



环境空气质量基准和标准制定方法及其对我国的启示

王永越¹, 张芷宁¹, 罗震宇¹, 何廷堃¹, 刘欢^{1*}, 段雷¹, 陆克定², 刘诚³, 李晓倩⁴, 吴丰昌⁴, 张远航², 刘文清⁵, 贺克斌^{1*}

1. 清华大学环境学院, 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 国家环境保护大气复合污染来源与控制重点实验室, 北京 100084;

2. 北京大学环境科学与工程学院, 北京 100091;

3. 中国科学技术大学精密机械和精密仪器系, 合肥 230026;

4. 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 100085;

5. 中国科学院合肥物质科学研究院, 合肥 230031

* 联系人, E-mail: liu_env@tsinghua.edu.cn; hekb@tsinghua.edu.cn

2022-02-02 收稿, 2022-05-24 修回, 2022-05-26 接受, 2022-05-30 网络版发表

中国工程院战略研究与咨询项目(2021-JZ-05)、国家自然科学基金(41822505)和英国皇家学会牛顿高级学者基金(NAF/R1/201166)资助

摘要 我国已经在大气污染治理方面取得了显著成效, 空气质量明显改善, 积累了先进的空气污染治理经验. 现阶段, 我国应逐步开启对环境空气质量基准的研究. 本文详细介绍了国际上主要的三大类环境空气质量基准和标准的制定原则与方法, 分别基于人体健康、植被暴露以及土壤/水体生态系统化学指标; 汇总比较了国际上较常采用的一系列评价指标. 在此基础上, 对我国上述三方面的本土化基础研究进行综述, 分析了我国开展环境空气质量基准研究的原则性路径, 包括工作初期和完善体系的预期架构, 指出工作初期制定基准的工作可以适当从简, 但在工作基础逐渐丰富后, 应当逐步细化的工作原则. 此外, 本文还对国内外环境空气标准的制定策略中采纳基准的情况进行了简要的比较和梳理, 结合我国环境空气达标现状、管理体系和工作基础, 面向“美丽中国”和“健康中国”的宏伟目标, 提出在科学构建环境空气质量评估体系的过程中, 既要考虑我国本土人群健康与生态独特的安全红线, 又要注意基准向标准转化过程可能带来的管理难点, 从而确保环境空气污染防治攻坚战稳步推进并取得胜利.

关键词 环境空气质量, 基准制定, 人体健康, 植被暴露, 土壤/水体生态系统化学指标

工业革命以来, 环境空气污染已经对人类健康造成了巨大的威胁, 世界上约91%的人口生活在空气污染水平超过世界卫生组织(World Health Organization, WHO)指导限值的地区. 据2021年WHO的最新数据, 每年空气污染导致的全球过早死亡人数超过424万人, 由于空气污染所导致的死亡率最高的国家一般是发展中国家, 主要分布在东欧、中非以及东亚、南亚、中亚等地区^[1]. 国际公认且被绝大多数国家广泛列入法规监管的6种环境空气常规污染物为二氧化硫(SO₂)、二氧化氮(NO₂)、一氧化碳(CO)、颗粒物(particulate mat-

ter, PM, 包括PM_{2.5}、PM₁₀等)以及臭氧(O₃). 为解析这6种常规污染物对人体健康慢性/急性的影响, 世界范围内开展了一系列研究, 对SO₂^[2,3]、NO₂^[2,4~6]、PM_{2.5}^[6~13]、PM₁₀^[6,8,13~18]、CO^[19]以及O₃^[2,5,6,10,20,21]的浓度水平、毒性效应与特定疾病(如中风、心肌梗塞、心肌衰弱等心血管疾病, 哮喘、肺阻塞、肺癌等呼吸系统疾病)发病率、住院率、死亡率之间的相关性进行了细致的研究. 为了减少世界上因空气污染暴露而导致早死的人群数量, 基于空气污染物低于某个阈值时不会对人体健康造成明显损害的原则, WHO在2005年发布的

引用格式: 王永越, 张芷宁, 罗震宇, 等. 环境空气质量基准和标准制定方法及其对我国的启示. 科学通报, 2022, 67: 3324–3339

Wang Y Y, Zhang Z N, Luo Z Y, et al. Ambient air quality baseline and standard formulation methods and their enlightenment for China (in Chinese). Chin Sci Bull, 2022, 67: 3324–3339, doi: [10.1360/TB-2022-0157](https://doi.org/10.1360/TB-2022-0157)

《空气质量导则》(Air Quality Guidelines, AQG)对SO₂、NO₂、PM以及O₃的指导值(AQG值)作出了明确的要求,并为那些在短期内无法达到指导值的国家特别设定了过渡期目标(interim target, IT)值用作阶段性空气质量目标供其参考^[22]。2021年9月,结合健康效应研究的前沿动态,WHO发布了最新版的AQG,对6项常规空气污染物的指导值和IT值进行了一系列的修订,其中大部分修订都加严了污染物的最低限值^[23]。

除了对人体造成健康负担,空气污染还会对生态系统造成一定的影响^[24,25]:过度的空气污染会造成物种密度与种群丰富度下降^[26];S和N沉降(酸沉降)会导致严重的土壤和水体酸化与富营养化^[27],从而对陆生和水生生态系统、生物多样性以及温室气体排放造成负面影响^[28];而O₃的持续升高会对陆地生态系统的群落组成造成影响,特别是在O₃浓度达到或超过潜在植物毒性水平的地区,生物多样性可能会面临较高的风险^[29]。此外,空气污染也会给经济发展和农业生产造成一定的损失^[30,31]:经济发展方面,Zhang等人^[32]估计2013年我国由硫沉降造成的物质损失高达321.65亿人民币,占国内生产总值(gross domestic product, GDP)的0.057%。而根据Feng等人^[33]的研究,我国2015年O₃导致的总损失(包括健康损失折算)高达7692.1亿美元,占当年GDP的7%。农业生产方面,Mills等人^[34]指出,O₃污染使北半球小麦产量平均下降9.9%,南半球减产6.2%,相当于全球粮食总损失约 8.5×10^5 Tg。Zhao等人^[35]则估计我国三大经济作物因O₃所导致的损失从2015年的240亿美元猛增至2018年的450亿美元,近乎增加了一倍,年均损失达321亿美元。因此,无论是从人体健康、生态效应还是经济发展的角度,追求良好的环境空气质量都是一个重要且迫切的课题。

要更好地掌握环境质量对空气污染水平的响应关系,就需要对环境空气质量基准开展深入全面的研究。环境空气质量基准指环境空气中污染物的浓度水平不会对环境造成损害的阈值,表征了环境本身对大气污染物最大限度的承载能力,因此是环境空气质量标准的重要制定依据。我国自2013年起在开展了一系列大气污染防治工作后,环境空气质量得到了全面改善,其污染状况与10年前存在较大的变化,存在需要对标准进行修订的可能性。同时,国际上对大气污染物的健康效应阈值有了新认识(如WHO AQG 2021),而现有的环境空气污染物阈值对我国的适用性又有待商榷。基于这个契机,有必要着手开展适用于我国的环境空

气质量基准制定工作,为我国环境空气标准的发展和完善提供有力的科学依据。

1 基准和标准制定原则和方法回顾

主流的与大气污染物浓度相关的基准制定原则有三大类,分别是基于人体健康、植物暴露以及土壤/水体化学指标对大气污染物浓度水平进行最低限度的划线。如前所述,人体健康是制定国际环境空气质量基准最广泛采用的方法,而后两者则多局限于科学研究或应用于土壤、水环境基准的制定,较少应用于国家环境空气质量基准的制定当中。基于人体健康的基准制定方法,主要是基于人群健康研究,即将目标人群按空气污染的暴露程度分组,对实验组与对照组之间成员发病及死亡发生的情况进行比较,从而判定空气污染与公众健康之间的关联。通过汇总世界范围内大量的队列研究,根据现有的毒理学及流行病学研究成果深入分析大气污染物的人体健康效应,最终提出在不同暴露时间内不会对人体造成健康负担至出现明显致病的污染物浓度水平作为阈值。基于植物暴露的基准制定方法,主要是通过调查植被对大气污染物的响应情况,包括影响树木和(半)天然植被的生长变化、作物产量(质量和数量)、(半)天然植被的花朵数和种子产量,以及对霜冻或干旱等非生物胁迫、害虫和疾病等生物胁迫的脆弱性变化等,确定恰好不会对植物本身产生明显负面影响的污染物浓度水平作为阈值。基于土壤/水体生态系统化学指标的基准制定方法,主要是通过估算土壤/水环境中酸和碱的沉降、滞留以及生物交互,衡量酸碱动态变化,以恰好不会对环境产生酸化后果的污染物浓度作为阈值。基于上述基准制定流程,可以制定相应的参考性标准与行政标准,指导空气质量改善工作的开展。

1.1 基于人体健康的环境空气质量基准与标准制修订

基于人体在大气环境中暴露的急性或慢性致病风险,WHO将污染物急性风险的暴露时间界定在24 h(短期),而慢性风险的暴露时间则为1年(长期)。无论是长期或是短期暴露,WHO对人体健康暴露具有一套完整且严谨的评估流程,制定了一系列参考文件。其中,AQG基于WHO的基准研究制定,其制定流程可以划分为AQG分等级开发协议中概述的8个步骤,这些步骤可以作为我国环境空气质量基准制定的参考步骤。

1.1.1 长期暴露

WHO首先根据各污染物的剂量-效应关系评估对人体健康的相对风险,采用每增加 $10\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ 的浓度所导致的风险比率(hazard ratio, HR)或相对风险(relative risk, RR)进行表征,两者中由于HR可以表征人群所受到的瞬时风险,相较于只能衡量累积风险的RR,在可获得的情况下,HR优先被WHO考虑.特别地,对于 O_3 ,由于其浓度日变化较大,习惯上是计算8 h平均浓度的日最大值,而不是24 h均值.AQG 2021特别增加了 O_3 的暖季浓度指导值和过渡值,这些值相比年均值而言更严格.根据所汇总的剂量-效应关系,WHO进而确定观测的最低暴露水平,一般以暴露浓度分布第5百分位数确立最低暴露水平.其中,WHO根据一系列工作原则,评价、筛选国际上现有的队列研究,基于统计学分析将各研究的效应值合并,即进行荟萃(Meta)分析,最后得到污染物产生暴露效应的最低浓度,并与前述初步确定的最低暴露水平进行比较,通常结果可比即合理.

在确定将与长期接触污染物有关的不利健康结果风险增加视为相关,并初步确定最低暴露水平的前提下,通过分析各健康结局(通常为全原因与特定原因死亡率)与污染物暴露水平的相关性和起始点浓度,结合相关研究的风险指标如HR/RR值,对各分析结果进行确定性的评价.一般而言,各特定原因死亡率的暴露起始点浓度不会超过全原因死亡率的暴露起始浓度.在这一步骤中,可能会根据剂量-效应函数(concentration-response function, CRFs)的形状对剂量-效应关系作出调整,但对那些没有任何研究明确给出CRFs的污染物,一般不会对剂量-效应关系进行进一步的改进.

最后,除了给出最低暴露水平作为指导值,WHO还会对评估证据的确定性、新证据的可采纳性以及证据所表现的因果关系进行评估.评估证据的确定性方面,WHO将所有汇总的研究纳入Meta分析的同时,会对各研究的偏倚性进行认定,具有较高偏倚风险的研究会被排除出Meta分析,最后得出一个额外的最低暴露水平与未排除该研究的Meta分析结果进行比对,以观察该研究的偏倚性是否对最终的最低暴露水平造成了较大影响,从而确定是否纳入最终的考虑.在新证据的可采纳性方面,WHO会就最新的研究加入Meta分析后,对全原因死亡率的联合效应估计是否与之前相同进行比较.在因果关系方面,WHO对被汇总的文献结果进行优先度排序,评估所有文献的因果关系,一般而言,被列入AQG参考研究的因果关联都被评估为因果

关系或可能因果关系.特别地,由于 O_3 长期暴露因果分析的确定性较低,仅被认为是“可能的因果关系”(呼吸系统影响)或在2016年成果优先次序框架中“暗示有因果关系”(总死亡率),但依然采纳了这些研究进行参考.

基于以上步骤,WHO首先设定了6种常规污染物的指导值,进一步再确定各污染物的过渡时期目标值.AQG 2021基于2005版本和汇总的最近成果,对IT和指导值进行了增设和修改.IT的划分没有具体介绍,推测可能是通过对与指导值的暴露死亡率比值进行划线确定.WHO同时也指出,在较高的浓度下CRFs或许不再是线性的,因此在较高浓度IT值的死亡率估算上会存在可能的偏差.

1.1.2 短期暴露

AQG对短期暴露的评估方法与长期暴露基本一致,因此不再赘述,但在确立最低暴露水平的方法这一步骤有一定的区别.长期暴露中,一般是以暴露浓度分布的最低第5百分位数初步确立最低暴露水平,但在空气污染浓度日变化影响的时间序列研究中,最低浓度往往很低.因此,这些每日浓度分布的第5百分位数不能作为指导值的起点浓度.根据WHO相应的导则,确定日浓度分布的第99百分位数对应于短期暴露指导值,而年均浓度则相当于长期暴露指导值水平.一旦年均浓度达到建议的长期暴露指导值,预计日浓度水平将比年均浓度高不超过3~4倍.因此,WHO选择根据长期暴露指导值,以一定比例关系换算得到短期暴露指导值.

以 $\text{PM}_{2.5}$ 为例,建议 $\text{PM}_{2.5}$ 的长期暴露指导值为 $5\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$,而在全年逐小时浓度的共同分布中,第99百分位数大约是 $\text{PM}_{2.5}$ 年均值的3倍,因此设定短期 $\text{PM}_{2.5}$ 的暴露水平为 $15\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$.

关于 O_3 ,一些研究发现,暖季均值与日最大8 h浓度年均值的比值为1.24左右^[36,37],而日最大8 h浓度为年均值的2倍左右^[38].因此,利用这个比值,所选择的暖季指导值为 $60\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$,除以1.24得到对应的年平均为 $48.4\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$,根据年均值的2倍得到日最大8 h浓度为 $97\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$,因此提出 O_3 的短期暴露指导值为 $100\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$.

关于 SO_2 ,多国多城市协同行动研究网络(Multi-Country Multi-City Collaborative Research Network, <https://mccstudy.lshtm.ac.uk/>)显示,世界各地数百个城市的 SO_2 日浓度第99百分位与年均浓度之间的比例为3.9,但缺少了长期暴露指导值作为背景进行换算.因此,按照与建议的长期暴露指导值相同的逻辑,将短期

SO₂指导值水平的起点定为40 μg/m³。需要注意的是,该指导值宽松于2005年所设定的20 μg/m³。虽然AQG 2005也是基于SO₂短期暴露效应,但还是由于以下考虑,没有按照正式方法给出指导值: (1) SO₂在因果关系中的不确定性; (2) 达到“确定不产生任何影响的水平”的现实可行性很小; (3) 采取谨慎的预防措施,需要提供比2000年公布导则所提供的更大程度的保护。

相比之下, AQG 2021的导则开发团队认为, SO₂的短期暴露指导值设定为40 μg/m³更有针对性,也与AQG所述其他污染物的短期空气质量总水平建议所遵循的方法相一致。

相比AQG 2005, WHO基于一项关于短期CO浓度对心肌梗死住院患者影响的新评估^[19]在AQG 2021中新增了CO的短期暴露指导值,而对长期暴露则依然不设置指导值。可能的原因是, CO由于其毒理学上完全可逆恢复的特征,以及根据其他污染物年浓度指导值不高于日浓度指导值,没有必要对其进行长期暴露的指导值设置。

1.2 基于植被暴露的环境空气质量基准

为了量化大气污染物对植被的影响程度,联合国欧洲经济委员会(the United Nations Economic Commission for Europe, UNECE)对植被的临界水平进行了定义: 植被的临界水平是在大气中存在一定浓度的某种污染物时,植物对该污染物的累积暴露量或累积气孔通量恰好不会对植物本身产生明显的负面影响,而超过这种浓度水平就可能对植被产生直接且明显的不利影响; 并提供了植被对大气中污染物的临界水平和计

算超临界负荷的详细方法^[39]。目前,关于植物对大气污染物临界水平的研究着重于常规大气污染物如SO₂、NO_x、NH₃以及O₃。对SO₂、NO_x以及NH₃, UNECE提出了基于浓度的临界水平的评估建议(表1); 而对O₃,除了基于累积浓度的临界水平评估方法外,还特别提出了基于累积气孔通量的临界水平评估方法。

对SO₂, 依据植被对SO₂的敏感程度,划分了4种植被类型的临界水平并给出了计算的时间条件,按对SO₂敏感度从高到低排序为: 蓝藻地衣、森林生态系统、(半)天然植被、农作物。

对NO_x, 其临界水平根据NO和NO₂浓度之和来确定。UNECE指出,目前的研究暂时无法将二者单独的临界水平进行区分。除了传统被认为是负面影响的毒性效应, NO_x对植物的生长促进,尤其是对(半)天然植被,也同样被认为是不利的,因为生长促进可能会改变种间竞争关系,从而间接性地对植物生长产生负面影响(例如,改变了物种平衡性,一些较不敏感的物种可能会在竞争中胜出)。UNECE没有为植被类别设定单独的临界水平,但建立了植被对NO_x的敏感性,排序由高到低为: (半)天然植被、森林、作物。1992年, UNECE在Egham研讨会上以保护95%的物种为阈值,划定了NO_x的临界水平。但在对(超)临界水平进行作图时, UNECE建议只使用更可靠的年均值,因为NO_x的长期暴露影响被认为比短期影响更重要。

对NH₃, 与NO_x类似, 尽管NH₃短期内可能促进植物生长,但长期可能导致对非生物(干旱、霜冻)和生物胁迫的敏感性增加。因此,其长期影响同样被认为比短期影响更显著。目前还没有对集约管理的农业草地/牧场

表 1 各类型植被对SO₂、NO_x、NH₃的临界水平^[39]

Table 1 Critical levels of different vegetation types for SO₂, NO_x and NH₃^[39]

污染物	植被类型	临界水平(μg/m ³)	评价时间阶段
SO ₂	蓝藻地衣	10	年平均
	森林生态系统	20	年平均; 半年平均(8月至次年3月)
	(半)天然植被	20	年平均; 半年平均(8月至次年3月)
	农作物	30	年平均; 半年平均(8月至次年3月)
NO _x ^{a)}	全类型 ^{b)}	30	年平均
	全类型	75	24 h平均
NH ₃	地衣和苔藓植物 ^{c)}	1	年平均
	高等植物 ^{d)}	3	年平均
	高等植物	23	月平均

a) 为NO与NO₂加和,但以NO₂进行表示; b) 未根据植被类型进行NO₂的临界水平区分; c) 包括以地衣和苔藓植物为不可分割的关键物种的生态系统; d) 为高等植物(包括石楠、半天然草地和森林地面植物群)明确设定了2~4 μg/m³的不确定范围,供不同的评估环境进行灵活参考

和耕地作物设定临界水平,因为它们通常被认为仅释放氨而不消耗氨。

对O₃,其短期暴露和长期暴露均有可能对植被产生程度不一的不良影响。不同于其他3种污染物的暴露水平与大气浓度直接相关,O₃的暴露水平与植被对O₃气孔吸收(气孔通量)的关系更强。基于这一结论,UNECE建立了O₃气孔交换沉积模型(deposition of O₃ for stomatal exchange, DO₃SE)来解释植物气孔的开启与关闭随气候、土壤和植物因素的变化,用于确定超出臭氧植物毒性剂量(phytotoxic O₃ dose Y, POD_Y)的O₃暴露水平,其中Y为环境浓度(测量值),而POD_Y为指定时间段内气孔对O₃的累积吸收(阈值通量)。当某一地区在缺少气象与植被的相关信息而仅能提供O₃浓度数据的情况下,AOT40也可用于代替POD_Y来对植被在O₃环境中暴露水平进行评估。AOT40是白天O₃浓度超过40 ppb (1 ppb=2.14 μg/m³)时,O₃每小时平均浓度与阈值40 ppb之间的差值在规定时间段内的累积。显然,基于通量的POD_Y指标在机理上优于基于浓度的AOT40暴露指数,但操作上AOT40更方便易行,对输入数据的要求也更低。

DO₃SE模型又分为两种子模型:特定物种风险评估采用POD_YSPEC通量模型(需要输入O₃浓度、温度、湿度、光照、土壤湿度或降水),是最具有生物相关性的模型;植物种类指示性风险分析采用POD_YIAM通量模型(需要输入O₃浓度、温度、湿度、光照)。以上两种方法会根据植物的种类给出不同的Y值进行评估,均具有一定的生物相关性;而采用AOT40,则只需要输入O₃浓度以及光照时间,是生物相关性最低的评估方法,一般在O₃浓度较高地区使用。UNECE提供了各种植物在模型中的暴露参数化方案以及临界水平,由于细节过于繁琐,本文对POD_Y的相关表格不进行引用。相应地,基于AOT40的临界水平评估模型对农业和园林作物、森林和(半)自然植被定义了临界水平,对不同植被类型的AOT40,UNECE也给出了不同的临界水平参考(表2)。

此外,除了UNECE给出的上述两种评价方法,其他组织和机构也给出了各自的O₃植被暴露水平评估方法(表3)。美国环境保护署(U.S. Environmental Protection Agency, U.S. EPA)在1997年提出的SUM06方法,以60 ppb为阈值,但不对超出60 ppb相应时间段的浓度进行阈值扣除而是完整累积。2000年,U.S. EPA又提出了对

表 2 基于AOT40的O₃植被临界水平^[39]

Table 2 Vegetation critical level of O₃ based on AOT40^[39]

植被类型		效应 (在临界水平的减产)	临界水平 (ppm h) ^{f)}	累积周期
作物	农业	粮食产量下降5% ^{a)}	3	3个月
	园林	水果产量下降5% ^{b)}	8	3个月
树木		总生物量下降5% ^{c)}	5	生长季节 ^{d)}
(半)天然植被	一年生植物主导	地上总生物量下降10%	3	3个月 ^{e)}
	多年生植物主导	地上总生物量/单物种盖度下降10%; 主导物种衰亡加速10%	5	6个月

a) 基于小麦; b) 基于番茄; c) 基于山毛榉与桦树; d) 生长季节的默认长度为6个月; e) 如果生长季节短于3个月,则以生长季节长度为准; f) 1 ppm h=2.14 mg h/m³

表 3 除AOT40外的其他基于大气浓度的植被暴露水平评估方法

Table 3 Other assessment methods of vegetation exposure levels based on atmospheric concentration except AOT40

方法	评估时段	效应阈值	评估周期	评估方式	有效评估数据占比要求
SUM06		0.060 ppm	每日	累积(不扣除阈值)	75% ^{b)}
			3个月 ^{a)}	年最大3月加和	
W126	8:00~20:00	17 ppm h ^{c)}	每日	指数公式换算	75% ^{b)}
			3个月 ^{a)}	年最大3月加和	
N100		0.100 ppm	每日	计数	

a) 对全年每连续3个月中的每日相应指数进行加和,取最大加和值; b) 对每日,评估区间内有效小时数不得少于75%,对每年的各个连续3个月区间,每个区间内有效天数不得少于75%; c) 由于对浓度进行加权,未设立效应阈值,但对最终计算得到的W126指数而言,超出17 ppm h意味着对生态植被的威胁

O₃浓度进行一系列换算的W126方法,其核心为按照每日各时间段对O₃浓度进行加权处理^[40]。W126通过累积和浓度加权的方法来体现高浓度O₃对植物具有更高的伤害,是一种更具生物学意义的方法。随着浓度的增加,W126将对测量值施加更大的权重。W126暴露指数由于比8 h平均健康相关暴露指数更适合用于保护植被的指标,被U.S. EPA推荐作为NAQQS的臭氧二级标准,以保护植被免受臭氧暴露,并最终确定阈值为17 ppm h。在此基础上,美国农业部(United States Department of Agriculture)还提出植被暴露在O₃的峰值浓度(每小时平均大于或等于0.100 ppm)时所受的损害会比仅受累积的低浓度暴露高得多,而W126没有办法对峰值时段提供额外的评价,尽管W126可以利用加权的方法对高浓度臭氧暴露进行衡量,但在几个小时或没有时间段高于0.100 ppm的情况下,依然有可能出现高季节性W126指数,因此提出了N100评估方法,即对臭氧浓度大于或等于0.100 ppm的小时数进行计算。一般而言,前述基于大气浓度的植被暴露水平评估方法因其相对简单且计算便捷,被采用得更为广泛。

1.3 基于土壤/水体生态系统化学指标的环境空气质量基准

环境空气中的污染物不仅可以通过直接暴露和呼吸作用对人群、动物以及植物造成危害,还可以以沉降的方式进入土壤和水体生态系统,从而产生间接危害。早在1981年,U.S. EPA在其发布的《颗粒物与二氧化硫空气质量基准》(*Air Quality Criteria for Particulate Matter and Sulfur Oxides*)(<https://nepis.epa.gov/Exe/ZyPURL.cgi?Dockey=9101H6ZC.txt>)中就已经基于pH、酸碱度等指标初步评估了大气污染物污染水平对水体和陆地生态系统的影响,并在后来得到了系统的发展。由于土壤和水体本身具有一定的自净能力,一定限度内的污染物沉降不会对陆生/水生生态系统造成破坏,但一旦超过某个阈值后,污染物的沉降将会显著改变土壤/水化学,从而对整个生态系统造成破坏^[41],这个沉降通量的阈值称为临界负荷^[42],有别于指示浓度阈值的临界水平。因此,对土壤/水体化学指标的评估可以反向对环境大气中污染物沉降通量(进而排放量)进行约束,从而确保生态系统的安全与稳定^[43]。一般而言,该方法主要考虑可以随降水沉降的污染物,如SO₄²⁻、NO₃⁻以及NH₄⁺(前者为硫沉降,后两者之和为氮沉降;实际还同时考虑它们的干沉降),而不成盐的

CO和O₃通常不被考虑在内。在U.S. EPA发布的《氮氧化物、硫氧化物以及颗粒物综合科学评估报告:生态基准》(*Integrated Science Assessment (ISA) for Oxides of Nitrogen, Oxides of Sulfur and Particulate Matter: Ecological Criteria*)(<https://cfpub.epa.gov/ncea/isa/recordisplay.cfm?deid=349473>)中,纳入了临界负荷的相关概念,系统阐述了大气环境中总N、总S以及颗粒物组分中N、S组分的跨介质传输对生态系统离子平衡造成的影响。

对NH₄⁺沉降,De Vries^[44]基于不同化学组成的沉降、叶渗出液和土壤溶液对树木的影响研究,采用NH₄⁺/Mg²⁺或者NH₄⁺/K⁺比例作为森林生态系统的化学指标,进行NH₄⁺临界负荷的计算。该化学指标的阈值采用NH₄⁺/Mg²⁺=NH₄⁺/K⁺=5,一般认为,土壤溶液的该比例超过阈值时,可能会对植物生长造成负面影响。

对SO₄²⁻和NO₃⁻沉降,为了防止降水中含有的酸性物质对地表生态系统,尤其是土壤和水体造成酸化,一般采用稳态法,基于沉降、土壤、植被和水文等数据,对地表土壤、水体的酸沉降临界负荷进行核算。美国大气沉降临界负荷科学委员会提出了3种不同类型临界负荷的估算方法^[45]:稳态质量平衡法(steady-state mass balance, SSMB)、经验临界负荷(empirical loads, EL)和目标负荷(target loads, TL)。SSMB方法是在假定生态系统处于稳定状态下,利用质量平衡公式进行临界负荷计算。EL法基于沉降梯度观测和控制实验结果,为每种植被类型指定临界负荷。TL法则是根据资源保护、减排的可行性或其他考虑情况,利用动态模型预测在给定的时间内,使敏感的生态系统组分得到保护或恢复正常水平所需的沉降负荷,可以设置为高于、低于或等于临界负荷,有时又被称为“动态临界负荷”。

三者中,SSMB法是采用得最为广泛的方法。可以单独考虑S或者N沉降,也可以考虑二者的联合沉降。对于森林土壤和地表水,当只考虑S沉降(即N沉降为0)时,超出量表示为总S沉降同S的最大临界负荷之间的差值;N则同理。而事实上,在大多数情况下需要考虑S和N的联合沉降^[46],此时需要考虑S的最大临界负荷(CLmaxS)、N的最大临界负荷(CLmaxN)、N和S各自的沉降,以及用土壤中长期的N去除过程(例如,N的吸收和固持)定义的N最小临界负荷(CLminN)。CLminN以下的N沉降输入不会导致酸化,但一旦超过CLminN,超过的N沉降则会导致酸化。上述因素之间的关系构成了临界负荷计算方法中最重要的S-N沉降效应函数(图1)。

更详细、复杂的S、N联合沉降效应评估方法可以参见UNECE^[47]编写的临界负荷计算与区划手册。

更一般地,生态系统中酸度和碱度的来源与损失远不止S和N的沉降,根据SSMB的原则,为了保证稳定状态,系统中拥有的碱度和酸度必须保持平衡.目前被广泛考虑的酸度输入主要包括来自大气的S沉降、酸性N沉降、植被和土壤对 NH_4^+ 的吸收与硝化;酸度损失包括植被的 NO_3^- 吸收、土壤对 NO_3^- 的反硝化;碱度输入包括土壤化学风化、盐基阳离子(basic cation, BC)沉降、S与N的系统内滞留;碱度损失包括BC的淋溶损失、植被对BC的吸收等^[48]. S、N沉降可以通过 SO_2 和 NO_x 的排放量与降水中实测pH和酸根离子的含量建立关系^[49],也可以通过WRF-CMAQ模型模拟确定^[50]. BC沉降包括扬尘提供的阳离子以及工业活动的BC排放.土壤风化是通过各种土壤的风化速率以及土壤类型进行核算的;其他活动排放(人类活动+风起尘)的BC则是分区域、分部门按照排放水平和在PM中的占比进行核算,一般包括Ca和Mg的排放,而K和Na通常忽略不计^[49,51].植被对N和BC的吸收是基于茎干和枝条的生长量与化学组成进行核算的. S与N的系统内滞留可以通过系统内S的沉降、N的自由沉降量(即沉降量中除去被固定、摄取以及反硝化的部分)和滞留系数进行计算.通常系统内滞留是对湖泊而言,因此滞留系数还与湖泊的平均深度、水力停留时间等有关.植被与土壤对 NO_3^- 的反硝化和固持、BC的淋溶损失等参数可以参考文献^[48,52,53]进行直接取值和公式参考.类似于S-N沉降效应函数,当BC被考虑进来时,S-N

沉降效应曲线增加了一个维度,成为S-N-BC沉降效应函数(图1),在中国临界负荷和超临界负荷的研究中被广泛地使用^[51,54].

1.4 国外环境空气质量标准参考基准现状

环境空气质量基准是环境空气质量标准的制定原则和依据.基于上述三大基准制定原则与方法,世界各国与各国国际组织提出了一系列环境空气质量基准.在环境空气质量标准的制定流程中,人体健康原则被优先考虑,而生态效应一般则作为次等因素同时被纳入.WHO AQG是目前国际上环境空气污染物暴露效应集成体系最完善的成果,已经被世界各国广泛接受;而生态效应层面则尚未有较普适的基准成果发表.目前世界各国的标准距离WHO AQG 2021的指导值还存在一定的差距^[55,56].PM方面,加拿大、澳大利亚、中东部分国家以及其他少数国家达到了AQG 2005的指导值水平,美国、中东部分国家、日本以及少数欧洲国家达到了IT3,其余大部分国家均仅达到了IT2及以上过渡目标值,甚至没有对PM进行限值; NO_2 方面,欧亚大多数国家达到了指导值水平,但非洲、南北美洲的大多数国家采用了较宽松的限值或没有设立限值; SO_2 方面,由于AQG 2005没有给出推荐标准,世界各国的标准不一,中亚、东欧、南北美洲和非洲绝大部分国家没有对 SO_2 进行限值; O_3 方面,除了少数经济不发达的国家达到了指导值水平,绝大部分国家的限值都达到了宽松于指导值20%或IT1的水平.

世界各国参考环境空气质量基准制定标准的态度有所不同,美国和瑞士对基准的采纳方法是世界各国标准设立方法的典型代表^[57].美国的《国家环境空气质量标准》(National Ambient Air Quality Standards, NAAQS)受《清洁空气行动法案》(the Clean Air Act, CAA)约束,必须以健康保护为基础,而不得受经济成本等社会因素所限制,因此基于污染物的人体健康风险效应,围绕污染物浓度的安全裕度、对健康的不利影响、目标敏感人群,设立了一系列环境空气质量标准,同时综合考虑标准的稳定性、可实施性、基础设施是否完善、公众普及的方便性等进行多方切磋修订.在此过程中,人体健康被作为一级标准的考虑因素,包括但不限于土壤、水、作物、动物、能见度、财产、个人舒适和幸福等的“福利”则仅被列为二级标准所考虑的因素.值得一提的是,尽管美国CAA要求NAAQS不得考虑经济成本因素,但在制定过程中依然会提出

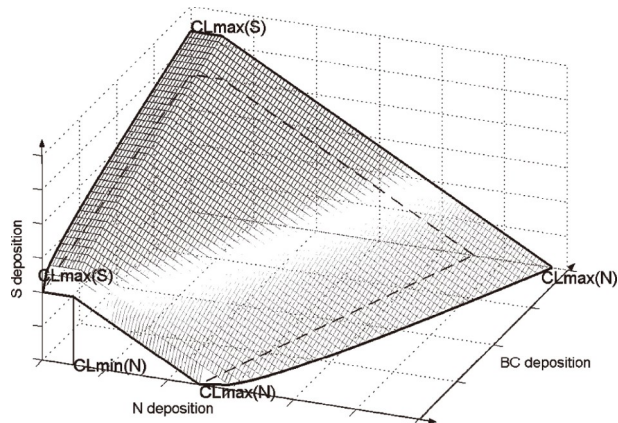


图1 S-N沉降效应函数(无BC沉降轴的二维函数)与S-N-BC沉降效应函数(有BC沉降轴的三维函数)^[54]

Figure 1 S-N settlement effect function (2-dimension function without BC deposition axis) and S-N-BC settlement effect function (3-dimension function with BC deposition axis)^[54]

相关的成本报告作为立法和行政决策的重要参考,这意味着美国NAAQS的制定过程与其初衷在社会因素上发生了冲突,并且其政府在该冲突中依然有意识地向现实有所妥协。美国制定NAAQS过程中原则与现实的这一矛盾对我国具有很强的启示意义:我国环境标准的制修订既应立足于科学证据,同时也要与国情和发展阶段相适应,避免“唯严格论”。我国进行基准制修订以及向标准迁移的相关工作,可以参考美国基准制定原则、基准向标准的转化和部分标准的制定原则开展。相比而言,瑞士则仅将健康和环境作为制定环境空气质量标准的唯一标准,不考虑经济因素;相比美国NAAQS,瑞士的环境空气质量标准更为激进,它要求所有人群均受到严格的保护,最敏感的受体是制定标准的决定性因素,而美国NAAQS保护的是“特别敏感人群”,而不是最敏感或最大限度暴露的个体。如果说美国NAAQS的制定是对基准值的迁移,那么瑞士就是直接采用基准值作为标准。这样的益处是:向公众和政府传达了清晰的信息,空气污染水平高于限值表明需要采取行动,而低于限值则完全保证了人类和环境的安全;但同时也存在非常明显的缺点:高度严苛的环境空气质量标准可能导致环境空气长期不达标,从而使得公众对环境质量失去耐心,也会给政府工作带来一定的阻力和压力。这也启示我国应当提出适合我国国情的基准制定原则开展工作。

2 我国环境空气质量标准与基准的关系现状

2.1 我国开展环境空气质量基准制定工作已有基础概述

目前我国国内虽然没有提出系统的环境空气质量基准体系,但已经有许多成果可供基准制定工作的参考。在人体健康方面,我国已有针对PM_{2.5}的慢性队列研究^[58]以及其他污染物的急性队列研究,可以实现对大气污染相关的剂量-效应关系评估^[59]、疾病负担评价^[60-62]和死亡风险预估^[63]等,但是除了PM_{2.5}以外,其他污染物的慢性队列研究都还缺乏。相关研究还进一步探索了空气污染健康效应的复杂性^[64],提出PM_{2.5}的健康效应存在地域性差异,其暴露水平与经济、人口等社会因素有关,并且尝试解析了PM_{2.5}组分和来源对健康影响的差异^[65,66]。在生态方面,我国虽然没有建立起自己的植被暴露评估体系,但完全可以借鉴欧美国家的相关指标,结合我国的相关生态调研结果开展工

作^[67,68]。此外,早前已有大量文献基于土壤/水体化学指标的方法对S、N的临界负荷和超临界负荷进行了详细的研究,相关方法在我国应用的基础已经较为成熟^[49,51]。除了上述主流的三大基准制定方法外,我国学者还指出,气候变化将改变环境空气污染水平,通过多种途径直接或间接地对人体健康造成重要影响^[69-71]。随着气候的不断演变,我国在未来气候变化下环境空气污染相关的健康风险将变得更加重要,高温、虫媒传染病、极端气象事件等因素的健康风险也将更加突出^[72]。

基于上述成果,我国目前有能力建立一套较为科学且全面的环境空气质量基准,其中,健康效应研究大大驱动了各国环境空气质量基准与标准的制定和修订,取得了一系列客观的健康收益,但生态效应和气候变化的健康效应等方面还处于发展过程中,这些要素也是我国在制定基准的过程中所需要考虑的。

2.2 我国空气质量标准对基准的需求

我国于1982年制定并发布了首个环境空气质量标准《大气环境质量标准》,并于1996、2000、2012年进行了修改和审定,已经形成了较为完善的环境空气质量标准体系,目前采用的为2012年修订的《环境空气质量标准(GB 3095-2012)》^[73](表4)。该标准对6种常规污染物的达标评价作出了详细的规定,除了CO与NO₂只设立了单独的限值,PM_{2.5}、PM₁₀、O₃、SO₂均设立了一级、二级污染限值。其中,与AQG 2005相比:SO₂的24 h均值一级标准采用了IT2,二级标准宽松于IT1,并额外设定了AQG没有要求的年均值和1 h均值;NO₂的年均值和1 h均值采用了指导值,并额外设定了AQG没有要求的24 h均值;PM_{2.5}的年均值一级标准采用了IT3,24 h均值与IT3基本相当,二者的二级标准均采用IT1;PM₁₀的年均值一级标准略严于IT2,24 h均值达到指导值,二者的二级标准也均采用IT1;O₃的日最大8 h均值一级标准采用指导值,二级标准采用IT1,并额外设定了AQG没有要求的1 h均值;CO的24 h均值与10 h均值均为额外设定,AQG没有要求。AQG 2021发布后,我国空气质量标准中:CO达到指导值;SO₂的一级标准达到IT2,略宽松于指导值;NO₂仅达到IT1;PM_{2.5}的一级标准达到IT3;PM₁₀的年均值一级标准达到IT2,24 h均值达到IT4;O₃的日最大8 h均值在暖季仅达到IT1,均与指导值存在较大的差距。

2020年,全国城市空气质量监测数据显示(图2),我

表 4 我国空气质量标准与WHO AQG 2021/2005的对比^{[22,23,73]a)}

Table 4 Comparison between China's air quality standards and WHO AQG 2021/2005^[22,23,73]

污染物	评价方式 ^{b)}			GB 3095-2012		WHO AQG 2021(2005) ^{c)}						单位	WHO AQG 2021 具体变化
	小时评价	日评价	年评价	评价项目	一级	二级	IT1	IT2	IT3	IT4	AQG level		
SO ₂	1 h平均	24 h平均	年平均; 24 h平均 第98百分位数	年平均 24 h平均 1 h平均	20 50 150	60 150 500	- 125 -	- 50 -	- - -	- - -	- 40(20) -	μg/m ³	放宽了24 h 均值
NO ₂	1 h平均	24 h平均	年平均; 24 h平均第98 百分位数	年平均 24 h平均 1 h平均	40 80 200	40 80 200	40(-) 120(-) -	30(-) 50(-) -	20(-) - -	- - -	10(40) 25(-) -(200)	μg/m ³	收紧了 年均值; 增加了 24 h均值; 新增年 均值和24 h均值的 IT
PM _{2.5}	/	24 h平均	年平均; 24 h平均第95 百分位数	年平均 24 h平均	15 35	35 75	35 75	25 50	15 37.5	10(-) 25(-)	5(10) 15(25)	μg/m ³	收紧了年均值 和24 h均值; 年均值、24 h均 值改为IT4
PM ₁₀	/	24 h平均	年平均; 24 h平均第95 百分位数	年平均 24 h平均	40 50	70 150	70 150	50 100	30 75	20(-) 50(-)	15(20) 45(50)		
O ₃	1 h平均	最大8 h 平均	日最大8 h滑动 平均值的第90 百分位数	日最大8 h平均 1 h平均 暖季平均	100 160 -	160 200 -	160 -	120(-) -	- -	- -	100 - 60(-)	mg/m ³	增加了暖季峰值 (6个月)并设定IT; 日最大8 h均值 新增IT2
CO	1 h平均	24 h平均	24 h平均第95 百分位数	24 h平均 8 h平均 1 h平均 15 min平均	4 - 10 -	4 - 10 -	7(-) - - -	- - - -	- - - -	- - - -	4(-) 10(-) 35(-) 100(-)	mg/m ³	增加了24 h均值并设 定IT; 增加了8 h、 1 h、15 min均值

a) “/”表示我国环境空气质量标准体系对该污染物不存在小时评价指标,“-”表示对该污染物没有设立相应的评价指标; b) 均为在参考状态下(25℃, 标准大气压); c) 非括号部分为AQG 2021修订的部分, 括号部分为AQG 2005的对应值

国369个监测站点CO年均值全部达标; NO₂达标率达到98.1%; SO₂一级达标95.9%, 二级全部达标; O₃一级达标4%, 二级达标77%; PM₁₀一级达标19.7%, 二级达标74.3%; PM_{2.5}一级达标4.6%, 二级达标58.2%。其中, O₃、PM₁₀与PM_{2.5}的达标率较低, 已经成为我国最主要的城市大气污染物。

相比AQG推荐的IT值和指导值, 我国的两级空气污染物限值相对较为宽松。与更严格的AQG 2021各级指导值相比(图2), CO对指导值已全面达标; SO₂对指导值达标96.0%; NO₂对IT2达标71.0%, 对IT3达标33.1%, 对指导值达标2.5%; O₃、PM₁₀、PM_{2.5}的浓度仍存在很大差距: O₃对暖季IT2达标1.1%, 对暖季IT3全不达标; PM₁₀对IT3达标7.1%, 对IT4达标1.4%, 对指导值达标0.3%; PM_{2.5}对IT3达标2.2%, 对指导值全不达标。我国的空气质量现状在AQG 2021各情景下的达标情况充分说明, 我国NO₂、O₃以及PM污染对人群健康依然造

成了较大的健康负担, 相关污染物的治理仍需进一步加强。但是, AQG 2021所纳入的人体健康证据包含了全球各地区的疾病数据, 而我国被纳入的证据仅占少数, AQG 2021给出的指导值能否精准代表我国人体健康的阈值目前依然无法解答。

3 对我国的启示

我国环境空气质量达标情况较好, 但总体而言, 与WHO所建议的指导值依然有较大的差距, PM与O₃已经成为我国最主要的城市空气污染物, 实现“美丽中国”与“健康中国”依然道阻且长^[74]。随着我国城市空气质量改善, 未来区域性污染问题包括O₃和酸沉降(特别是N沉降^[75,76])问题将会愈发突出。目前, O₃和PM_{2.5}的协同减排已经成为环境空气污染控制工作的重点, 而在污染物大量减排的情况下, 我国的酸沉降超临界负荷形势依然严峻^[77], 生态环境安全依然遭受较大的威

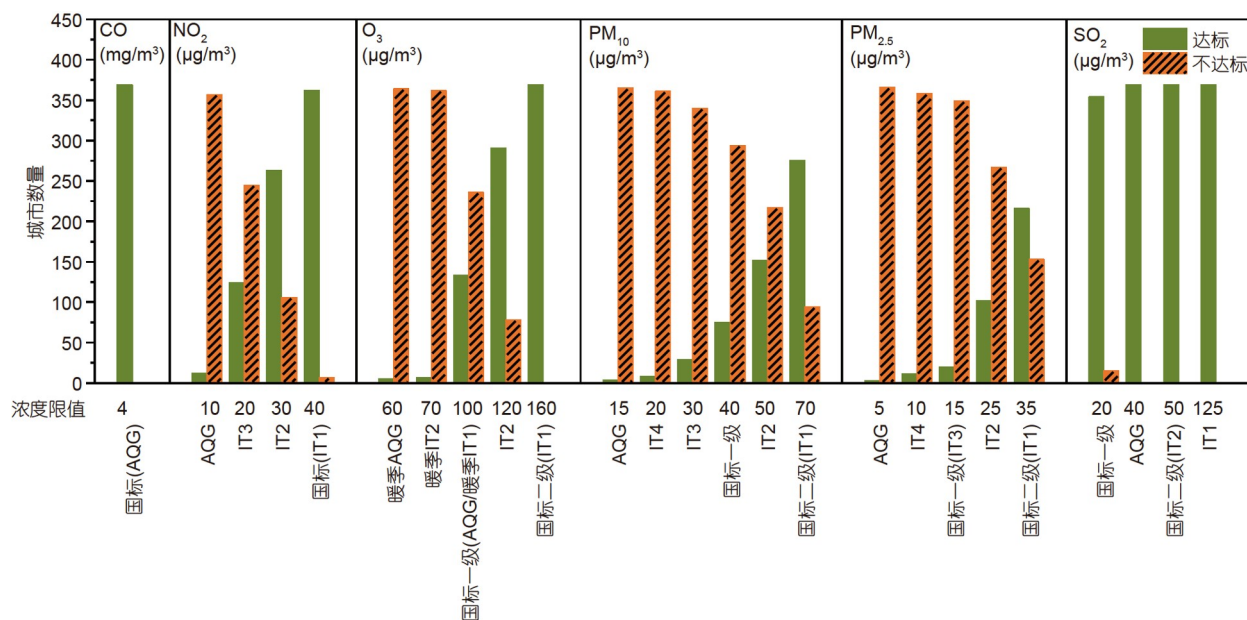


图2 (网络版彩色)2020年我国369个城市环境空气质量(年均)达标现状以及在WHO AQG 2021各情景下的达标情况

Figure 2 (Color online) The status quo of 369 Chinese cities meeting the ambient air quality standards (annual average) in 2020 and the status quo under scenarios of WHO AQG 2021

胁。实现污染物减排的同时有效解决区域性污染问题和次生生态问题已刻不容缓,将临界水平和临界负荷纳入空气质量管理,开展多层次、多类型的生态环境与健康,对指导我国未来的环境空气污染物减排具有重要意义。为进一步推进我国环境空气质量的改善,应加快推进基准的制定,同时考虑污染物的人体健康效应和生态效应,以减小二者造成的损失。

根据我国开展环境空气基准制定工作的现状,需要从选取适合我国的评估指标体系、建立合适的数据质控和评判体系、分区域分目标划定基准值以及基准衔接标准制修订等方面开展基准制定工作。图3是我国开展基准制定的技术路线图,并结合我国现状和预期对当前及未来开展基准工作所要完成的目标作了期望。

(1) 现有研究提出了一系列对污染影响进行评估的指标,如何在框架下选择我国适用的指标整合成符合我国国情的评估体系,需要综合考虑多方面因素,尤其是所选指标的代表性以及支持数据的可得性。换言之,在开展基准工作的初期,不一定要面面俱到,如:人体健康方面,选取主要的、健康效应较明显的污染物(PM_{2.5}、NO₂、O₃)首先开展评估;植被暴露方面,优先选取我国现有植被统计数据以及林区污染监测网络所支持的指标算法等。相关工作在数据支持和代表性

相对成熟后,可以逐步向机理更优、精度更细、范围更广的方法过渡。

(2) 对所选取的各种指标进行所需数据及文献的相关调研工作,参考WHO以及国际先进案例的工作规程,建立一套立足于我国国情的质控体系和评判标准,以确保纳入的数据具有较高的可信度。需要注意的是,在基准制定工作开展的初期,可能由于数据的匮乏而导致质控体系相对不适用,因此,在对数据可靠性进行评判的同时,需要兼顾数据的可得性。

(3) 由于数据可得性直接关系到基准值的计算与体系建立,接下来,我国必须加大力度进行数据收集和分析工作,完善基础数据缺口。人群健康方面,我国现有长短期暴露数据尚不足以支持进行针对我国剂量-效应关系的Meta分析,现有研究也大多数停留在全因死亡或过早死亡的风险评估上,对特定病因死亡率和发病率的队列研究还非常缺乏,相关研究需要尽快、尽量开展;植被暴露方面,我国要参考比较先进的DO₃SE模型的架构,对我国植被覆盖区及其环境状况进行高精细化的统计和监测。

(4) 在基准值的计算方面,有研究指出,各国由于环境空气污染现状以及人群暴露水平之间的差异,污染物(尤其是PM^[7,78])可能具有独立效应,导致各国人体健康状况对污染物的响应水平有较大差异,并且随着

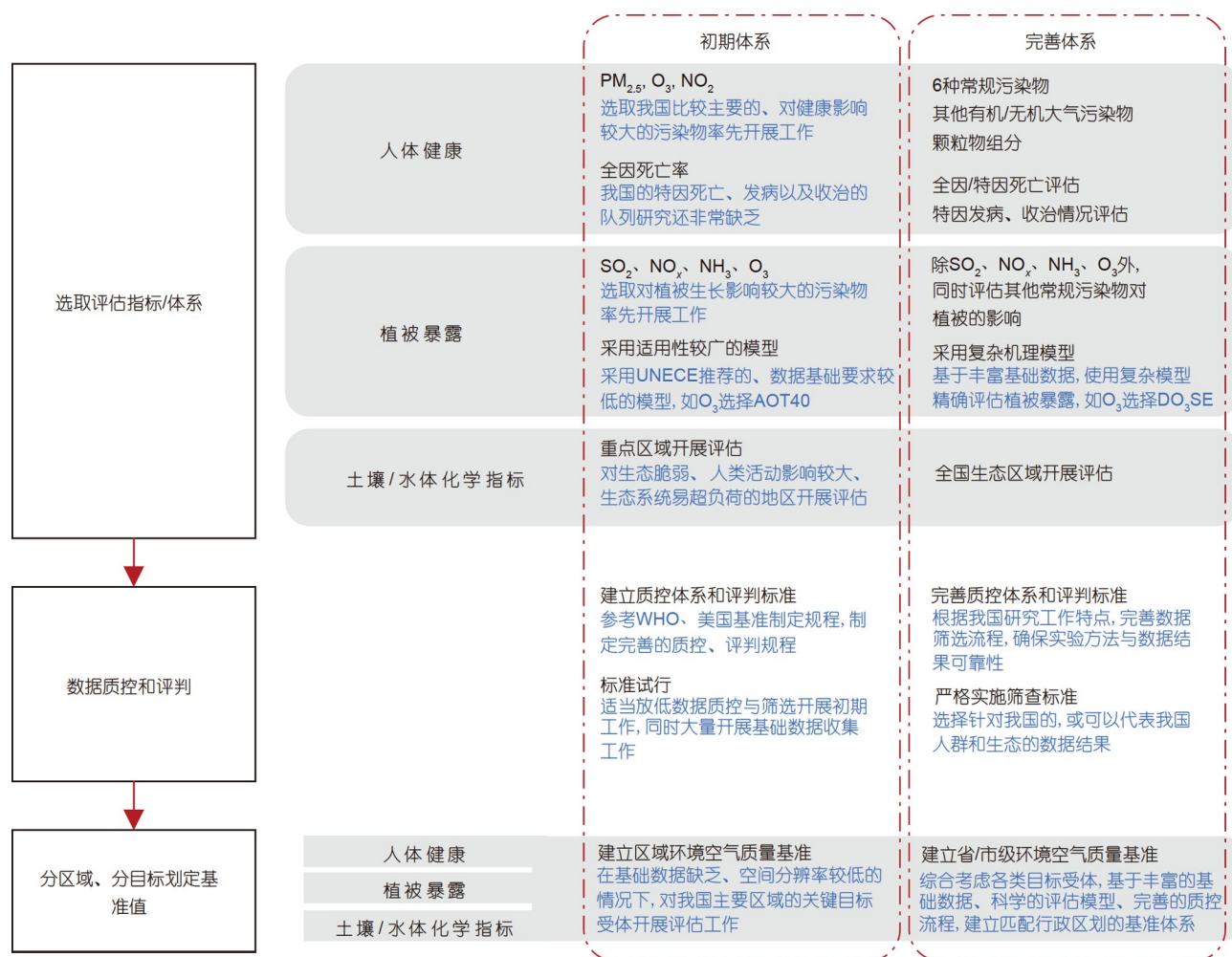


图3 (网络版彩色)我国开展基准制定的技术路线图以及工作初期和后期的工作期望

Figure 3 (Color online) The technical roadmap for benchmarking in China and the expectations at the initial and later stages of the work

暴露时间增长,同区域人群对污染物的响应水平也可能发生变化,因此有必要依据我国环境空气污染组分、人群健康特征、暴露水平以及剂量-效应关系制定针对性、有时效性的基准值。在此基础上,加强生态环境政策对健康影响的经济评价,量化相关政策对国民与医疗的经济负担,采取健康收益较大、经济负面影响较小的方案。生态健康相关的指标也应逐渐纳入基准值的考量范围之内,在优先确保人体健康安全的情况下,将对生态环境的影响降到最小。

(5) 对我国不同的区域,基准的制定要按照其特点进行区别:对人群密集的地区,人体健康关乎广大人民群众的生命利益,环境空气质量必须优先满足不对人体健康造成明显致病影响的大前提,而生态效应则依据当地的生态环境进行辅助性评估;在林地、农场以

及耕地区域,则要优先考虑环境承载力,以土壤/水体化学指标的核算方法考虑不使环境受到酸化破坏的阈值水平,其次评估植被可接受的暴露水平,对比工业化前的背景环境空气浓度提出剂量-效应关系,并结合国情,根据可接受的损失比例进行基准的划定,而人体健康效应则可依据当地人群分布状况进行辅助性评估。需要指出的是,不同地区由于相应具有的产业结构不平衡、生态环境差异大的条件,以及制定基准值时不同暴露对象的优先程度不同,可能导致区域间基准值具有较大的差异,相应基准值的差别可能会很大。在这种情况下,参考基准值建立的标准值可能也具有一定的差别,基准值较宽松的区域相应具有较宽松的标准值,此时由于污染物区域性传输可能会使标准值严格的区域受到相对宽松区域传输的污染物影响,从而需

要付出更多治理成本以达标, 引发区域传输的不公平性和治污政策的难执行性。 “中国超大城市大气污染和人类健康中英联合研究计划” 的成果显示, 京津冀区域PM_{2.5}区域传输的贡献达30%, 而在重污染过程中, 这个比例甚至可以达到80%, 意味着区域传输在标准制修订过程中是一个不可避免且十分重要的问题, 也是未来标准制修订过程中治污责任划定的难点问题之一。

值得一提的是, 现有研究成果在一定程度上表明, 一些环境空气污染物对人体健康的危害可能没有阈值

下限, 换言之, 暴露于任意浓度的污染物均有可能对人体产生健康风险。 WHO在对上述6种常规污染物的阈值划定工作中, 采取的方法是根据最新研究中产生最低暴露风险的浓度范围不断更新阈值下限。 值得注意的是, 在我国环境空气质量基准制定的过程中, 可以借鉴气候变化领域“减缓(mitigation)”与“适应(adaptation)”的综合思路, 一方面积极减排降低污染物浓度, 另一方面将不同人群在低浓度污染物暴露所产生的适应性纳入考量, 以此形成辩证的原则, 指导基准的制定。

参考文献

- 1 World Health Organization. Air Pollution Data. 2018, <https://www.who.int/data/gho/data/themes/air-pollution/ambient-air-pollution>
- 2 Zheng X Y, Orellano P, Lin H L, et al. Short-term exposure to ozone, nitrogen dioxide, and sulphur dioxide and emergency department visits and hospital admissions due to asthma: A systematic review and meta-analysis. *Environ Int*, 2021, 150: 106435
- 3 Orellano P, Reynoso J, Quaranta N. Short-term exposure to sulphur dioxide (SO₂) and all-cause and respiratory mortality: A systematic review and meta-analysis. *Environ Int*, 2021, 150: 106434
- 4 Meng X, Liu C, Chen R, et al. Short term associations of ambient nitrogen dioxide with daily total, cardiovascular, and respiratory mortality: Multilocation analysis in 398 cities. *BMJ-Brit Med J*, 2021, 372: n534
- 5 Huangfu P, Atkinson R. Long-term exposure to NO₂ and O₃ and all-cause and respiratory mortality: A systematic review and meta-analysis. *Environ Int*, 2020, 144: 105998
- 6 Orellano P, Reynoso J, Quaranta N, et al. Short-term exposure to particulate matter (PM₁₀ and PM_{2.5}), nitrogen dioxide (NO₂), and ozone (O₃) and all-cause and cause-specific mortality: Systematic review and meta-analysis. *Environ Int*, 2020, 142: 105876
- 7 Li X, Jin L, Kan H. Air pollution: A global problem needs local fixes. *Nature*, 2019, 570: 437–439
- 8 Chen J, Hoek G. Long-term exposure to PM and all-cause and cause-specific mortality: A systematic review and meta-analysis. *Environ Int*, 2020, 143: 105974
- 9 Li J, Liu H, Lv Z, et al. Estimation of PM_{2.5} mortality burden in China with new exposure estimation and local concentration-response function. *Environ Pollut*, 2018, 243: 1710–1718
- 10 Cakmak S, Hebbern C, Pinault L, et al. Associations between long-term PM_{2.5} and ozone exposure and mortality in the Canadian Census Health and Environment Cohort (CANHEC), by spatial synoptic classification zone. *Environ Int*, 2018, 111: 200–211
- 11 Pinault L L, Weichenthal S, Crouse D L, et al. Associations between fine particulate matter and mortality in the 2001 Canadian Census Health and Environment Cohort. *Environ Res*, 2017, 159: 406–415
- 12 Villeneuve P J, Weichenthal S A, Crouse D, et al. Long-term exposure to fine particulate matter air pollution and mortality among Canadian women. *Epidemiology*, 2015, 26: 536–545
- 13 Dockery D W, Pope C A, Xu X, et al. An association between air pollution and mortality in six U.S. cities. *N Engl J Med*, 1993, 329: 1753–1759
- 14 Beelen R, Raaschou-Nielsen O, Stafoggia M, et al. Effects of long-term exposure to air pollution on natural-cause mortality: An analysis of 22 European cohorts within the multicentre ESCAPE project. *Lancet*, 2014, 383: 785–795
- 15 Bentayeb M, Wagner V, Stempfelet M, et al. Association between long-term exposure to air pollution and mortality in France: A 25-year follow-up study. *Environ Int*, 2015, 85: 5–14
- 16 Puett R C, Schwartz J, Hart J E, et al. Chronic particulate exposure, mortality, and coronary heart disease in the nurses' health study. *Am J Epidemiol*, 2008, 168: 1161–1168
- 17 Carey I M, Atkinson R W, Kent A J, et al. Mortality associations with long-term exposure to outdoor air pollution in a national English cohort. *Am J Respir Crit Care Med*, 2013, 187: 1226–1233
- 18 Hart J E, Garshick E, Dockery D W, et al. Long-term ambient multipollutant exposures and mortality. *Am J Respir Crit Care Med*, 2011, 183: 73–78
- 19 Lee K K, Spath N, Miller M R, et al. Short-term exposure to carbon monoxide and myocardial infarction: A systematic review and meta-analysis. *Environ Int*, 2020, 143: 105901
- 20 Di Q, Wang Y, Zanobetti A, et al. Air pollution and mortality in the medicare population. *N Engl J Med*, 2017, 376: 2513–2522

- 21 Liu H, Liu S, Xue B, et al. Ground-level ozone pollution and its health impacts in China. *Atmos Environ*, 2018, 173: 223–230
- 22 World Health Organization. WHO Global Air Quality Guidelines. 2005
- 23 World Health Organization. WHO Global Air Quality Guidelines. 2021
- 24 Hoshika Y, Paoletti E, Agathokleous E, et al. Developing ozone risk assessment for larch species. *Front For Glob Change*, 2020, 3: 45
- 25 Bhuiyan M A, Rashid Khan H U, Zaman K, et al. Measuring the impact of global tropospheric ozone, carbon dioxide and sulfur dioxide concentrations on biodiversity loss. *Environ Res*, 2018, 160: 398–411
- 26 Mirsanjari M M, Zarandian A, Mohammadyari F, et al. Investigation of the impacts of urban vegetation loss on the ecosystem service of air pollution mitigation in Karaj metropolis, Iran. *Environ Monit Assess*, 2020, 192: 501
- 27 Grennfelt P, Englerd A, Forsius M, et al. Acid rain and air pollution: 50 years of progress in environmental science and policy. *Ambio*, 2020, 49: 849–864
- 28 Pardo L H, Fenn M E, Goodale C L, et al. Effects of nitrogen deposition and empirical nitrogen critical loads for ecoregions of the United States. *Ecol Appl*, 2011, 21: 3049–3082
- 29 Agathokleous E, Feng Z, Oksanen E, et al. Ozone affects plant, insect, and soil microbial communities: A threat to terrestrial ecosystems and biodiversity. *Sci Adv*, 2020, 6: eabc1176
- 30 Hu T, Liu S, Xu Y, et al. Assessment of O₃-induced yield and economic losses for wheat in the North China Plain from 2014 to 2017, China. *Environ Pollut*, 2020, 258: 113828
- 31 Feng S, Hao Z. Quantifying likelihoods of extreme occurrences causing maize yield reduction at the global scale. *Sci Total Environ*, 2020, 704: 135250
- 32 Zhang Y, Li Q, Zhang F, et al. Estimates of economic loss of materials caused by acid deposition in China. *Sustainability*, 2017, 9: 488
- 33 Feng Z, De Marco A, Anav A, et al. Economic losses due to ozone impacts on human health, forest productivity and crop yield across China. *Environ Int*, 2019, 131: 104966
- 34 Mills G, Sharps K, Simpson D, et al. Ozone pollution will compromise efforts to increase global wheat production. *Glob Change Biol*, 2018, 24: 3560–3574
- 35 Zhao H, Zheng Y, Zhang Y, et al. Evaluating the effects of surface O₃ on three main food crops across China during 2015–2018. *Environ Pollut*, 2020, 258: 113794
- 36 Turner M C, Jerrett M, Pope Iii C A, et al. Long-term ozone exposure and mortality in a large prospective study. *Am J Respir Crit Care Med*, 2016, 193: 1134–1142
- 37 de Hoogh K, Chen J, Gulliver J, et al. Spatial PM_{2.5}, NO₂, O₃ and BC models for Western Europe—Evaluation of spatiotemporal stability. *Environ Int*, 2018, 120: 81–92
- 38 Vicedo-Cabrera A M, Sera F, Liu C, et al. Short term association between ozone and mortality: Global two stage time series study in 406 locations in 20 countries. *BMJ-Brit Med J*, 2020, 368: m108
- 39 The United Nations Economic Commission for Europe. Mapping Critical Levels for Vegetation Revised Chapter 3 of the Manual on Methodologies and Criteria for Modelling and Mapping Critical Loads and Levels and Air Pollution Effects, Risks and Trends. UNECE International Cooperative Programme on Effects of Air Pollution on Natural Vegetation and Crops, 2017
- 40 U.S. Environmental Protection Agency. How the W126 Index Value is Calculated. 2021, <https://www.epa.gov/air-quality-analysis/how-w126-index-value-calculated>
- 41 Yu Q, Duan L, Hao J M. Acid deposition in China: Sources, effects and control (in Chinese). *Acta Sci Circumst*, 2021, 41: 731–746 [余倩, 段雷, 郝吉明. 中国酸沉降: 来源、影响与控制. *环境科学学报*, 2021, 41: 731–746]
- 42 Hettelingh J P, Posch M, De Smet P A M, et al. The use of critical loads in emission reduction agreements in Europe. *Water Air Soil Pollut*, 1995, 85: 2381–2388
- 43 Xie D N, Zhang T, Yu Q, et al. Evaluating effects of total emission control for sulfur dioxide and nitrogen oxides in Chongqing during the Twelfth Five-Year-Plan: Trend in acid deposition at Tieshanping during 2011–2016 (in Chinese). *China Environ Sci*, 2017, 37: 4072–4077 [谢丹妮, 张婷, 余倩, 等. 重庆市十二五期间SO₂和NO_x总量控制对降低酸沉降的效果评估. *中国环境科学*, 2017, 37: 4072–4077]
- 44 De Vries W. Critical deposition levels for nitrogen and sulphur on dutch forest ecosystems. *Water Air Soil Pollut*, 1988, 42: 221–239
- 45 The National Critical Load Database. Detailed Documentation of the National Critical Loads Database (NCLD) of Sulfur and Nitrogen, Version 3.1. 2020
- 46 Cheng Z L, Luo Y, Zhang T, et al. Deposition of sulfur, nitrogen and mercury in two typical forest ecosystems in southern China (in Chinese). *Environ Sci*, 2017, 38: 5004–5011 [程正霖, 罗遥, 张婷, 等. 我国南方两个典型森林生态系统的硫、氮和汞沉降量. *环境科学*, 2017, 38: 5004–5011]
- 47 UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution. Exceedance calculations. In: Spranger T, Maximilian P, Hettelingh J P, eds. *Manual on Methodologies and Criteria for Modelling and Mapping Critical Loads and Levels and Air Pollution Effects, Risks and Trends*. Berlin:

- Federal Environmental Agency, 2004
- 48 Ye X M, Hao J M, Duan L, et al. Mapping critical loads of acid deposition for Chinese surface waters using a steady-state method (in Chinese). *Environ Sci*, 2002, (3): 18–22 [叶雪梅, 郝吉明, 段雷, 等. 中国地表水酸沉降临界负荷的区划. *环境科学*, 2002, (3): 18–22]
 - 49 Duan L, Yu Q, Zhang Q, et al. Acid deposition in Asia: Emissions, deposition, and ecosystem effects. *Atmos Environ*, 2016, 146: 55–69
 - 50 Qiao X, Shu X, Tang Y, et al. Atmospheric deposition of sulfur and nitrogen in the West China rain zone: Fluxes, concentrations, ecological risks, and source apportionment. *Atmos Res*, 2021, 256: 105569
 - 51 Duan L, Zhao Y, Hao J. Critical Load Assessments for Sulphur and Nitrogen for Soils and Surface Waters in China. Dordrecht: Springer, 2015. 419–438
 - 52 Posch M, Kamari J, Forsius M, et al. Environmental auditing: Exceedance of critical loads for lakes in Finland, Norway, and Sweden: Reduction requirements for acidifying nitrogen and sulfur deposition. *Environ Manage*, 1997, 21: 291–304
 - 53 Henriksen A, Posch M, Hultberg H, et al. Critical loads of acidity for surface waters. *Water Air Soil Pollut*, 1995, 85: 2419–2424
 - 54 Zhao Y, Duan L, Larssen T, et al. Simultaneous assessment of deposition effects of base cations, sulfur, and nitrogen using an extended critical load function for acidification. *Environ Sci Technol*, 2007, 41: 1815–1820
 - 55 Nazarenko Y, Pal D, Ariya P A. Air quality standards for the concentration of particulate matter 2.5, global descriptive analysis. *Bull World Health Organ*, 2021, 99: 125–137D
 - 56 Kutlar Joss M, Eeftens M, Gintowt E, et al. Time to harmonize national ambient air quality standards. *Int J Public Health*, 2017, 62: 453–462
 - 57 Regional Office for Europe, World Health Organization. Guidance for Setting Air Quality Standards. 1997
 - 58 Liang F, Liu F, Huang K, et al. Long-term exposure to fine particulate matter and cardiovascular disease in China. *J Am College Cardiol*, 2020, 75: 707–717
 - 59 Xu D, Zhang Y, Wang B, et al. Acute effects of temperature exposure on blood pressure: An hourly level panel study. *Environ Int*, 2019, 124: 493–500
 - 60 Li T, Zhang Y, Wang J, et al. All-cause mortality risk associated with long-term exposure to ambient PM_{2.5} in China: A cohort study. *Lancet Public Health*, 2018, 3: e470–e477
 - 61 Xue T, Liu J, Zhang Q, et al. Rapid improvement of PM_{2.5} pollution and associated health benefits in China during 2013–2017. *Sci China Earth Sci*, 2019, 62: 1847–1856
 - 62 Geng G, Zheng Y, Zhang Q, et al. Drivers of PM_{2.5} air pollution deaths in China 2002–2017. *Nat Geosci*, 2021, 14: 645–650
 - 63 Zheng R, Qu C, Zhang S, et al. Liver cancer incidence and mortality in China: Temporal trends and projections to 2030. *Chin J Cancer Res*, 2018, 30: 571
 - 64 Han Y, Zhu T. Health effects of fine particles (PM_{2.5}) in ambient air. *Sci China Life Sci*, 2015, 58: 624–626
 - 65 Xue T, Zheng Y, Li X, et al. A component-specific exposure-mortality model for ambient PM_{2.5} in China: Findings from nationwide epidemiology based on outputs from a chemical transport model. *Faraday Discuss*, 2021, 226: 551–568
 - 66 Li X, Jin L, Kan H. Air pollution: A global problem needs local fixes. *Nature*, 2019, 570: 437–439
 - 67 Xu W, Li X, Pimm S L, et al. The effectiveness of the zoning of China's protected areas. *Biol Conserv*, 2016, 204: 231–236
 - 68 Ouyang Z, Song C, Zheng H, et al. Using gross ecosystem product (GEP) to value nature in decision making. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2020, 117: 14593–14601
 - 69 Chen R, Yin P, Wang L, et al. Association between ambient temperature and mortality risk and burden: Time series study in 272 main Chinese cities. *BMJ-Brit Med J*, 2018, 363: k4306
 - 70 Xue T, Guan T, Zheng Y, et al. Quantifying the contribution of temperature anomaly to stroke risk in China. *Environ Res Lett*, 2020, 15: 105014
 - 71 Cai W J, Zhang C, Suen H P, et al. Location-specific health impacts of climate change require location-specific responses (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2021, 66: 3925–3931 [蔡闻佳, 张弛, 孙凯平, 等. 因地而异的气候变化健康影响需要因地而异的应对措施. *科学通报*, 2021, 66: 3925–3931]
 - 72 Cai W J, Zhang C, Suen H P, et al. The 2020 China report of the Lancet Countdown on health and climate change. *Lancet Public Health*, 2021, 6: e64–e81
 - 73 Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, Chinese Academy of Environmental Sciences, China Environmental Monitoring Station. Ambient Air Quality Standard (GB 3095-2012) (in Chinese). 2012 [中华人民共和国生态环境部, 中国环境科学研究院, 中国环境监测总站. 环境空气质量标准(GB 3095-2012). 2012]
 - 74 Liu H, Lü Z F, He K B. Source-receptor relationship of traffic and haze: Implication from aggravated haze in Beijing during the COVID-19 lockdown (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2021, 66: 2498–2500 [刘欢, 吕兆丰, 贺克斌. 交通与雾霾的源受体关系新认识——“疫情霾”的启发. *科学通报*, 2021, 66: 2498–2500]
 - 75 Yang D X, Zhang J W, Yu Q, et al. Effects of atmospheric nitrogen deposition on ecological stoichiometry of typical subtropical forests in China (in Chinese). In: Proceedings of the 25th Symposium on Air Pollution Prevention and Control Technology, 2021. 414 [仰东星, 张家炜, 于倩, 等. 大气

氮沉降对我国典型亚热带森林生态化学计量的影响. 见: 第二十五届大气污染防治技术研讨会论文集, 2021. 414]

- 76 Ke P P, Kang R H, Duan L. Observation of soil NO and NO₂ fluxes in typical subtropical forests in China: Effects of nitrogen deposition and concentration (in Chinese). In: Proceedings of the 25th Symposium on Air Pollution Prevention and Control Technology, 2021. 428 [柯飘飘, 康荣华, 段雷. 我国典型亚热带森林土壤NO和NO₂通量观测: 氮沉降和浓度的影响. 见: 第二十五届大气污染防治技术研讨会论文集, 2021. 428]
- 77 Zhao W, Zhao Y, Ma M, et al. Long-term variability in base cation, sulfur and nitrogen deposition and critical load exceedance of terrestrial ecosystems in China. *Environ Pollut*, 2021, 289: 117974
- 78 Wu D, Zheng H, Li Q, et al. Toxic potency-adjusted control of air pollution for solid fuel combustion. *Nat Energy*, 2022, 7: 194–202

Summary for “环境空气质量基准和标准制定方法及其对我国的启示”

Ambient air quality baseline and standard formulation methods and their enlightenment for China

Yongyue Wang¹, Zhining Zhang¹, Zhenyu Luo¹, Tingkun He¹, Huan Liu^{1*}, Lei Duan¹, Keding Lu², Cheng Liu³, Xiaoqian Li⁴, Fengchang Wu⁴, Yuanhang Zhang², Wenqing Liu⁵ & Kebin He^{1*}

¹ State Environmental Protection Key Laboratory of Sources and Control of Air Pollution Complex, State Key Joint Laboratory of Environmental Simulation and Pollution Control, School of Environment, Tsinghua University, Beijing 100084, China;

² College of Environmental Science and Engineering, Peking University, Beijing 100091, China;

³ Department of Precision Machinery and Precision Instrument, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China;

⁴ State Key Laboratory of Environmental Benchmarking and Risk Assessment, Chinese Academy of Environmental Sciences, Beijing 100085, China;

⁵ Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China

* Corresponding authors, E-mail: liu_env@tsinghua.edu.cn; hekb@tsinghua.edu.cn

China has accomplished remarkable achievements in air pollution control over the past decade, demonstrated a significant improvement in its ambient air quality, and gained immense and in-depth experience in air pollution control. At this stage, researchers should initiate research on formulating an ambient air quality baseline for better sustainable development. This paper details three internationally popular methods for ambient air quality baseline and standard formulation. These methods are mainly based on the aspects of human health, vegetation exposure, and chemical indices of the soil/water ecological system. A series of evaluation indices commonly used worldwide have been comprehensively summarized, and their advantages and disadvantages have also been compared. On this basis, the present paper summarizes China's ambient air quality baseline and standard research based on human health, vegetation exposure, and chemical indices of the soil/water ecological system. Subsequently, this paper assesses the possibility of implementing the formulation method in China based on the above three aspects. For clarity, an analysis of the possible principled path was performed for establishing the environmental air quality baseline, including the probable structure of the initial period and the later advanced period of the formulation work. It should be noted that during the initial stage of work for the baseline formulation, the work can be appropriately simplified due to a lack of reference data and the unevolved nature of the working standard. However, after the foundation of the work is gradually enriched, the working principles should be gradually refined. Moreover, this paper briefly compares the role of the ambient air quality baseline with respect to the progress of ambient air standard formulation as well as its modification at the international and domestic levels. Furthermore, it illuminates the urgency and necessity for a well-fitted baseline for China based on the existing domestic study results regarding the ambient air pollution situation and pollution assessment system. Generally, to achieve the goal of building a healthy environment in China, it is crucial for the ambient air quality baseline, which is the foundation of the environmental air quality assessment system, to consider the unique safety red line of both the local human health and the ecology system during its scientific construction. Moreover, it is worth noticing that probable management difficulties may be accrued through a transformation from the ambient air quality baseline to the national standards, which should be adjusted according to the administrative characteristics of China to ensure steady progress and victory in the battle against ambient air pollution.

**ambient air quality, baseline formulation, human health, vegetation exposure, soil/water ecological system
chemical indices**

doi: [10.1360/TB-2022-0157](https://doi.org/10.1360/TB-2022-0157)