

台州市区臭氧污染特征及来源解析

何微娜¹, 谢松青¹, 陶志华¹, 李伟²

(1. 台州市环境监测中心站, 浙江 台州 318000; 2. 浙江大学环境工程研究所, 浙江 杭州 310058)

摘要:利用台州市区2013—2017年O₃监测数据分析其污染特征,并采用CMAQ模型研究各类污染源对O₃的贡献率。结果表明:台州市区O₃年均浓度稳定,月均浓度4—10月较高,日小时浓度呈单峰型,峰值出现在13:00左右;在温度较高、相对湿度50%~80%、风速1.0 m/s~3.0 m/s、风向为偏东时O₃浓度相对较高,易出现超标现象;本地排放源是O₃形成的主要来源,各季节贡献率略有差异,分别为春季(72.28%)、夏季(69.95%)、秋季(69.24%)、冬季(66.28%);工艺过程源、道路移动源和居民生活源是O₃形成的3大来源,贡献率分别为26.32%、12.89%和9.91%。

关键词: 臭氧;污染特征;来源解析;CMAQ模型;台州

中图分类号:X515

文献标志码:B

文章编号:1006-2009(2020)03-0024-05

Study on Pollution Characteristics and Source Apportionment of Ozone in Taizhou

HE Wei-na¹, XIE Song-qing¹, TAO Zhi-hua¹, LI Wei²

(1. Taizhou Environmental Monitoring Center, Taizhou, Zhejiang 318000, China;

2. Institute of Environmental Engineering, Zhejiang University, Hangzhou, Zhejiang 310058, China)

Abstract: The characteristics of O₃ pollution in Taizhou were analyzed by the monitoring data from 2013 to 2017, and the contribution rate of each source was studied by CMAQ model. The results showed that the annual average concentration of O₃ was stable in recent years. The monthly average concentration was high from April to October. The diurnal change of hourly concentration was unimodal, the peak appeared at around 13:00. The concentration was high in the conditions of high temperature, 50%~80% of relative humidity, 1.0 m/s~3.0 m/s of wind speed and easterly winds, and was easy to exceed the standard limit. O₃ pollution was mainly contributed by local emissions. The contribution rate was 72.28% in spring, 69.95% in summer, 69.24% in autumn and 66.28% in winter. The three largest contributors to O₃ were industrial production (26.32%), mobile source (12.89%) and domestic pollution source (9.91%).

Key words: Ozone; Pollution characteristic; Source apportionment; Community multiscale air quality (CMAQ) model; Taizhou

随着社会经济和城镇化快速推进,空气污染日益严重^[1],环境空气由过去比较单一的大气污染向大气复合污染转变^[2],以细颗粒物(PM_{2.5})和臭氧(O₃)为特征的区域性复合空气污染日益突出^[3]。虽然近几年国家加大了对大气污染的治理力度,不少地区PM_{2.5}浓度显著下降,但O₃污染问题日益显现^[4-5],特别是经济快速增长、人口密集的京津冀^[6-7]、长三角^[8-9]及珠三角^[10-11]地区,O₃污染不容忽视。因此,对大气O₃浓度监测分析,了

解其污染来源及贡献,制定科学的减排措施,具有十分重要的意义。

台州位于长江三角洲南端,民营经济活跃,重

收稿日期:2018-10-29;修订日期:2020-03-03

基金项目:2016年度国家自然科学基金委员会青年基金资助项目(51608475);浙江省科技厅公益技术研究工业基金资助项目(2015C31011)

作者简介:何微娜(1987—),女,浙江台州人,工程师,硕士,主要从事环境空气监测研究。

污染行业为医药、化工、固废拆解及橡胶和塑料制品, O_3 前体物排放量不可忽视。此外, 台州东临大海, 紫外线照射较强, 气候有利于 O_3 生成。然而, 有关台州近地面 O_3 分析, 特别是源解析研究基本为空白^[8,12], 故有必要对台州的 O_3 特征进行分析研究。今利用台州市区 2013—2017 年 O_3 监测数据分析其污染特征, 并通过 CMAQ (Community Multiscale Air Quality) 模型计算各类污染源对 O_3 的贡献率, 以期为客观认识区域内光化学污染和制定环境调控政策提供科学依据。

1 数据与方法

1.1 数据来源

台州市区有 3 个国控环境空气质量监测站点, 分别是台州环保大楼 (E121. 42°, N28. 65°)、黄岩环保大楼 (E121. 28°, N28. 66°) 和路桥田洋王 (E121. 38°, N28. 58°)。监测指标包括 SO_2 、 NO_2 、 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 、 O_3 、CO 等。文中采用的环境空气质量监测资料来自浙江省区域大气环境数据管理应用系统, 气象资料来自台州市气象局。

1.2 数值模型方法

基于台州市大气污染源排放清单, 以及获取的 MEIC (Multi-resolution Emission Inventory for China) 清单, 采用 WRF (Weather Research and Forecasting model) 中尺度气象模式模拟研究区域的气象场条件, 并采用 CMAQ 模型搭建光化学复合污染模拟平台, 模拟台州市区 O_3 污染特征及浓度时空分布。文中选用的化学机制为 CB05, 采用 3 层嵌套网格: 第一层为我国东部地区, 范围 1 620 km × 1 620 km, 分辨率 27 km; 第二层为浙江地区, 范围 594 km × 594 km, 分辨率 9 km; 第三层包括台州市

3 个城区 (椒江区、黄岩区、路桥区) 和 6 个县市 (临海市、温岭市、玉环市、天台县、仙居县、三门县), 范围 222 km × 195 km, 分辨率 3 km。外层为内层提供边界条件, 以提高内层模拟的准确性, 最终的核心研究区域为台州市区 3 个城区。模拟使用的区域排放清单: 第一层和第二层排放数据来自 MEIC 清单, 第三层排放数据为台州市大气污染源排放清单, 并参考文献 [13] 对各类污染源的排放清单进行详细计算, 再根据道路、人口、土地利用等作为权重分配到研究区域网格中。图 1(a)(b) 分别为 O_3 主要前体物 NO_x 和 VOCs 的面源排放速率分布。天然排放的 VOCs 采用美国国家大气研究中心研发的 MEGAN 生物源处理模式计算得到^[14]。

所需气象数据来自美国国家环境预报中心的全球再分析资料, 为了减少气象场边界对模拟结果的影响, 各个方向 WRF 模式网格均比 CMAQ 多 6 格。模拟时间取基准年 2014 年的 1 月、4 月、7 月和 10 月 4 个典型月份代表四季污染特征。模型运行时各模拟月前一周模拟时间作为 “spin-up” 时间, 以减少初始条件的影响效应。

1.3 污染源类别

将台州市本地污染源分为电力 (燃煤/燃气/垃圾发电等), 工业燃烧 (主要为工业燃煤), 工艺过程 (除燃煤外工业生产过程的排放源), 道路移动源 (机动车等), 非道路移动源 (农业/工程机械、轮船等), 居民生活源 (居民生活、餐饮等), 农牧源 (农业活动、生物质开放燃烧等), 其他人为源 (其他未标明的源) 8 类, 台州市以外污染源为 1 类, 再采用 CMAQ 模型中的 ISAM (Integrated Source Apportionment Method) 源追踪算法计算台州市本地污染源及外来源对市区大气中 O_3 的贡献。

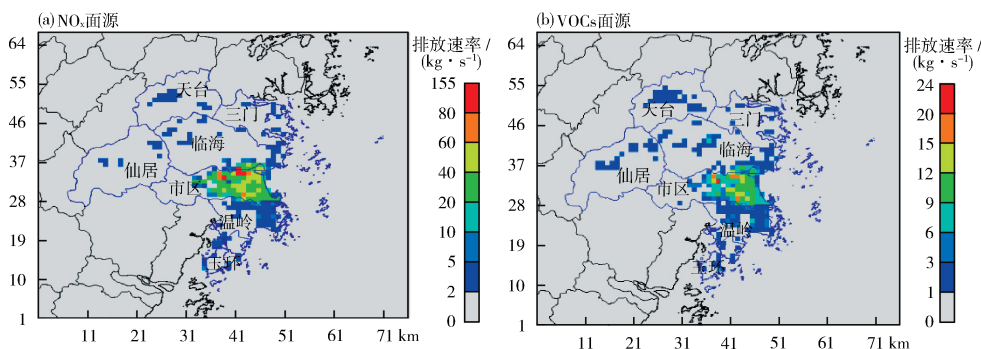


图 1 台州市 NO_x 和 VOCs 面源排放速率分布

Fig. 1 Distribution of NO_x and VOCs emission rates from the areal source in Taizhou

2 结果与讨论

2.1 台州市区 O₃ 污染总体特征

2013—2017年台州市区 O₃ 年均质量浓度第90百分位分别为 154 μg/m³、139 μg/m³、147 μg/m³、146 μg/m³ 和 143 μg/m³,基本处于稳定状态,O₃ 日最大8 h 浓度超过《环境空气质量标准》(GB 3095—2012) 二级标准限值的比例(以下简称超标率)分别为 7.4%、4.4%、4.4%、5.2% 和 3.3%,基本呈下降趋势。虽然台州市区 O₃ 年均质量浓度变化不大,但 O₃ 作为首要污染物天数(105 d、103 d、122 d、114 d 和 143 d)呈上升趋势。说明近年来台州市区的光化学污染需要引起高度重视。

图2为2013—2017年台州市区 O₃ 月均质量浓度变化。由图2可见,2013—2017年台州市区 O₃ 月均质量浓度大致呈中间高、头尾低的变化趋势,4—10月浓度较高,6月、8月中有相对低值出现。由于这段时间虽光照条件有利于 O₃ 生成,但也是梅雨或台风暴雨频发季节,对大气污染物起到稀释和沉降作用。10月 O₃ 浓度仍处于高值,此时光照条件仍有利于 O₃ 生成,台风暴雨活动减少,且易受大陆污染气团的影响,有高浓度 O₃ 输入,同时边界层降低不利于 O₃ 扩散^[15]。11月随着气温、太阳辐射及日照时数的下降,O₃ 浓度也随之降低。

图3为2013—2017年台州市区 O₃ 小时质量浓度变化。由图3可见,2013—2017年台州市区 O₃ 小时质量浓度呈单峰型变化特征,这与许多城市的 O₃ 日变化特征一致^[16-17]。日出前 O₃ 浓度处于全日低值区,日出后 O₃ 开始形成,此时太阳紫外线较弱,O₃ 形成较慢,随着上班早高峰带来的 O₃ 前体物(NO_x、CO 和 VOCs 等)浓度升高,消耗了部分 O₃,使得 O₃ 在 5:00—7:00 出现一天中的最低值;8:00 后随着太阳辐射增强和温度升高,光化学反应加快,O₃ 浓度逐步升高,13:00 左右出现一天中的最

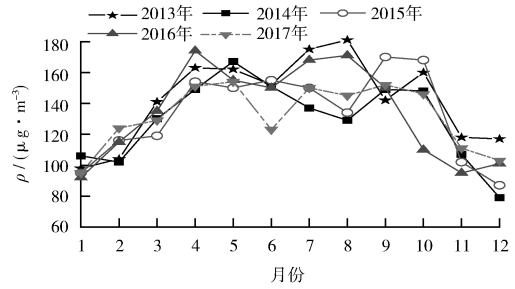


图2 2013—2017年台州市区 O₃ 月均质量浓度变化
Fig.2 Variation of O₃ monthly average mass concentration from 2013 to 2017 in Taizhou

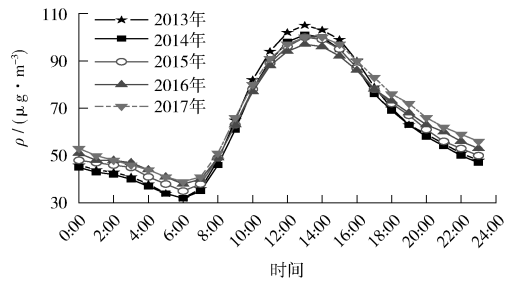


图3 2013—2017年台州市区 O₃ 小时质量浓度变化
Fig.3 Variation of O₃ hourly mass concentration per day from 2013 to 2017 in Taizhou

高值;18:00 后直至夜间,随着太阳辐射逐渐变弱及 NO 等还原物质消耗,O₃ 浓度开始下降。

2.2 O₃ 浓度与气象关系

O₃ 与气象因子关系的研究,不同地区研究结论略有差异,可在太阳辐射、气温、相对湿度、降水等方面有大致相同结论^[18-19],一般情况下,晴天少云、紫外线较强、相对湿度较低、气温较高且风速较小的天气条件有利于 O₃ 的生成。图4(a)(b)(c)为研究期间不同气象条件下 O₃ 日均浓度变化。由图4可见,台州市区 O₃ 浓度与温度呈正相关,随温度升高,O₃ 浓度和超标率均明显上升,这与其他地

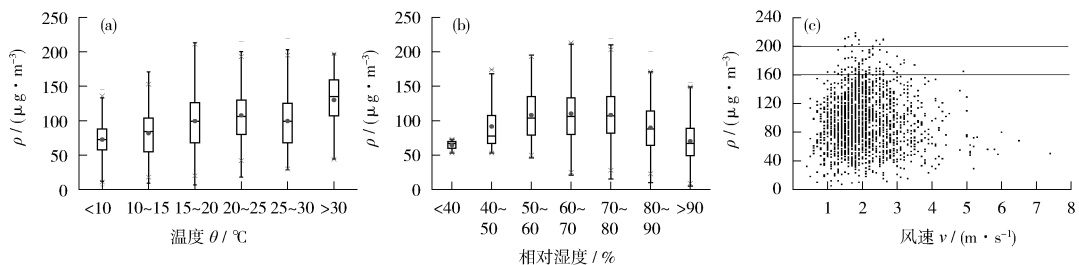


图4 研究期间不同气象条件下 O₃ 日均质量浓度变化

Fig.4 Variation of O₃ daily average mass concentration under different meteorological conditions during the study

方观察到的变化趋势基本一致^[20];在相对湿度 50%~80% 范围内, O₃ 浓度较高且易超标;当风速介于 1.0 m/s~3.0 m/s 之间时, 容易出现 O₃ 高值, 平均浓度也较高。

考察春、夏、秋 3 个容易出现 O₃ 高值的季节在不同风向下的 O₃ 浓度(见图 5), 发现 O₃ 超标率不仅在不同季节有较大变化, 而且在不同风向上也有一些差异。春季以 NE—SE 的偏东风为主导风向, 该风向下 O₃ 容易出现超标现象 (>160 μg/m³); 夏天盛行 E—SW 的偏南风, 在 SE 和 E 方位上 O₃ 浓度和超标率较高; 秋季主导风向是 NW, 以 E 方位 O₃ 浓度和超标率最高。总体而言, 导致台州市区 O₃ 浓度升高的污染源主要来自偏东方向。

2.3 基于 CMAQ 模型的 O₃ 来源解析结果

为量化模拟结果的准确性, 采用归一化平均偏差(NMB)、归一化平均误差(NME)、相关系数(R)等指标评价模拟值和监测值的相符性。一般认为, 当 NMB 在 ±60% 内, NME 在 ±75% 内时, 模拟结果比较可靠^[21]。文中对 2014 年椒江区、路桥区、黄岩区 3 个站点的模拟值和监测值统计发现, NMB 为 -20%~60%, NME 为 19%~75%, R 为 0.32~0.85, 均在此范围内, 说明所采用的排放清单及 CMAQ 模拟结果比较可信。

采用 CMAQ 模型中的 ISAM 源追踪法分析得

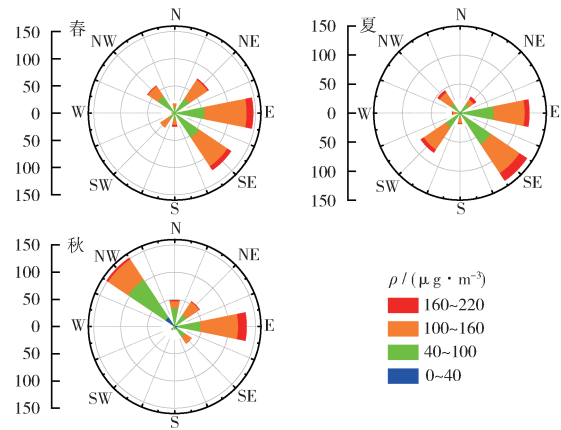


图 5 春、夏、秋 3 个季节的 O₃ 质量浓度风玫瑰图

Fig. 5 Wind Rose of O₃ mass concentration in spring, summer and autumn

出 2014 年四季各类污染源对台州市椒江区、路桥区、黄岩区的 O₃ 贡献率, 见表 1。由表 1 可知, 本地污染源排放是台州市区 O₃ 形成的主要来源, 不同季节贡献率略有差异, 依次为春季(72.28%)>夏季(69.95%)>秋季(69.24%)>冬季(66.28%)。造成 O₃ 来源季节性差异的原因主要是季节主导风向的不同和上风方向地区排放源强弱差异。台州市区春季以偏东风为主导风向, 而该方向是本地医化企业聚集地, 污染源排放强, 前体物

表 1 2014 年四季各类污染源对台州市区 O₃ 生成的贡献率

Table 1 Contribution rate of each pollution source to O₃ at four seasons in 2014 in Taizhou

点位	季节	电力源	工业燃烧源	工艺过程源	道路移动源	农牧源	居民生活源	非道路移动源	其他源	外来源
椒江	冬季	5.72	0.91	27.57	13.74	0.40	9.42	5.33	2.38	34.53
	春季	4.65	1.12	28.02	12.24	0.42	10.38	7.82	5.52	29.83
	夏季	7.39	2.06	25.29	11.84	0.25	10.86	5.24	6.93	30.14
	秋季	4.34	1.53	21.67	12.74	0.94	9.91	9.36	6.53	32.98
	全年	5.52	1.40	25.64	12.64	0.50	10.14	6.94	5.35	31.87
黄岩	冬季	10.03	0.81	26.81	13.43	0.41	9.03	4.70	2.07	32.71
	春季	5.68	0.94	32.63	12.28	0.42	9.99	6.52	4.95	26.59
	夏季	8.23	1.92	26.09	11.26	0.26	11.38	5.45	6.32	29.09
	秋季	4.55	1.49	26.51	11.54	1.10	10.72	9.14	5.80	29.15
路桥	冬季	7.12	1.29	28.01	12.13	0.55	10.28	6.45	4.79	29.38
	春季	8.58	0.85	25.69	14.69	0.35	8.69	5.06	2.16	33.93
	夏季	5.98	1.08	31.58	13.81	0.37	8.69	6.27	5.48	26.74
	秋季	8.34	1.88	24.00	13.12	0.24	9.44	4.97	7.09	30.92
	全年	5.96	1.78	19.96	14.01	1.01	10.35	9.35	7.42	30.16
全市	冬季	7.22	1.40	25.31	13.91	0.49	9.29	6.41	5.53	30.44
	春季	8.11	0.86	26.69	13.95	0.39	9.05	5.03	2.20	33.72
	夏季	5.44	1.05	30.74	12.78	0.40	9.69	6.87	5.31	27.72
	秋季	7.99	1.95	25.13	12.07	0.25	10.56	5.22	6.78	30.05
	全年	4.95	1.60	22.71	12.76	1.02	10.33	9.28	6.59	30.76
全年	6.62	1.36	26.32	12.89	0.52	9.91	6.60	5.22	30.56	

浓度高,本地源贡献高于其他季节。冬季以西北风为主导风向,气团来自内陆地区,人类活动和交通排放较多,大陆气团带来的 O_3 前体物输送较多。

从3个区来看,椒江区电力源对 O_3 生成的贡献略低于黄岩区和路桥区;黄岩区工艺过程源的贡献率略高于椒江区和路桥区;路桥区道路移动源的贡献率略高于椒江区和黄岩区,居民生活源的贡献率略低于椒江区和黄岩区;3个区工业燃烧源、农牧源和非道路移动源的贡献率相近。外来源中,椒江区受影响最大,为31.87%,这也与其地理位置较吻合,台州市区受外来源的主要影响是偏北风向,椒江区最先受到影响。

总体来看,台州市区 O_3 污染的形成主要来源于本地源排放,工艺过程源、道路移动源和居民生活源是3大主要贡献源,贡献率分别为26.32%、12.89%和9.91%,要降低台州市区大气环境中的 O_3 浓度,须从这3大重点排放源的减排入手。

3 结论

(1)台州市区 O_3 年均浓度基本处于稳定状态; O_3 月均浓度变化趋势呈现中间高、头尾低的特点,4—10月 O_3 浓度较高; O_3 小时浓度呈现单峰型变化特征,峰值出现在13:00左右。

(2)台州市区 O_3 浓度变化与温度呈正相关;在相对湿度为50%~80%或风速介于1.0 m/s~3.0 m/s之间时, O_3 浓度较高;当风向偏东风时, O_3 浓度高于其他风向。

(3)台州市区本地 O_3 前体物排放是 O_3 形成的主要来源,各个季节 O_3 贡献率依次为春季(72.28%)>夏季(69.95%)>秋季(69.24%)>冬季(66.28%)。各污染源对椒江区、黄岩区和路桥区的贡献基本一致,略有差别。

(4)台州市区 O_3 形成主要来源于本地源排放,工艺过程源、道路移动源和居民生活源是3大主要贡献源,贡献率分别为26.32%、12.89%和9.91%,要降低台州市区大气环境中 O_3 的浓度,必须从这3大重点排放源的减排入手。

[参考文献]

[1] CHAN C K, YAO X H. Air pollution in mega cities in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42: 1-42.
 [2] 李文慧, 陈洁, 王繁强, 等. 基于修正A值法的西安市大气环境容量与剩余容量估算[J]. *安全与环境工程*, 2013, 20(4):

71-75.

[3] CHE H Z, ZHANG X Y, LI Y, et al. Haze trends over the capital cities of 31 provinces in China, 1981—2005[J]. *Theoretical and Applied Climatology*, 2009, 97: 235-242.
 [4] XU X, LIN W, WANG T, et al. Long-term trend of surface ozone at a regional background station in eastern China 1991—2006: enhanced variability[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, 8: 2595-2607.
 [5] REDDY B S K, KUMAR K R, BALAKRISHNAIAH G, et al. Analysis of diurnal and seasonal behavior of surface ozone and its precursors(NO_x) at a semi-arid rural site in southern India[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2012, 12: 1081-1094.
 [6] 潘本锋, 程麟钧, 王建国, 等. 京津冀地区臭氧污染特征与来源分析[J]. *中国环境监测*, 2016, 32(5): 17-23.
 [7] 石玉珍, 徐永福, 王庚辰, 等. 北京市夏季 O_3 、 NO_x 等污染物“周末效应”研究[J]. *环境科学*, 2009, 30(10): 2832-2838.
 [8] 孙思思, 丁峰, 陆晓波, 等. 南京市典型臭氧污染过程的激光雷达垂直观测解析[J]. *环境监测管理与技术*, 2018, 30(3): 60-63.
 [9] TONG L, ZHANG H L, YU J, et al. Characteristics of surface ozone and nitrogen oxides at urban, suburban and rural sites in Ningbo, China[J]. *Atmospheric Research*, 2017, 187: 57-68.
 [10] 林楚雄, 陈嘉晔, 李红霞, 等. 基于CAMx模型的珠江口东岸秋季臭氧来源解析[J]. *安全与环境工程*, 2017, 24(1): 51-56.
 [11] 张莹, 岳珂利, 江明, 等. 珠江三角洲臭氧污染特征与趋势初步分析[J]. *广东化工*, 2016, 43(12): 152-153.
 [12] 刘芷君, 谢小训, 谢旻, 等. 长江三角洲地区臭氧污染时空分布特征[J]. *生态与农村环境学报*, 2016, 32(3): 445-450.
 [13] 程钟, 章建宁, 周俊, 等. 常州市大气污染物排放清单及分布特征[J]. *环境监测管理与技术*, 2016, 28(3): 24-28.
 [14] 周葳. 常州地区植被排放VOC的估算研究[J]. *环境监测管理与技术*, 2013, 25(4): 13-17.
 [15] 刘建, 吴兑, 范绍佳, 等. 前体物与气象因子对珠江三角洲臭氧污染的影响[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(3): 813-820.
 [16] 王占山, 李云婷, 陈添, 等. 北京市臭氧的时空分布特征[J]. *环境科学*, 2014, 35(12): 4446-4453.
 [17] 张璘, 孟晓艳, 秦玮, 等. 南京市臭氧、VOCs和PANs污染特征及变化趋势[J]. *中国环境监测*, 2017, 33(4): 80-88.
 [18] 周雪玲, 梁家权. 佛山市近地面臭氧污染特征及相关气象因子分析[J]. *环境监控与预警*, 2016, 8(2): 39-44.
 [19] 齐冰, 牛彧文, 杜荣光, 等. 杭州市近地面大气臭氧浓度变化特征分析[J]. *中国环境科学*, 2017, 37(2): 443-451.
 [20] 徐少才, 薛莲, 薛传文, 等. 青岛市大气臭氧的生成敏感性与影响因素分析[J]. *环境监测管理与技术*, 2016, 28(2): 19-22.
 [21] BERGE R, LÓPEZ J, LUMBRERAS J, et al. Influence of boundary conditions on CMAQ simulations over the Iberian Peninsula[J]. *Atmospheric Environment*, 2010, 44: 2681-2695.