

天津市臭氧污染特征及来源解析研究*

李 源 孔 君[†] 徐 虹 高璟贇 毕温凯 杨 宁

(天津市生态环境监测中心,天津 300191)

摘要 使用天津市 2013—2017 年的连续臭氧观测数据,分析了天津市的臭氧污染特征,并使用基于排放清单处理模型(SMOKE)/中尺度气象模型(WRF)/多尺度空气质量模型(CAMx)的臭氧来源解析技术对天津市不同季节的臭氧来源情况进行研究。结果表明,天津市臭氧污染整体波动变化,年均浓度总体呈现先下跌后上升的趋势;天津市臭氧夏季浓度较高,春季、秋季浓度较低,冬季浓度最低。天津市臭氧污染区域性特征明显,区域输送贡献远大于本地贡献,本地臭氧来源贡献率仅占 8%~20%。河北省、山东省、内蒙古自治区等地区污染物排放对天津市臭氧污染有较大贡献。天津市本地源对臭氧的贡献季节差异较大,其中工业源贡献较大,其在春季、秋季对臭氧贡献率分别为 49%、43%。夏季天然源、工业源、交通源与电厂源对臭氧贡献率较为接近,均在 20%~30%;冬季其他源(包括生物质燃烧源、居民燃烧源等)对臭氧贡献率最大,为 54%。未来应根据臭氧污染来源的地域特征和季节特征采取不同臭氧污染防治策略。

关键词 天津市 臭氧 来源解析 空气质量模型

DOI:10.15985/j.cnki.1001-3865.2019.06.006

Analysis of ozone pollution characteristic in Tianjin and its source apportionment LI Yuan, KONG Jun, XU Hong, GAO Jingyun, BI Wenkai, YANG Ning. (Tianjin Environmental Monitoring Center, Tianjin 300191)

Abstract: The characteristics of ozone pollution in Tianjin were analyzed via long-term continuous ozone observation data in Tianjin from 2013 to 2017. The Sparse Matrix Operator Kernel Emission System (SMOKE)/Weather Research and Forecast Model (WRF)/Comprehensive Air Quality Model Extensions (CAMx) based ozone source apportionment technology was used to study the ozone source of Tianjin in different seasons. The results showed that the ozone concentration in Tianjin was fluctuating in recent years. The annual variation of ozone presented a trend of falling first and then rising. The concentration of ozone in Tianjin was high in summer, lower in spring and autumn, and the lowest in winter. The local emission was not the main source of Tianjin's ozone. It contributed 8%-20% of ozone in different seasons. The cross provincial transport, especially from Hebei, Shandong and Inner Mongolia Autonomous Region had obvious contribution to Tianjin ozone. The ozone contribution of local emission sources was different in different seasons. In general, industrial sources had the relative larger contribution to ozone, which contributed 49%, 43% of the ozone in the spring and autumn. The contribution of natural source, industrial source, traffic and power plant was close in summer, which ranged 20%-30% respectively. The contribution of other source (including biomass burning and resident burning, ect.) was the largest in winter, with the contribution rate was 54%. In future, the ozone pollution prevention strategy of Tianjin should be proposed according to regional characteristics and seasonal characteristics of ozone pollution.

Keywords: Tianjin; ozone; source apportionment; air quality model

臭氧是区域性大气复合污染的重要产物^[1],是挥发性有机物(VOCs)与氮氧化物(NO_x)在光照条件下发生复杂化学反应转化生成^[2-3]。空气中的臭氧达到一定浓度时将影响人体健康^[4]、改变大气氧化性^[5],严重时甚至改变区域的气候^[6]。目前,我国大气中的一次污染物与PM_{2.5}等在政府相关部门、科学界与普通民众的广泛关注下得到较好控制,呈现波动下降的趋势^[7-8],但臭氧浓度在全国多个区域仍

没得到有效控制^[9],个别地区甚至呈现上升趋势^[10]。因此,准确掌握近地面大气臭氧来源对于掌握区域大气复合污染特性,以及制定科学的污染控制措施有重要的作用。

天津市是华北地区重要的直辖市,其与首都距离较近,人口密度较大,工业与运输发达,臭氧污染也相对较严重,特别是在夏季。目前有关天津市的空气污染情况与臭氧污染特征的研究已有报

第一作者:李 源,女,1988年生,硕士,工程师,主要从事大气湍流与空气质量预报预警研究。[†]通讯作者。

* 国家重点研发计划项目(No.2016YFC0208501、No.2016YFC0208502、No.2016YFC0208503)。

道^[11-12],但对于其来源了解不够深入。洪礼楠等^[13]对天津市2014年7月的臭氧来源作了分析,但分析的时段较短,而且没有解析行业来源。目前,全国各地的污染排放都发生着较大的变化,本研究选取2017年为研究对象,使用三维空气质量模型,定量分析天津市4个季节的臭氧地区来源与行业来源,研究结果对于了解天津市的臭氧污染来源以及针对华北地区实施臭氧污染控制都有重要的意义。

1 数据与方法

1.1 空气污染物监测概况

天津市的臭氧数据来自27个环境空气自动监测子站,分布在天津市的城区与郊区,监测点位置见图1。

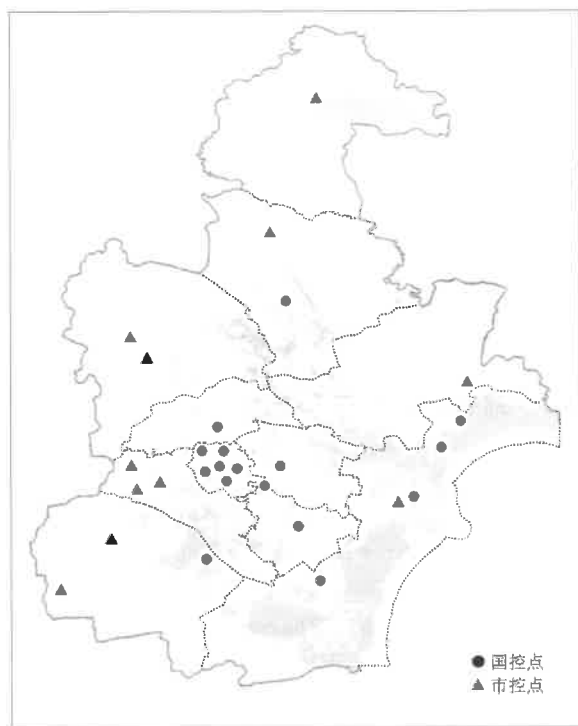


图1 天津市环境空气自动监测子站分布

Fig.1 The automatic air monitoring sites in Tianjin

1.2 空气质量模型与来源解析设置

本研究以2017年1、4、7、10月分别代表冬、春、夏、秋季,采用基于排放清单处理模型(SMOKE)/中尺度气象模型(WRF)/多尺度空气质量模型(CAMx)的臭氧来源解析技术(OSAT),即SMOKE/WRF/CAMx-OSAT模型^[14]系统解析了天津市臭氧来源情况,模拟网格分辨率为81 km,网格数为86×75个,覆盖区域包含我国、东北亚与东南亚等多个国家或地区。采用的化学机理为静态粗细颗粒分配模式(CF)和第5代的碳键机理(CB05),同时包括了对气溶胶的模拟。边界条件和初始条件

采用CAMx默认条件。排放源数据主要耦合了清华大学开发的2012年中国多尺度排放清单(ME-IC)、2008年日本排放源清单(REAS)^[15]和植被VOCs排放模型(MEGAN)估算的2017年天然源清单。日本与韩国等离天津市较近的国家近年的污染物排放变动相对不大,中国的污染物排放虽然有所变化,但主要是SO₂、CO、颗粒物等一次污染物排放减少量较大,臭氧前体物NO_x与VOCs的变动相对较小,本研究使用的数据基本能代表2017年的排放情况,所选用的清单适合于2017年臭氧来源的模拟与研究。OSAT主要基于不同排放类别与地区的臭氧前体物标记,通过追踪其迁移转化过程,定量受体点臭氧的具体地区与行业来源^[16]。

研究区域共设置为14个,分别为天津市、北京市、河北省、辽宁省、内蒙古自治区、山西省、河南省、山东省、东北地区、西部地区、东南地区、日韩、其他国家和海域。排放源分类共分为5类,分别为工业源、天然源、交通源、电厂源和其他源。

2 结果分析与讨论

2.1 天津市臭氧污染特征

2.1.1 臭氧时间变化特征

自2013年天津市各区开始连续监测臭氧以来,天津市臭氧浓度(以日最大8 h平均质量浓度的第90百分位数表征,下同)总体呈现先下降后上升的趋势(见图2)。2015年天津市臭氧浓度达到近5年最低水平,2016—2017年出现反弹。

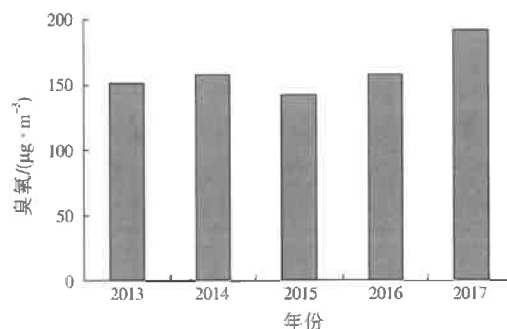


图2 2013—2017年天津市臭氧年际变化规律

Fig.2 Annual variation of the ozone in Tianjin city from 2013 to 2017

由图3可见,2013—2017年天津市臭氧月际变化特征均显示出夏季臭氧浓度最高,春季、秋季臭氧浓度较低,冬季臭氧浓度最低的变化规律,与大多数城市的臭氧季节变化特征相同。天津市臭氧浓度一般在1—6月呈现上升趋势,于6—7月达到全年峰值,然后从8月起逐月下降,于12月达到全年谷值。

2015 年的臭氧月际变化特征与其他年份不同,最高值出现在 5 月,此后呈现下降趋势,根据天津市气象科学研究所的气象数据,2015 年 6—9 月天津市及周边地区降水偏多,东风频率较大,地面气压较低,大气垂直运动显著,有利于臭氧前体物的扩散,加之日照时数较往年偏少,对臭氧的生成有一定的抑制作用。此外,2015 年为保障我国“9.3 阅兵”期间的空

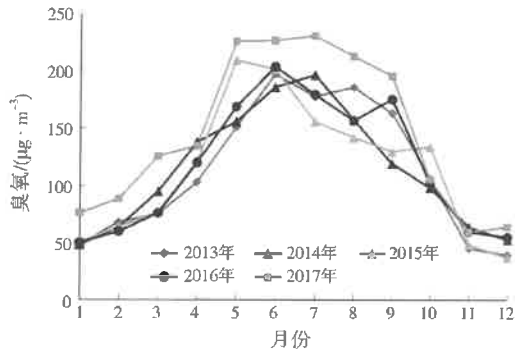


图 3 2013—2017 年天津市臭氧月际变化规律
Fig.3 Monthly variation of ozone in Tianjin city from 2013 to 2017

气质量,天津市及周边地区提前采取了严格的保障措施,大气污染物排放有较大程度下降。

2.1.2 臭氧空间分布特征

近 5 年臭氧空间分布特征见图 4。由图 4 可见,2013 年天津市臭氧浓度高值区主要集中在中心城区和东北部地区,3 个监测子站的臭氧质量浓度在 $170 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上;2014 年天津市臭氧浓度高值区主要位于中心城区和北部地区,10 个监测子站臭氧质量浓度在 $170 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上;2015 年天津市臭氧质量浓度有所降低,高值区主要集中在西北部地区,5 个监测子站臭氧质量浓度在 $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上;2016 年中心城区和西部地区臭氧浓度较高,有 11 个监测子站臭氧质量浓度在 $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上;2017 年全市所有监测子站臭氧浓度均超过《环境空气质量标准》(GB 3095—2012)中的二级标准限值,其中中山北路、滨水西道、天和路、北环路和淮河道监测子站的臭氧质量浓度在 $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上。因此,从空间分布上看,天津市臭氧污染主要集中在中心城区、北部地区和

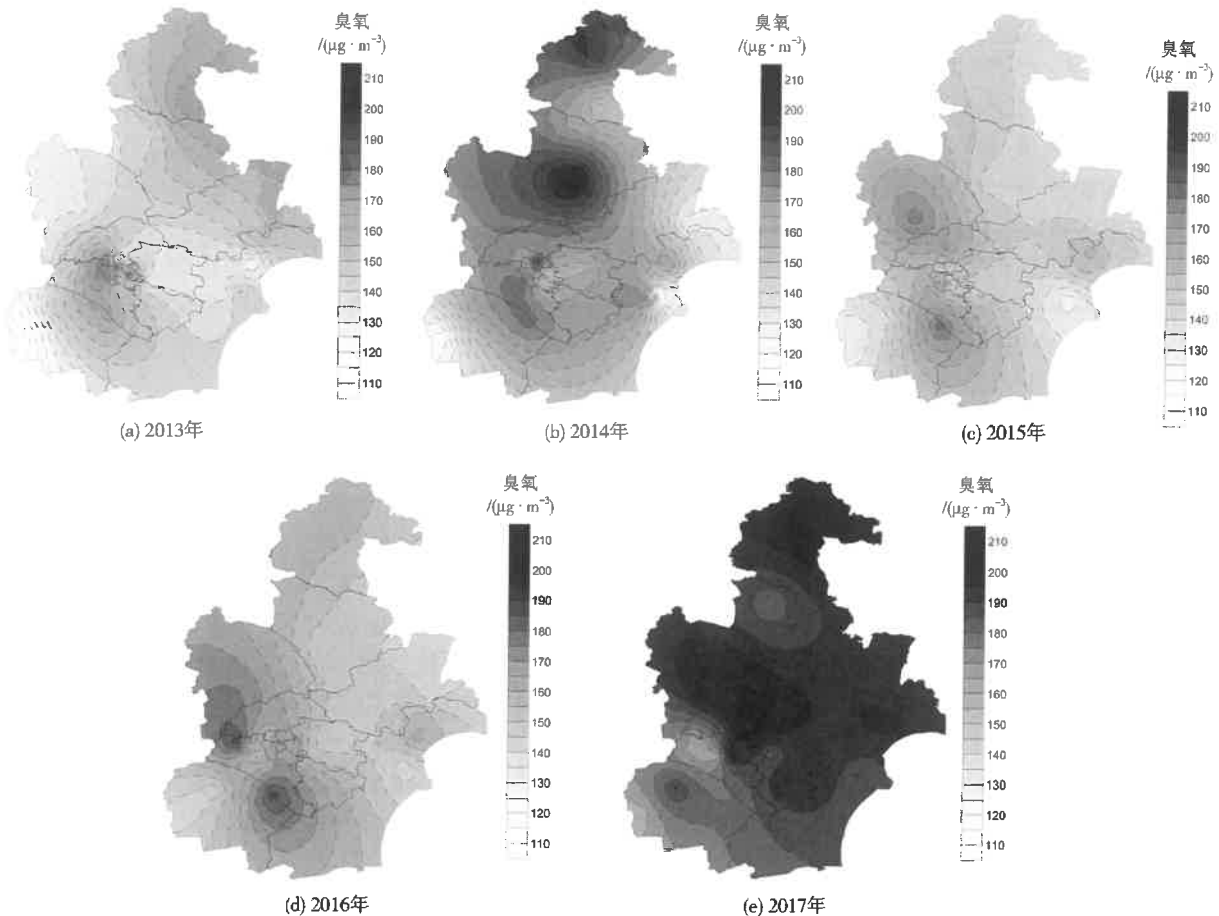


图 4 2013—2017 年天津市臭氧空间分布规律
Fig.4 Spatial variation of ozone in Tianjin city from 2013 to 2017

西北部地区,而东部地区和西南部地区臭氧污染相对较轻。

2.2 天津市臭氧的地区来源

采用 SMOKE/WRF/CAMx-OSAT 模型系统解析天津市 2017 年 1、4、7、10 月的臭氧来源,结果见表 1。

表 1 天津市臭氧地区来源贡献率
Table 1 The region contributions to ozone of Tianjin %

来源地	1 月	4 月	7 月	10 月
天津市	20	8	18	14
北京市	5	3	4	3
河北省	21	17	20	21
辽宁省	4	2	4	5
内蒙古自治区	10	13	3	17
山西省	4	6	4	6
河南省	2	6	8	4
山东省	10	11	15	10
东北地区	1	2	1	3
西部地区	10	7	2	7
东南地区	4	16	14	2
日韩	0	0	0	1
其他国家	9	7	1	6
海域	1	2	5	2

由表 1 可见,天津市臭氧污染区域性特征明显。区域输送贡献远大于本地贡献,本地来源贡献率仅占 8%~20%。从季节特征来看,春季(4 月)天津市臭氧污染主要来源于河北省(17%)、东南地区(16%)、内蒙古自治区(13%)、山东省(11%)和天津市(8%);夏季(7 月)天津市臭氧污染主要来源于河北省(20%)、天津市(18%)、山东省(15%)和东南地区(14%);秋季(10 月)天津市臭氧污染主要来源于河北省(21%)、内蒙古自治区(17%)、天津市(14%)和山东省(10%);冬季(1 月)天津市臭氧污染主要来源于河北省(21%)、天津市(20%)、内蒙古自治区(10%)、山东省(10%)和西部地区(10%)。造成天津市臭氧来源季节差异的原因主要是风速与风向的季节差异,根据天津市气象科学研究所的风速数据,春季风速最大,外来输送影响明显较强,本地贡献较小,而且风向多变,多个方位的风向频率接近,因此天津市的臭氧来源较分散;夏季东风、东南风、南风与西南风的概率高达 71%,因此河北省与东南地区的贡献较大;秋季风速最小,风向以西南风与偏北风为主,天津市的臭氧主要来源于本地与邻近周边地区;冬季风速较低,以北风、西北风与西风为主,天津市西北方向的省份对天津市臭氧的贡献高于其他季节。从天津市臭氧污染区域来源特征来看,臭氧污染区域特征明显,河北省、山东省、内蒙古自治区等

地区污染物排放对天津市臭氧污染有较大贡献,加强天津市与河北省、山东省、内蒙古自治区等污染联防联控可能是解决天津市臭氧污染问题的重要手段。

2.3 天津市臭氧的行业来源

天津市本地排放源对臭氧污染的贡献季节性特征明显(见图 5),春季天津市本地排放源对臭氧污染贡献最明显的是工业源,贡献率为 49%,然后依次为天然源(21%),交通源(15%),包括生物质燃烧源、居民燃烧等的其他源(10%)和电厂源(5%);夏季天津市本地排放源对其臭氧污染贡献较为均衡,其中交通源贡献率 30%,工业源贡献率 27%,天然源贡献率 21%,电厂源贡献率 20%,其他源贡献率 2%;秋季天津市本地排放源对臭氧污染贡献最明显的是工业源,贡献率为 43%,然后依次为天然源(25%)、交通源(17%)、其他源(13%)和电厂源(2%);冬季天津市本地排放源对臭氧污染贡献最明显的是其他源,贡献率为 54%,然后依次为工业源和交通源,贡献率分别为 30%和 16%,冬季天气寒冷,天然源挥发的 VOCs 很低,天然源对臭氧的贡献率接近 0。由于天津市本地排放源对臭氧污染的贡献季节性特征明显,应分季节采取不同臭氧污染防治策略以有效控制天津市的臭氧污染。

3 结 论

使用天津市 2013—2017 年的连续臭氧观测数据分析了天津市的臭氧污染特征,并使用 SMOKE/WRF/CAMx-OSAT 模型研究了天津市不同季节的臭氧来源情况,主要结论如下:

(1) 近年天津市臭氧污染整体波动变化,年均浓度总体呈现先下跌后上升的趋势;夏季臭氧浓度较高,春季、秋季浓度较低,冬季浓度最低;天津市臭氧浓度高值区主要集中在中心城区、北部地区和西北部地区,而东部地区和西南部地区污染相对较轻。

(2) 天津市臭氧污染区域性特征明显,区域输送贡献大于本地贡献,本地臭氧来源贡献率仅占 8%~20%;河北省、山东省、内蒙古自治区等地区污染物排放对天津市臭氧污染有较大贡献。应加强天津市与河北省、山东省、内蒙古自治区等污染联防联控,以解决天津市臭氧污染问题。

(3) 本地源对天津市臭氧的贡献季节差异较大,其中工业源贡献较大,其在春季、秋季对臭氧贡献率分别为 49%、43%;夏季天然源、工业源、交通源与电厂源对臭氧贡献率较为接近,均在 20%~

30%;冬季其他源对臭氧贡献率最大,为54%。未来应分季节采取不同臭氧污染防治策略以实现高效控制天津市臭氧污染。

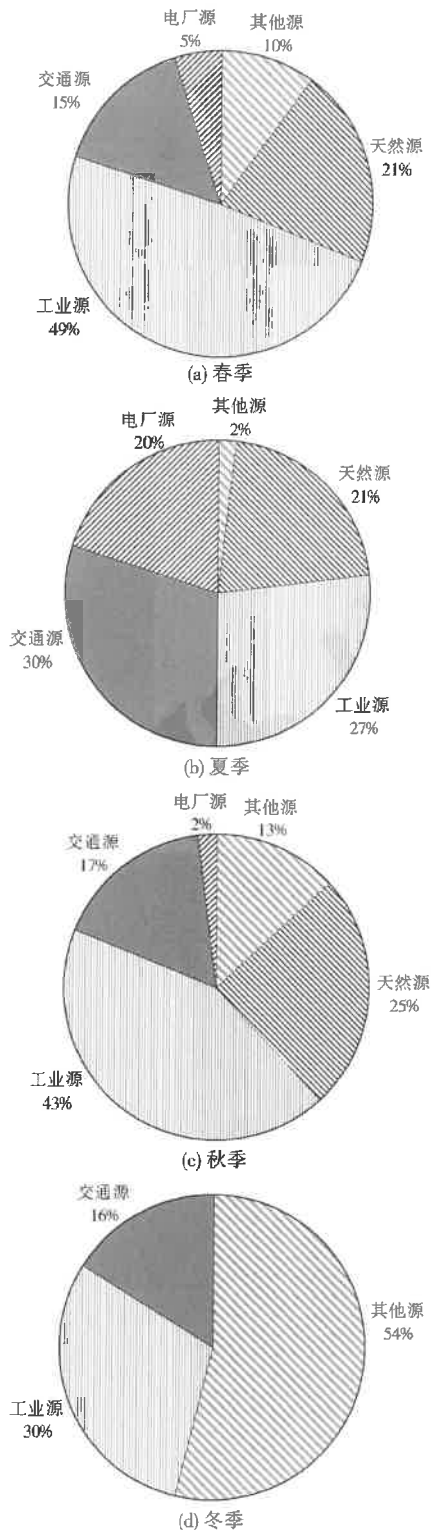


图5 天津市不同本地排放源的臭氧贡献
Fig.5 Different local emission sectors contribution to ozone in Tianjin

参考文献:

- [1] DOHERTY R M. Atmospheric chemistry: ozone pollution from near and far[J]. Nature Geoscience, 2015, 8(9): 664-665.
- [2] IQBAL M A, KIM K H, SHON Z H, et al. Comparison of ozone pollution levels at various sites in Seoul, a megacity in Northeast Asia[J]. Atmospheric Research, 2014, 138: 330-345.
- [3] SHI C, WANG S, LIU R, et al. A study of aerosol optical properties during ozone pollution episodes in 2013 over Shanghai, China[J]. Atmospheric Research, 2015, 153: 235-249.
- [4] GRYPARIS A, FORSBERG B, KATSOUYANNI K, et al. Acute effects of ozone on mortality from the "air pollution and health: a European approach" project[J]. American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine, 2004, 170(10): 1080-1087.
- [5] WANG Z, LI Y, CHEN T, et al. Ground-level ozone in urban Beijing over a 1-year period: temporal variations and relationship to atmospheric oxidation[J]. Atmospheric Research, 2015, 164: 110-117.
- [6] VON SCHNEIDEMESSER E, MONKS P S, ALLAN J D, et al. Chemistry and the linkages between air quality and climate change[J]. Chemical Reviews, 2015, 115(10): 3856-3897.
- [7] 廖志恒, 孙家仁, 范绍佳, 等. 2006—2012年珠三角地区空气污染变化特征及影响因素[J]. 中国环境科学, 2015, 35(2): 329-336.
- [8] MA Z, HU X, SAYER A M, et al. Satellite-based spatiotemporal trends in PM_{2.5} concentrations: China, 2004-2013[J]. Environmental Health Perspectives, 2016, 124(2): 184-192.
- [9] VERSTRAETEN W W, NEU J L, WILLIAMS J E, et al. Rapid increases in tropospheric ozone production and export from China[J]. Nature Geoscience, 2015, 8(9): 690-695.
- [10] MA Z, XU J, QUAN W, et al. Significant increase of surface ozone at a rural site, north of eastern China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, 16(6): 3969-3977.
- [11] 关玉春, 肖致美, 陈魁, 等. 天津市臭氧污染特征与影响因素分析[J]. 中国环境监测, 2017, 33(4): 40-49.
- [12] 刘彩霞, 冯银厂, 孙韧. 天津市臭氧污染现状与污染特征分析[J]. 中国环境监测, 2008, 24(3): 52-56.
- [13] 洪礼楠, 黄争超, 秦墨梅, 等. 天津市夏季臭氧污染特征及来源的模拟分析[J]. 北京大学学报(自然科学版), 2017, 53(5): 929-938.
- [14] LI Y, LAU A K H, FUNG J C H, et al. Systematic evaluation of ozone control policies using an ozone source apportionment method[J]. Atmospheric Environment, 2013, 76: 136-146.
- [15] OHARA T, AKIMOTO H, KUROKAWA J I, et al. An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2007, 7: 4419-4444.
- [16] DUNKER A M, YARWOOD G, ORTMANN J P, et al. Comparison of source apportionment and source sensitivity of ozone in a three-dimensional air quality model[J]. Environmental Science & Technology, 2002, 36(13): 2953-2964.

编辑: 丁 怀 (收稿日期: 2018-04-08)