 观测点位)

Fig.1 The 23 source tagged regions in BTH and surrounding areas used in the NAQPMS model (a) and distribution of observational sites for meteorology (square) and air quality (black point), and primary PM_{2.5} emission rates(b)

2.3 排放清单更新

背景排放清单采用日本国立环境研究所编制的亚洲网格化排放清单 REAS2.1,该清单详细考虑 了各地区污染控制新技术的推广应用对排放因子 的影响,基准为 2008 年,网格分辨率 0.25°×0.25° (Kurokawa et al.,2013).另外,根据河北省环保局提 供的 2012 年污染源环境统计和排污申报统计信息, 获得河北省本地 16000 多个工业和电厂源的污染排 放数据,通过核定各点源的经纬度信息,对排放数 据网格化并更新 REAS2.1 中河北省的点源排放信 息.更新排放清单后京津冀各城市的一次 PM_{2.5}、NO_x 和 SO₂的排放总量如表 1 所示,其中,一次 PM_{2.5}排 放速率空间分布如图 1b 所示,京津冀区域内一次 PM_{2.5}排放沿邯郸-邢台-石家庄-保定-北京-天津呈带 状分布,并与山东和河南相连形成大范围的污染物 排放区.

对比 2008 和 2012 年中国环境统计年报的排放 总量年际变化(图未给出)发现,河北省 2012 年与 2008 年相比,SO₂排放量相差不大,烟粉尘增加约 84 万 t,NO_x的排放量明显增加.考虑到河北排放总量较 大,使用 2012 年的排放数据将更接近实际排放情 况.北京市 2012 年的排放总量与 2008 年相比变化 较小.天津市除 NO_x排放有所增加外,烟粉尘和 SO₂ 变化不大.考虑到目前通用排放清单的不确定性仍 较大(±30%以上)(Kurokawa *et al.*, 2013),本文采 用不同年份源清单引入的误差小于排放清单本身 的不确定性,不会对模拟结果产生较大的影响.

Table 1 City-specific anthropogenic emissions in BTH area										
城市		攻总量∕(10 ⁴ t・月	-1)	城市 –	4	排放总量/(10 ⁴ t·月 ⁻¹)				
	PM _{2.5}	NO _x	SO_2		PM _{2.5}	NO _x	SO_2			
石家庄	1.75	2.63	2.20	唐山	1.05	3.49	3.20			
秦皇岛	0.34	0.72	0.67	邯郸	1.27	2.25	2.65			
邢台	1.11	0.79	1.14	保定	1.71	1.27	1.17			
张家口	1.09	1.34	0.95	承德	0.63	0.72	0.88			
沧州	0.91	0.62	0.72	廊坊	0.60	0.55	0.63			
衡水	0.88	0.62	0.55	北京	1.83	1.71	2.09			
天津	1.56	1.91	3.57							

表1 京津冀各城市主要污染物排放总量

3 观测数据和模式验证(Observationaldata and model validation)

3.1 数据来源和站点分布

空气质量观测数据来源于中国环境监测总站, 时间分辨率为1d,选取北京、天津、石家庄、保定、唐 山、沧州、张家口和邢台8个典型城区站的PM_{2.5}数 据,与对应的模拟结果进行对比.气象观测数据来源 于 NOAA 国家气候数据中心(NCDC),用于模式验 证的气象因素包括海平面气压、2m温度、2m相对 湿度和 10 m 风向风速,时间分辨率为 1 h.空气质量 观测站点和气象观测站点分布见图 1b.

3.2 气象要素模拟验证

气象要素是空气质量模式的重要输入和不确 定性来源.图2为WRF模拟的风速、风向、相对湿 度、温度及海平面气压与观测的对比.WRF模拟的 温度与观测的相关性较好,相关系数普遍在0.9左 右,且平均偏差(MB)在±1.5℃以内(表2).海平面 气压的模拟结果也基本和观测一致,张家口模拟值

表 2 京津冀代表站点气象要素模拟效果评估统计表

Table 2 Statistical parameters of comparisons between simulated and observed meteorological elements											
城市	ND	温度/℃				相对湿度		风速/(m·s ⁻¹)			
	NP	MO	MB	r	MO	MB	r	MO	MB	r	
北京	248	-4.5	0.9	0.94	61.1%	-7.4%	0.92	1.7	-0.1	0.55	
石家庄	217	-4.1	1.5	0.82	70.4%	-10.6%	0.86	1.5	0	0.31	
保定	217	-5.6	0.6	0.91	78.8%	-2.1%	0.85	1.9	-0.5	0.65	
唐山	217	-6.3	0.4	0.95	72.5%	-2.4%	0.88	2.0	-0.4	0.53	
沧州	248	-4.5	-0.4	0.94	76.4%	4.5%	0.89	1.3	0.1	0.53	
张家口	248	-9.1	0.7	0.93	48.7%	-1.4%	0.86	2.7	0	0.52	

注:NP 为样本数,即有效小时数;MO 为观测平均值;MB 为平均偏差;r 为相关系数;计算公式可参见附录.



图 2 京津冀各代表站点 2013 年 1 月气象要素模拟与观测对比

Fig.2 Comparison between simulated (red) and observed (blue) meteorological parameters in typical sites in BTH area

整体略有偏低.模拟的相对湿度与观测的相关系数 均高于 0.8,但石家庄、北京的模拟值略偏低.WRF 模拟的风向总体与观测接近,唐山、保定模拟的风 速偏低,保定的相关性较好,而石家庄相关性最差. 综上可见,与观测相比,张家口和唐山等地模拟的 效果总体较好,而石家庄和保定的气象要素模拟偏 差相对较大,由于这两个站点位于太行山山脚,地 形复杂,模式难以准确表征实际地形高度,从而影 响模拟效果(何建军等,2014).总体上,WRF 模拟的 各气象要素偏差均在可接受的范围内(<30%),可为 NAQPMS 模式提供相对可靠的气象场.

3.3 PM_{2.5}模拟结果验证

图 3 给出了京津冀 8 个城市的 PM_{2.5}模拟和观 测浓度日均值时间序列对比.表 3 为 PM_{2.5}模拟和观 测的统计分析结果.用于模式验证的统计参数包括 标准平均偏差(NMB)、均方根误差(RMSE)、相关系 数(r)、平均分数偏差(MFB)和平均分数误差 (MFE).



图 3 京津冀代表站点 PM2.5日均浓度模拟与观测对比(2013年1月)

Fig.3 Comparison between simulated (red) and observed (blue) daily averaged PM2.5 concentrations in typical sites in BTH area

Table 3 Statistical parameters of comparisons between simulated and observed PM2.5 concentrations											
站点	NP/d	MO∕ (μg•m ⁻³)	MM∕ (μg•m ⁻³)	$\frac{\text{RMSE}}{(\mu g \cdot m^{-3})}$	NMB	NME	MFB	MFE	r		
北京	30	161.5	239.1	143.2	48%	61%	49%	57%	0.73 **		
天津	31	149.8	262.8	139.9	75%	78%	59%	63%	0.87 **		
唐山	31	210.1	378.7	210.7	80%	80%	56%	56%	0.84 **		
沧州	29	185.0	340.9	192.4	84%	84%	56%	56%	0.68 **		
张家口	31	58.7	51.3	38.0	-13%	48%	-30%	57%	0.66 **		
保定	28	283.7	381.1	207.4	34%	57%	24%	47%	0.23(0.24)		
石家庄	31	341.5	379.9	197.5	11%	44%	12%	40%	0.23(0.45*)		
邢台	29	336.0	376.9	200.7	12%	44%	14%	41%	0.18(0.50**)		

表 3 京津冀代表站点 PM_{2.5}模拟效果统计分析

注:r为相关系数,**表示通过置信度为0.01的相关系数显著性检验,*表示通过置信度为0.05的显著性检验,括号内为剔除11、12日后的相关系数.

对比表明,除张家口以外,其他站点 PM_{2.5}模拟 值均高于观测值.这可能与排放清单中一次 PM_{2.5}及 其前体物排放量偏高有关,同时风速模拟值偏低也 可能是重要原因.张家口位于京津冀北部,PM_{2.5}浓 度相对其他城市较低,模拟值与观测结果基本一致. 北京、天津、唐山和沧州的 PM_{2.5}变化趋势和观测变 化趋势有较好的一致性,相关系数分别为 0.73、 0.87、0.84 和 0.68.而位于太行山山脚的保定、石家 庄和邢台趋势模拟能力欠佳,主要由两个原因造成:一方面,1月上旬 PM_{2.5}趋势模拟相对较好,但12日存在一个反向趋势,这是由于模拟的西风过强,使得污染带向东偏移,而位于东部的沧州和唐山模拟效果相对较好,若不考虑11日和12日的影响,石家庄和邢台的相关系数将明显增大,石家庄可通过置信度为0.05的相关系数显著性检验,邢台可通过置信度为0.01的显著性检验;另一方面,1月29—

31 日模拟北风偏弱,因而没有很好地反映强北风对 污染的清除过程.

针对 PM_{2.5}的模拟评估, Boylan 等(2006) 指出, 当 MFB<±30%且 MFE<50%时,表明模拟偏差很小, 在理想范围内;而当 MFB<±60%且 MFE<75%时,表 明模拟偏差在可接受范围内.按照该指标,8个城市 站点的模拟效果均在可接受范围之内.综合考虑多 个统计指标的结果认为, NAQPMS 的模拟误差基本 在可接受范围之内,整体上能够反映 PM_{2.5}的浓度变 化特征.

4 分析与讨论(Analysis and discussion)

4.1 京津冀各城市近地面 PM,5污染来源分析

表4计算了北京、天津及河北省11个城市近地面 PM,。浓度的来源贡献率,本文所指的贡献率均为

城市覆盖面内所有网格的平均贡献率,可减小不同 站点污染解析结果的差异导致的不确定性.表中横 向为目标城市(受体),纵向为 PM_{2.5}来源地(生成 地).结合图 4 可见,本地排放贡献较大的城市依次 为唐山、承德、保定、天津和张家口,这 5 个城市的本 地贡献率均超过 50%.其中,唐山本地贡献最大,为 63.7%.近地面受外来输送影响较大的城市则依次为 邢台、廊坊、邯郸、衡水.从表 4 中京津冀地区近地面 PM_{2.5}月均浓度可看出,2013 年 1 月污染较重的城市 主要为石家庄、邢台、保定、邯郸和衡水等,其中就 包括受外地影响较大的邢台、邯郸和衡水等,其中就 包括受外地影响较大的邢台、邯郸和衡水,而邢台 的一次 PM_{2.5}排放总量在京津冀区域内却相对较低 (表 1),4.3 节将选取邢台作为典型代表重点分析. 石家庄不仅 PM_{2.5}浓度最高,且城市面积较大,有必 要分析该城市对周边城市的影响程度.

表 4	京津冀各城市近地面 PM	。浓度来源贡献率。	城市面积和 PM。	月均浓度

Table 4 Source contributions of tagged regions to monthly averaged surface PM_{2.5} of 13 cities in BTH area, cities' area and monthly averaged concentration of PM_{2.5}

			东南部			中部				北部			
城巾	北牙	大伴	邯郸	邢台	衡水	沧州	石家庄	保定	廊坊	唐山	张家口	承德	秦皇岛
北京	46.6%	1.4%	0.2%	0.7%	1.1%	0.7%	0.6%	2.1%	5.4%	0.5%	9.8%	5.9%	0.3%
天津	13.7%	51.9%	0.7%	1.5%	2.8%	6.1%	1.4%	3.8%	21.2%	10.8%	2.5%	5.1%	3.2%
邯郸	0	0	34.3%	8.4%	0.7%	0.1%	2.4%	0.4%	0.1%	0	0.1%	0.1%	0.1%
邢台	0.1%	0.1%	10.7%	29.8%	3.8%	0.6%	7.4%	1.5%	0.3%	0	0.1%	0.1%	0.1%
衡水	0.9%	1.9%	4.4%	10.1%	37.1%	7.9%	7.2%	7.0%	4.1%	0.8%	0.1%	0.2%	0.5%
沧州	4.2%	11.1%	2.0%	4.1%	14.0%	42.8%	3.2%	7.8%	16.2%	3.5%	0.4%	0.7%	1.8%
石家庄	0.1%	0.1%	3.5%	8.8%	1.7%	0.3%	45.2%	4.5%	0.2%	0	0.1%	0.1%	0.1%
保定	6.1%	1.7%	2.3%	5.8%	5.7%	2.7%	17.3%	58.1%	7.9%	0.3%	3.2%	0.5%	0.3%
廊坊	13.0%	7.5%	0.7%	1.5%	2.4%	4.5%	1.5%	5.1%	32.6%	1.3%	1.2%	0.9%	0.5%
唐山	2.4%	9.6%	0	0.1%	0.3%	0.7%	0.1%	0.3%	2.6%	63.7%	0.5%	9.4%	27.6%
张家口	5.0%	0.1%	0	0	0	0	0.1%	1.5%	0.3%	0	51.6%	3.8%	0
承德	2.9%	1.2%	0	0	0	0	0	0	0.5%	3.2%	0.3%	58.9%	3.7%
秦皇岛	0.1%	0.2%	0	0	0	0.1%	0	0	0.1%	3.2%	0	2.0%	40.9%
内蒙	0.5%	0	0	0	0	0	0	0.1%	0	0.1%	11.5%	7.4%	0.2%
辽宁	0.1%	0.4%	0	0	0.1%	0.3%	0	0	0.1%	1.0%	0	0.7%	6.5%
山西	1.7%	0.1%	6.1%	4.3%	0	0	7.6%	3.4%	0.2%	0	16.5%	0.3%	0.1%
山东	1.8%	7.9%	10.6%	12.5%	21.3%	25.2%	2.8%	2.9%	6.1%	5.3%	0.7%	1.8%	4.8%
河南	0.2%	0.3%	20.3%	9.1%	4.8%	2.1%	2.3%	0.7%	0.5%	0.1%	0.3%	0.3%	0.2%
其他	0.6%	4.5%	4.2%	3.3%	4.2%	5.9%	0.9%	0.8%	1.6%	6.2%	1.1%	1.8%	9.1%
城市面积/ (10 ⁵ m ²)	1.64	1.19	1.20	1.25	0.88	1.34	2.02	2.22	0.65	1.35	3.69	3.95	0.78
PM _{2.5} 月均浓度/ (µg·m ⁻³)	150	132	285	336	234	185	341	284	208	210	59	76	83

2013年1月期间,京津冀地区中低空主要受反 气旋后部偏南暖湿气流控制,层结稳定,环流形势

静稳,有利于本地污染物的累积.京津冀地区基本位 于黄渤海高压后部、西南倒槽顶部,地面气压场弱, 风速小,以偏东南气流及偏西南气流控制为主.弱的 偏西南和偏东南气流有利于把河南、山东累积的污 染物缓慢输运到河北南部和中部地区,进一步加重 河北中南部的污染态势.在这样气象背景下,京津冀 东南部、中部和北部的主要污染物来源存在明显的 差异.

京津冀东南部为污染最严重的地区,包括邢 台、邯郸、衡水和沧州4个城市.邢台市污染程度在 京津冀13个城市中位居第2,但其本地贡献率仅为 29.8%,相邻的衡水、石家庄和邯郸对其贡献分别为 10.1%、8.8%和8.4%,而山东、河南对其贡献更大, 达到12.5%和9.1%.邯郸市在京津冀区域内主要贡 献来自本地(34.3%)和保定(10.7%),外省来源以 河南和山东为主,贡献率为20.3%和10.6%.衡水市 除受本地影响(37.1%)之外,山东省对其贡献最大, 达21.3%.沧州与衡水类似,受山东的贡献达25.2%. 总体上,京津冀污染较重的东南部4个城市受山东 和河南的影响较大,甚至大于区域内其他城市,说 明跨城市群输送是导致京津冀南部地区重霾事件 的重要原因之一,污染防治仅限于京津冀内部无法 完全改善空气质量,更大区域的联防联控有重要 作用.

京津冀中部地区包括北京、天津及河北中部城 市.石家庄 2013 年 1 月的 PM_{2.5}月均浓度最大,其本 地贡献达 45.2%,外来贡献中以北部的保定市最大, 为 17.3%,而南部的邢台对其贡献为 7.4%,略高于 东部的衡水(7.2%).此外,山西对石家庄也有一定 的影响,贡献率为 7.6%.保定市主要受区域内部排 放影响,京津冀范围内贡献总计达 92.1%.廊坊的外 来贡献主要为位于东部的天津(21.2%)和沧州 (16.2%).北京 PM_{2.5}的本地来源为 46.6%,低于北京 市环保局公布的基于观测的受体模型源解析结果 (64%~72%)(北京市环保局,2014),这种差异是由 于研究的时空尺度不一致造成的.时间上,本文为冬 季一个月平均而后者为全年平均;空间上,本文的 贡献率是全北京市的平均,而后者是基于一个或多 个站点观测数据采用受体模型解析的结果.

京津冀北部 PM_{2.5}浓度整体较低,张家口、承德 和秦皇岛的月均浓度分别为 59、76 和 83 μg·m⁻³(图 4).张家口的外来源主要是山西、内蒙古和北京,承 德则为唐山、内蒙古、北京、天津.秦皇岛受唐山的影 响最大,贡献率高达 27.6%.





Fig.4 Local and regional source contributions to monthly averaged $PM_{2.5}$ concentrations at surface (a) and the 800 m (b) layer, the purple line stands for monthly averaged $PM_{2.5}$ concentration

4.2 京津冀各城市高空 PM_{2.5}污染来源分析

本文所指的高空特指模式第5层,约为800 m. 通过高空层污染物来源分析可更深入地了解污染物的区域输送情况.从图4可以看出,在高空PM_{2.5}的来源与近地面截然不同,最为明显的特点是京津 冀高空 PM_{2.5}的外来贡献占比明显增大(约2/3).邯 郸、邢台、沧州、衡水和张家口的最大 PM_{2.5}污染来源 均在京津冀区域以外,共有7个城市的最大贡献率 并非本地源(表5).其中,5个城市最大 PM_{2.5}污染来 源在京津冀区域以外,河南是邯郸、邢台和衡水 3 个 城市高空 PM_{2.5} 污染的主要来源,贡献率分别为 31.5%、21.9和20.8%,山东省对沧州高空 PM_{2.5}贡献 占 23.8%,山西对张家口影响最大,贡献达 21.7%.

结合近地层 PM_{2.5}污染来源分析结果可见,除风 场作用以外,PM_{2.5}的来源在近地层受到目标区域所 处地理位置的重要影响,通常临近省市对其污染贡 Table 5

献较大.而在高空层,污染物混合得更为均匀,长距 离输送作用相对更显著.

表 5 京津冀各城市高空(约800m)PM_{2.5}浓度来源贡献率

ource contributions of tagged regions to mor	nly averaged PM25 concentrations	of 13 cities in BTH areaat the 800 m layer
--	----------------------------------	--

杜古	北古	工油	东南部			中部				北部			
	北京	大伴	邯郸	邢台	衡水	沧州	石家庄	保定	廊坊	唐山	张家口	承德	秦皇岛
北京	28.8%	5.0%	0.4%	0.6%	0.9%	1.2%	0.6%	1.7%	7.2%	5.1%	3.3%	11.8%	2.6%
天津	8.8%	17.7%	0.7%	1.0%	1.6%	3.8%	0.8%	2.6%	7.6%	11.5%	1.7%	6.1%	5.9%
邯郸	0.8%	1.8%	17.8%	9.5%	4.5%	2.4%	4.4%	3.1%	2.4%	1.2%	0.5%	0.5%	1.0%
邢台	1.0%	2.4%	8.1%	18.7%	6.7%	2.9%	7.2%	4.4%	3.4%	1.5%	0.6%	0.6%	1.2%
衡水	2.1%	4.2%	3.0%	5.7%	13.7%	5.5%	4.9%	4.4%	5.3%	2.7%	0.5%	0.7%	1.9%
沧州	4.1%	8.0%	1.8%	2.6%	5.1%	14.2%	3.1%	5.4%	8.0%	5.0%	0.6%	1.8%	3.5%
石家庄	1.0%	2.2%	4.1%	7.3%	5.8%	2.9%	29.3%	10.1%	3.6%	1.6%	1.3%	0.9%	1.2%
保定	8.6%	6.6%	2.9%	4.5%	5.4%	6.9%	13.3%	30.7%	13.5%	3.7%	6.0%	2.5%	2.5%
廊坊	7.1%	5.3%	0.6%	0.9%	1.2%	2.2%	0.9%	3.0%	10.2%	3.7%	1.3%	2.3%	2.0%
唐山	2.9%	5.8%	0.1%	0.2%	0.4%	1.0%	0.1%	0.3%	1.9%	23.9%	0.3%	6.5%	20.3%
张家口	7.0%	1.4%	0.1%	0.1%	0.3%	0.6%	0.2%	1.4%	1.8%	1.1%	17.8%	6.3%	0.8%
承德	1.4%	0.9%	0	0	0.1%	0.1%	0	0	0.4%	2.1%	0.1%	23.9%	3.8%
秦皇岛	0.2%	0.4%	0	0	0	0.1%	0	0	0.1%	2.9%	0	1.3%	17.3%
内蒙	3.3%	0.8%	0.2%	0.3%	0.3%	0.4%	0.6%	1.2%	0.9%	0.9%	23.6%	12.7%	1.4%
辽宁	0.1%	0.3%	0	0	0.1%	0.1%	0	0	0.1%	1.3%	0	0.4%	4.2%
山西	5.9%	4.1%	11.1%	9.6%	5.7%	3.9%	14.7%	10.1%	5.1%	2.9%	21.7%	3.3%	2.3%
山东	7.7%	15.4%	8.4%	9.7%	17.4%	23.9%	4.8%	8.1%	13.1%	12.5%	1.8%	5.8%	10.7%
河南	2.0%	7.4%	31.5%	21.9%	20.8%	15.4%	9.9%	6.6%	7.5%	4.9%	2.8%	2.2%	4.6%
其他	7.2%	10.3%	9.2%	7.4%	10.0%	12.5%	5.2%	6.9%	7.9%	11.5%	16.1%	10.4%	12.8%

4.3 典型城市 PM2.5 污染来源分析

为了厘清低排放城市 PM_{2.5}污染来源,更深入了 解污染排放量较大的城市对周边地区的影响,分别 选取邢台、石家庄和唐山 3 个城市作为典型做进一 步分析.





Fig.5 Time series of source contributions of tagged regions to surface ${\rm PM}_{2.5}$ in Xingtai

一次 PM_{2.5} 排放总量在京津冀 13 个城市中排名第 6,而 PM_{2.5} 浓度月均值仅次于石家庄.图 5 给出了 2013 年 1 月污染期间,邢台市 PM_{2.5}来源贡献率的 逐日时间变化.邢台本地和周边省市贡献率受天气 条件的显著影响,如 1 月 20 日,邢台为降雪天气(中 雪到小雪),本地污染贡献较小,周边城市贡献达到 全月最大(67.9%).整体上周边城市和省份对邢台 的月均贡献比例相当,外地贡献总和介于 52.6%~ 85.6%.整个 1 月期间,山东对邢台均有较为稳定的 贡献,平均为 12.5%.

污染排放量较大且受本地影响显著的城市以 石家庄和唐山为典型.2013年1月京津冀近地面平 均风速较小,静稳天气对地面污染物扩散极为不利. 如图 6 所示,石家庄的污染贡献主要集中在本地并 逐渐向外围扩散,污染范围覆盖整个河北南部并可 延伸至山西东部以及河南.唐山本地贡献最高可达 70%以上,周边城市以东边的秦皇岛和北边的承德 受其影响最大,天津和北京东部也受到一定的影响 $(2\% \sim 10\%).$



图 6 石家庄(a)、唐山(b) 排放对近地面 PM_{2.5}浓度贡献空间分布

Fig.6 Spatial distribution of monthly average contributions from emissions of Shijiazhuang(a) and Tangshan (b) to surface $PM_{2.5}$ concentrations of BTH and its surrounding areas (black arrow represents wind vector, Unit: $m \cdot s^{-1}$)

附

5 结论(Conclusions)

利用 PM_{2.5}日均浓度观测资料和 NAQPMS 模式 模拟数据做对比验证,结果表明,模式能够合理反 映实际浓度的变化特征.结合 NAQPMS 模式在线源 追踪技术,计算分析了 2013 年 1 月京津冀各城市 PM_{2.5}浓度的主要来源,重点分析城市及区域间污染 物的输送和相互贡献率,主要得出以下结论:

1)京津冀东南部地区的排放大、污染最为严重,该地区近地层 PM_{2.5}浓度外来贡献主要为山东和 河南,月均贡献率最大可达 25.2%,高空(800 m)可 到 31.5%.

2)京津冀各城市近地面本地贡献范围介于 29.8%~63.7%,高空以外来贡献为主,多数城市外 地贡献高达80%,其中5个城市最大PM_{2.5}污染来源 在京津冀区域以外.各城市来源追踪结果显示,邢台 本地排放贡献最小;唐山最大,日均贡献最高可达 70%以上.

3) 典型城市 PM_{2.5} 污染来源分析表明,除本地 外,邢台高浓度 PM_{2.5} 污染主要来源于山东、河南及 本省的石家庄和衡水,外省贡献总和与区域内其他 城市贡献总和比例相当.

根据本文研究结果,建议京津冀将其东南部作 为重点防控区,加强减排力度,同时将山东、河南等 省份纳入区域联防联控范围,这将有效改善京津冀 地区的整体空气质量. 责任作者简介:陈焕盛(1985—),男,助理研究员,研究方向 为区域-城市空气质量预报预警,全球大气化学输送模式 研制.

$$\vec{\mathbf{x}} \text{ (Appendix) :}$$

$$MB = \frac{1}{N_{i}} \sum_{i=1}^{N} (M_{i} - O_{i})$$

$$r = \frac{\sum_{i=1}^{N} (M_{i} - \overline{M}) (O_{i} - \overline{O})}{\left[\sum_{i=1}^{N} (M_{i} - \overline{M})^{2} (O_{i} - \overline{O}^{2}\right]^{1/2}}$$

$$NMB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} [(M_{i} - O_{i})/O_{i}]$$

$$RMSE = \left[\frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} [(M_{i} - O_{i})^{2}\right]^{1/2}$$

$$MFB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \frac{(M_{i} - O_{i})}{(M_{i} + O_{i})/2}$$

$$MFE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \frac{|M_{i} - O_{i}|}{(M_{i} + O_{i})/2}$$

式中,N表示样本总数,M_i表示第*i*个时次的模拟值,O_i表示 第*i*个时次的观测值.

参考文献(References):

- Athanasopoulou E, Tombrou M, Pandis S N, et al. 2008. The role of sea-salt emissions and heterogeneous chemistry in the air quality of polluted coastal areas [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 8 (19): 5755-5769
- 北京市环保局. 2014. 北京市 PM_{2.5}来源解析正式发布[OL]. 北京: 北京市环保局. 2014-04-16. http://www.bjepb.gov.cn/bjepb/ 323474/331443/331937/333896/396191/index.html

Boylan J W, Russell A G. 2006. PM and light extinction model

performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air

- quality models [J]. Atmospheric Environment, 40(26): 4946-4959 陈焕盛,王自发,吴其重,等. 2010. 亚运时段广州大气污染物来源数 值模拟研究[J]. 环境科学学报,30(11): 2145-2153
- 高健,张岳翀,王淑兰,等. 2012. 北京 2011 年 10 月连续灰霾过程的 特征与成因初探[J].环境科学研究,25(11): 1201-1207
- 高怡,张美根. 2014. 2013 年 1 月华北地区重雾霾过程及其成因的模 拟分析[J]. 气候与环境研究,19(2): 140-152
- Ge B Z, Wang Z F, Xu X B, et al. 2014. Wet deposition of acidifying substances in different regions of China and the rest of East Asia: Modeling with updated NAQPMS [J]. Environmental Pollution, 187: 10-21
- 韩力慧,庄国顺,孙业乐,等.2005.北京大气颗粒物污染本地源与外 来源的区分——元素比值 Mg/Al 示踪法估算矿物气溶胶外来源 的贡献[J].中国科学 B 辑:化学,35(3):237-246
- 韩霄,张美根.2014.2013 年 1 月华北平原重霾成因模拟分析[J].气 候与环境研究,19(2): 127-139
- 郝吉明,程真,王书肖.2012.我国大气环境污染现状及防治措施研究 [J].环境保护,(9):17-20
- 何建军,余晔,刘娜,等.2014.复杂地形区陆面资料对 WRF 模式模拟 性能的影响[J].大气科学,38(3):484-498
- 胡敏,唐倩,彭剑飞,等.2011.我国大气颗粒物来源及特征分析[J].环 境与可持续发展,(5):15-19
- Huang K, Zhuang G, Wang Q, et al. 2014a. Extreme haze pollution in Beijing during January 2013: chemical characteristics, formation mechanism and role of fog processing [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 14(6): 7517-7556
- Huang R J, Zhang Y L, Bozzetti C, et al. 2014b. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China [J]. Nature, 514(7521): 218-222
- Ji D S, Li L, Wang Y S, et al. 2014. The heaviest particulate air-pollution episodes occurred in northern China in January, 2013: Insights gained from observation [J]. Atmospheric Environment, 92: 546-556
- Kurokawa J, Ohara T, Morikawa T, et al. 2013. Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 13(21): 11019-11058
- 李杰,杨文夷,陈焕盛,等.2014.东亚大气可吸入颗粒物时空分布的 数值模拟研究[J].环境科学学报,34(3):548-557
- Li J, Wang Z F, Akimoto H, et al. 2008. Near-ground ozone source attributions and outflow in central eastern China during MTX2006 [J].Atmospheric Chemistry and Physics,8(24): 7335-7351
- Li J, Wang Z F, Huang H L, *et al*. 2013. Assessing the effects of transboundary aerosol transport between various city clusters on regional haze episodes in spring over East China [J].Tellus B,65: 1-14
- 罗淦,王自发.2006.全球环境大气输送模式(GEATM)的建立及其验

证[J].大气科学,30(3): 504-518

- Odum J R, Jungkamp T P W, Griffin R J, et al. 1997. The atmospheric aerosol-forming potential of whole gasoline vapor [J]. Science, 276 (5309): 96-99
- 王开燕,张仁健,王雪梅,等.2006.北京市冬季气溶胶的污染特征及 来源分析[J].环境化学,25(6):776-780
- Wang L T, Wei Z, Yang J, et al.2014. The 2013 severe haze over southern Hebei, China: model evaluation, source apportionment, and policy implications [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 14 (6): 3151-3173
- 王茜,伏晴艳,王自发,等.2010.集合数值预报系统在上海市空气质 量预测预报中的应用研究[J].环境监控与预警,2(4):1-6;11
- 王书肖,陈瑶晟,许嘉钰,等.2010.北京市燃煤的空气质量影响及其 控制研究[J].环境工程学报,4(1):151-158
- 王雪松,李金龙,张远航,等.2009.北京地区臭氧污染的来源分析[J]. 中国科学 B 辑: 化学,39(6): 548-559
- 王跃思,姚利,刘子锐,等.2013.京津冀大气霾污染及控制策略思考 [J].中国科学院院刊,28(3):353-356
- 王跃思,姚利,王莉莉,等.2014a.2013年元月我国中东部地区强霾污染成因分析[J].中国科学:地球科学,44(1):15-26
- 王跃思,张军科,王莉莉,等.2014b.京津冀区域大气霾污染研究意 义、现状及展望[J].地球科学进展,29(3):388-396
- 王自发,谢付莹,王喜全,等.2006.嵌套网格空气质量预报模式系统的发展与应用[J].大气科学,30(5):778-790
- 王自发, 庞成明, 朱江, 等. 2008. 大气环境数值模拟研究新进展[J]. 大 气科学, 32(4): 987-995
- 王自发,李杰,王哲,等.2014.2013 年 1 月我国中东部强霾污染的数 值模拟和防控对策[J].中国科学:地球科学,44(1):3-14
- Wang Z F, Maeda T, Hayashi M, et al. 2001. A nested air quality prediction modeling system for urban and regional scales: Application for high-ozone episode in Taiwan [J]. Water, Air, and Soil Pollution, 130(1/4): 391-396
- 吴兑,廖碧婷,吴蒙,等.2014.环首都圈霾和雾的长期变化特征与典型个例的近地层输送条件[J].环境科学学报,34(1):1-11
- Wu Q Z, Wang Z F, Gbaguidi A, et al. 2011. A numerical study of contributions to air pollution in Beijing duringCAREBeijing-2006 [J].Atmospheric Chemistry and Physics, 11(12): 5997-6011
- Wu Q Z, Wang Z F, Chen H S, et al. 2012. An evaluation of air quality modeling over the Pearl River Delta during November 2006 [J]. Meteorology and Atmospheric Physics, 116(3/4): 113-132
- 杨文夷,李杰,陈焕盛,等.2014.东亚边界层臭氧时空分布的数值模 拟研究[J].中国环境科学,34(7):1633-1641
- 杨欣,陈义珍,刘厚凤,等.2014.北京 2013 年 1 月连续强霾过程的污染特征及成因分析[J].中国环境科学,34(2):282-288
- 张强, 耿冠楠, 王斯文, 等. 2012. 卫星遥感观测中国 1996~2010 年氨 氧化物排放变化[J]. 科学通报, 57(16): 1446-1453