李欣怡, 向伟玲, 陈学舜, 等. 2019. 曹妃甸工业区空气污染来源及其对周边地区污染贡献的数值模拟研究 [J]. 气候与环境研究, 24(4): 469−481. Li Xinyi, Xiang Weiling, Chen Xueshun, et al. 2019. Modeling study of PM2.5 source apportionment over the Caofeidian industrial zone and surrounding areas [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 24(4): 469−481. doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2018.18022

曹妃甸工业区空气污染来源及其对周边地区污染贡献的数值模拟研究

李欣怡[1]　向伟玲[2, 3]　陈学舜[2, 3]　朱莉莉[4]　王自发[2, 3]　杨文夷[2, 3]

1 北京师范大学环境学院，北京 100875
2 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理与大气化学国家重点实验室，北京 100029
3 中国科学院城市环境研究所区域大气环境研究卓越创新中心，厦门 361021
4 中国环境监测总站，北京 100012

摘　要　为了深入研究曹妃甸工业区的建立和大型工业企业的迁入对京津冀地区空气质量的影响，利用嵌套网格空气质量预报模式系统NAQPMS（Nested Air Quality Prediction Modeling System）研究该工业区和周边地区在2016年秋、冬季空气质量状况，并对PM2.5（空气动力学当量直径小于等于2.5 μm的颗粒物，即细颗粒物）来源与区域输送进行分析。结果表明：模式能很好地再现气象要素和污染物浓度分布特征；曹妃甸地区本地排放在1月和10月的月均贡献分别为17.8%和25.8%。当空气质量为优良时，曹妃甸地区PM2.5主要受短距离周边传输影响，唐山和天津贡献率之和达23%～53%；当空气出现轻度及以上污染时，曹妃甸地区PM2.5浓度主要受到长距离输送的影响，河北中南部和山东地区贡献之和达40%～50%。曹妃甸工业园区排放对周边地区PM2.5浓度贡献相对较小，对唐山和天津地区贡献为3%～7%，对京津冀地区其他城市PM2.5浓度贡献可忽略不计。空气质量转差时，曹妃甸、北京和天津地区PM2.5中一次排放占比相较于空气质量优良时明显下降，二次生成的无机盐类和二次有机气溶胶贡献率增加；曹妃甸地区10月二次生成硫酸盐贡献率较1月明显增加，月均贡献率为22%。因此，在致力于削减京津冀地区PM2.5一次排放的同时，对SO_2、NO_x等进行控制，能有效改善该地区空气质量。

关键词　曹妃甸　PM2.5　污染来源追踪　NAQPMS预报模式系统
文章编号　1006-9585(2019)04-0469-13　　**中图分类号**　X513　　**文献标识码**　A
doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2018.18022

Modeling Study of PM2.5 Source Apportionment over the Caofeidian Industrial Zone and Surrounding Areas

LI Xinyi[1], XIANG Weiling[2, 3], CHEN Xueshun[2, 3], ZHU Lili[4], WANG Zifa[2, 3], and YANG Wenyi[2, 3]

1 *School of Environment*, *Beijing Normal University*, *Beijing* 100875
2 *State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry*, *Institute of Atmospheric Physics*, *Chinese Academy of Sciences*, *Beijing* 100029
3 *Center for Excellence in Urban Atmospheric Environment*, *Institute of Urban Environment*, *Chinese Academy of Sciences*, *Xiamen* 361021
4 *China National Environmental Monitoring Center*, *Beijing* 100012

收稿日期　2018-11-09；**网络预出版日期**　2018-11-14
作者简介　李欣怡，女，1997年出生，硕士研究生，主要从事空气质量模拟研究。E-mail: lixysherry@163.com
通讯作者　杨文夷，E-mail: yangwenyi@mail.iap.ac.cn
资助项目　国家重点研发计划项目2017YFC0213000，环境保护部公益性行业科研专项201509001
Funded by　Funded by National Key Research and Development Program (Grant 2017YFC0213000), Special Foundation for the Public Service Industry of Ministry of Environmental Protection of China (Grant 201509001)

Abstract The impacts on air quality and source apportionment of PM2.5 in Beijing−Tianjin−Hebei region during the autumn and winter of 2016 after the establishment of the Caofeidian industrial zone were investigated using the nested air quality prediction modeling system (NAQPMS). The model results agreed well with the observed PM2.5 concentrations and meteorological factors. The local emission of Caofeidian was one of the main contributors of PM2.5, and its average percentages in winter and autumn were 17.8% and 25.8%, respectively. The results showed that Caofeidian was mainly affected by short-distance neighbor transport when the PM2.5 concentrations were under 75 μg/m^3, and the total contributions from Tangshan and Tianjin reached 23%−53%. However, when the PM2.5 concentrations in Caofiedian were above 75 μg/m^3, the contributions from long-distance transport, which were mainly from central and southern Hebei, became dominant. In general, the Caofeidian industrial zone had a relatively small PM2.5 contribution to the surrounding areas. The contributions from Caofeidian only accounted for 3%−7% in Tangshan and Tianjin and were almost negligible in the remaining land areas. During pollution episodes, the emission of primary particulate matter significantly decreased, while the contributions from secondary-production increased, including inorganic salts and organic aerosols in PM2.5, compared with those during good air quality period. The contribution of secondary sulfate in Caofeidian area in autumn was 22% on average, which was significantly higher than that in winter. Therefore, while focusing on reducing the primary emission of PM2.5 in Beijing−Tianjin−Hebei areas, controlling SO_2 and NO_x can also effectively improve the air quality in this region

Keywords Caofeidian district, PM2.5, Source tagged, NAQPMS system

1 引言

曹妃甸工业区位于唐山南部沿海、渤海湾中心地带，工业区自2004年起建设以来，十余年间陆续迁入和建立了大型钢铁厂、大型电力、化工等企业，伴随着工业生产和港口运输的飞速发展，同时也附带产生了大量的SO_2、NO_x、PM2.5（空气动力学当量直径小于等于2.5 μm的颗粒物，即细颗粒物）等污染物排放，通过区域输送这些污染物排放可能会对周边地区空气质量产生一定的影响。因此，研究工业区的发展对本地及周边地区环境空气质量的影响，为区域和省市的大气污染控制和环境质量管理提供科学依据支持，成为非常必要和迫切的工作。

由于曹妃甸工业园区内各大企业建立投产时间较短，目前关于该地区空气质量状况的监测和研究都较少，相关研究仅限于对建设初期环境监测，缺乏对曹妃甸工业区建成后本地空气质量和对周边地区影响研究。工业区建设初期空气较为清洁，园区内各种污染物浓度均未超标（李君等，2006），建设中期以土地扬尘等污染源造成粗颗粒物（PM10）超标为主。曹妃甸秋冬采暖季节PM10（空气动力学当量直径小于等于10 μm的颗粒物，即可吸入颗粒物）为176 ± 125 μg/m^3，超标率为47%（周瑞等，2011）。

数值模型被广泛地应用于工业区对城市空气质量影响的评估工作中，如黄艳玲等（2010）利用非稳态拉格朗日烟团模型系统（CALPUFF）分析了佛山市SO_2的分布特征，发现中心城区的工业源排放分布密集且多为中低架源，影响区域主要集中于城区内部。郭健等（2018）利用ADMS（Atmospheric Dispersion Modeling System）模型分析了济南市东部老工业区颗粒物无组织排放对敏感点总悬浮颗粒物PM10、PM2.5贡献质量和日均占标率，发现东部老工业区对济南市环境质量有显著影响。王学远等（2007）用南京大学城市空气质量预报模式（NJU-CAQPS）模拟发现南京市主城区SO_2和PM10污染以城北工业区高架点源为主。国内前期关于工业源排放影响研究多关注工业点源排放对本地影响，且污染物集中于NO_x、SO_2和PM10，关于工业区污染物排放产生PM2.5区域输送的影响研究较少。

针对京津冀、长三角和珠三角等经济较为发达、污染排放较为严重的地区，开展了大量的污染物区域输送和来源解析研究（Li et al.，2012a；Wu et al.，2013；刘俊等，2014；Ge et al.，2014，2018；缪育聪等，2015；刘丽丽和王莉莉，2015；Lin et al.，2016）。李珊珊等（2015）用CAMx（Comprehensive Air Quality Model with Extensions）模型分析曹妃甸所在的唐山市对北京、天津等重点城市PM2.5重污染日贡献率为8%；王自发等（2014）采用源示踪法进行PM2.5源解析，研究表明京津冀地区区域内输送对该地区PM2.5浓度贡献

为 26%～35%；黄蕊珠等（2015）用 NAQPMS 模式对京津冀地区重霾期间 PM2.5 来源分析以及区域外的跨城市群输送对京津冀地区细 PM2.5 的贡献，发现唐山本地排放贡献较大。上述研究多关注京津冀地区主要城市污染排放和区域输送，而对曹妃甸地区产生污染以及其污染的区域输送研究有限，没有涉及更加精细的特定工业园区相关的区域传输和源解析问题。因此，曹妃甸工业区建设后对周边地区空气质量影响和曹妃甸工业区空气污染来源解析成为迫切需要探究的问题。

本文拟利用已有数值预报模式模拟京津冀区域传输和来源解析，并进行更精细的针对新建工业园区 PM2.5 来源及对周边地区空气质量影响研究。本研究通过 NAQPMS 数值模式对曹妃甸工业园区空气质量状况进行模拟，评估新型工业园区建设对该地区和周边京津冀地区空气质量的影响。为未来建立更多的绿色环保、可持续发展的工业区提供参考。

2　研究方法

2.1　模式介绍

本文采用嵌套网格空气质量数值模式（NAQPMS），是由中国科学院大气物理研究所自主研发的多物种、多尺度模拟系统。NAQPMS 基于“一个大气”理念设计，综合考虑气溶胶及其前体物在大气中的排放、平流输送、扩散及干、湿沉降等物理化学过程。其中，气相化学和液相化学分别采用 CBM-Z 和改进的 RADM2 机制（李杰等，2014)。无机气溶胶化学采用 ISSORROPIA 等机制，而二次有机气溶胶采用基于挥发性分级的 VBS 方案（Donahue et al.，2006）。沙尘和海盐计算则利用罗淦和王自发（2006）及 Athanasopoulou et al.（2008）研发的产生机制。考虑到非均相化学反应的复杂性，模式包括 28 个化学反应来模拟。NAQPMS 模式耦合了污染来源识别与追踪模块，通过对源排放和各种物理化学过程标记，进行分源类别、分地域质量追踪，从而可定量分析不同区域、不同组分对目标区域的污染物贡献率（Li et al.，2012b）。此方法综合传统源解析和气象追溯优点，有效减小非线性过程误差和节约大量计算时间（Li et al.，2008；陈焕盛等，2010；Wang et al.，2014）。NAQPMS 空气质量模式及其在线耦合源追踪技术已经广泛应用于我国多地区空气质量污染来源解析和预报预警工作中（陈焕盛等，2013；王文丁等，2016）。

2.2　模式设置

模式区域设置如图 1a 所示，利用嵌套技术，设置从东亚到京津冀的三重嵌套区域。第一层区域（d01）覆盖了中国大部分地区，网格分辨率为 27 km；第二层区域（d02）覆盖了京津冀及周边地区，主要考虑了京津冀与周边省市污染物相互输送影响，分辨率为 9 km；第三层区域（d03）覆盖了京津冀地区，主要考虑了京津冀地区各城市相互输送对于唐山市及曹妃甸循环经济示范区的影响，模式分辨率为 3 km。在垂直方向上 NAQPMS 采用地形追随坐标系，不均匀地分为 20 层，模式顶高度为海拔 20 km，其中有 7 层位于距地面 1～2 km 范围内。

气象模式 WRFv3.5 的初始条件和边界条件由时间分辨率为 6 h 的 NCAR/NCEP FNL（Global Object final analysis）再分析资料提供，其中海面

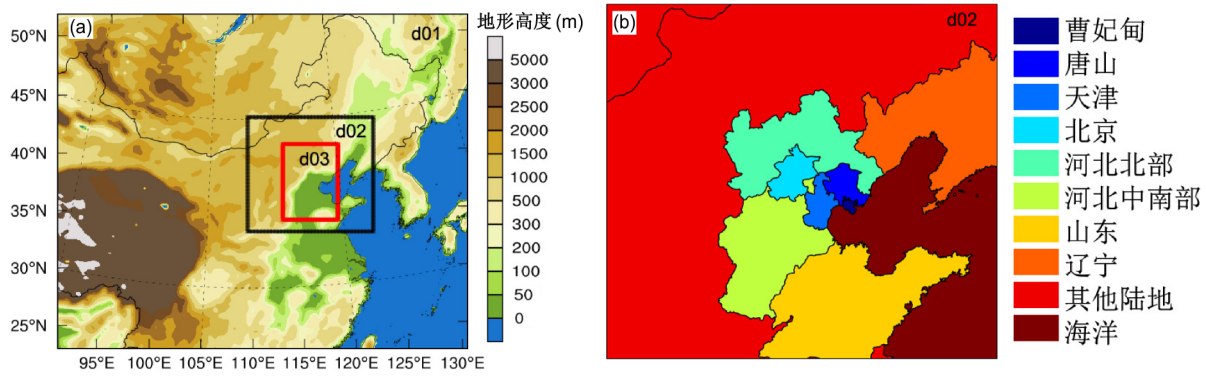

图 1　（a）模式区域设置及（b）曹妃甸与周边地区来源地划分

Fig. 1　(a) Model regional settings and (b) the ten source-tagged regions of Caofeidian and surrounding areas

区域边界条件由SST资料提供。模拟中使用全球地面和探空观测资料进行客观分析以提高中尺度网格气象场初始条件的准确性，同时采用四维数据同化方案（FDDA&SFDDA）逼近风、温、湿、压场，通过后处理程序得到NAQPMS使用的气象驱动场，该模式的初始和边界条件来源于全球大气化学输送模式MOZARTv2.4的模拟结果。

人为源排放源清单采用清华大学提供的MEIC排放清单，以2014年为基准年，模式分辨率为0.25°（纬度）×0.25°（经度）。曹妃甸及周边地区典型污染物排放总量如表1所示。为追踪曹妃甸与周边地区PM2.5间相互影响，NAQPMS 标记了10个地区，空间分布见图1b。

考虑到秋冬季节是一年中大气污染相对最严重的季节，对研究工业区本地排放和区域传输的最大影响程度有典型代表意义，选取2016年1月和10月作为秋冬季节具有代表性月份进行模拟。模拟时间段分别为2015年12月15日至2016年1月31日以及2016年09月15日至10月31日，为了减少因初始条件扰动对模拟结果的影响，提前15天作为模式预积分时段。

2.3 观测数据来源

相关试验模拟和校验分析的数据包括空气质量监测和气象观测数据。空气质量监测数据来源于中国环境监测总站公开发布的国家环境空气质量自动监测网络，包括338个地级以上城市的1436个空气自动监测站经过质量控制的PM2.5、PM10、O_3、SO_2、NO_2、CO六项主要污染物的小时监测数据，选取了曹妃甸、北京和天津的站点进行PM2.5浓度验证。气象场中包括各气象要素如风力大小和方向、气温、气压等对污染物输送、污染物二次反应有较大影响的要素。为了验证模拟数据的可用性，本文选取气候资料国际交换站北京站（站号54511）和天津站点（站号54523）的2016年1月和10月观测值和模拟值进行对比。

3 模拟的基本结果和验证

3.1 气象要素模拟和校验

图2和图3展示了北京站和天津站气象要素模拟和观测结果的对比。结果表明：WRF模式模拟的温度、相对湿度和风速风向与观测值总体上相关性较好，相关系数在0.9以上。在温度和湿度模拟方面，WRF模式能较好地模拟出温度波动变化和趋势，一致性和同步性高。风场模拟方面，模式很好地表征了模拟时段内风向的转变过程。整体而言，WRF对研究时段气象场模拟效果较好，气象要素偏差在可接受范围内，为NAQPMS模式模拟提供准确可靠的气象场。

表1 曹妃甸及周边地区主要污染物排放总量

Table 1 Main pollutants emissions in Caofeidian and surrounding regions

城市	污染物排放总量/t month^{-1}		
	PM2.5	SO_2	NO_x
曹妃甸	1227	1824	2260
唐山	17188	26668	28386
天津	13435	19525	30892
北京	11570	19501	33056
河北北部	14800	19089	26741
河北中南部	76524	105263	21561
山东	109717	236891	222573
辽宁	29937	45181	58409

3.2 PM2.5浓度模拟和校验

选取2016年秋冬季节曹妃甸、北京、天津3个站点PM2.5观测值与NAQPMS模拟值进行校验，表2为PM2.5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（N_{MB}）、标准化平均误差（N_{ME}）、均方根误差（R_{MSE}）、相关系数（r）、平均分数偏差（M_{FB}）和平均分数误差（M_{FE}），计算公式如下：

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

$$R_{MSE}=\left[\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\left(M_i-O_i\right)^2\right]^{1/2}, \quad (2)$$

$$N_{MB}=\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\frac{M_i-O_i}{O_i}, \quad (3)$$

$$N_{ME}=\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\frac{\left|M_i-O_i\right|}{O_i}, \quad (4)$$

$$M_{FB}=\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\frac{M_i-O_i}{\left(M_i+O_i\right)/2}, \quad (5)$$

$$M_{FE}=\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\frac{\left|M_i-O_i\right|}{\left(M_i+O_i\right)/2}, \quad (6)$$

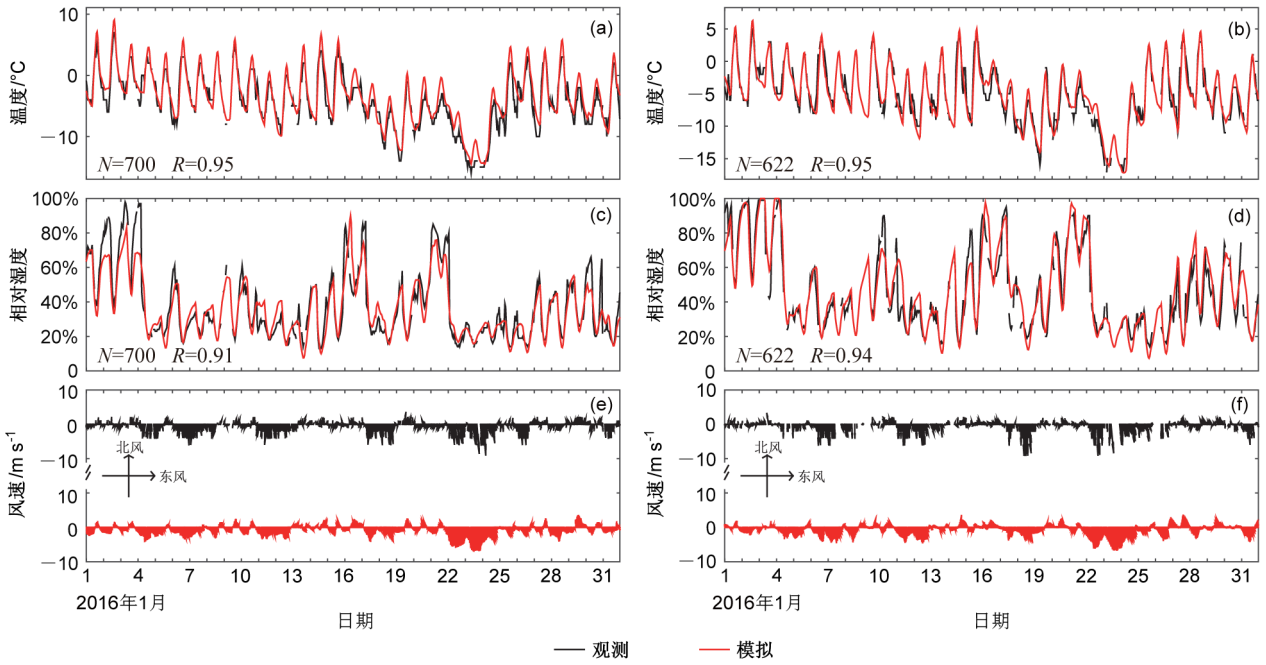

图2　2016年1月北京（左列）、天津（右列）站点（a、b）温度、（c、d）相对湿度和（e、f）风速风向模拟结果和观测值对比

Fig. 2　Comparison between the weather research and forecasting (WRF) simulation result and observed meteorological parameters (a, b) temperature, (c, d) relative humidity, and (e, f) wind in Beijing (left column) and Tianjin (right column) in January 2016

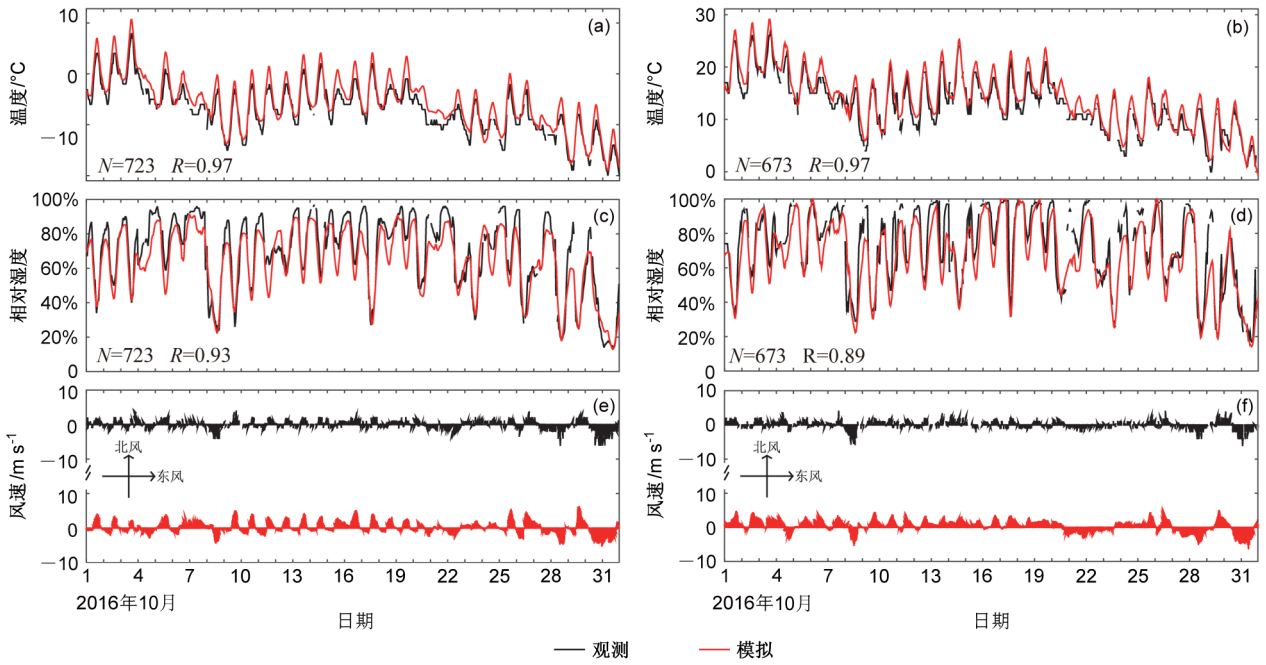

图3　同图2，但为2016年10月

Fig. 3　Same as Fig. 2, but for October 2016

其中，N表示样本总数，M_i表示第i个时次的模拟值，$\overline{M}$为模拟浓度平均值；O_i表示第i个时次的观测值，$\overline{O}$为观测浓度平均值。

图4为各地区秋冬季PM2.5浓度模拟值与观测值的对比。2016年1月和10月的模拟值和观测值均有较好的一致性，相关系数较高。1月曹妃甸、北京和天津模拟和观测的相关系数分别为0.81、0.58和0.82；10月3个城市模拟和观测的相关系数

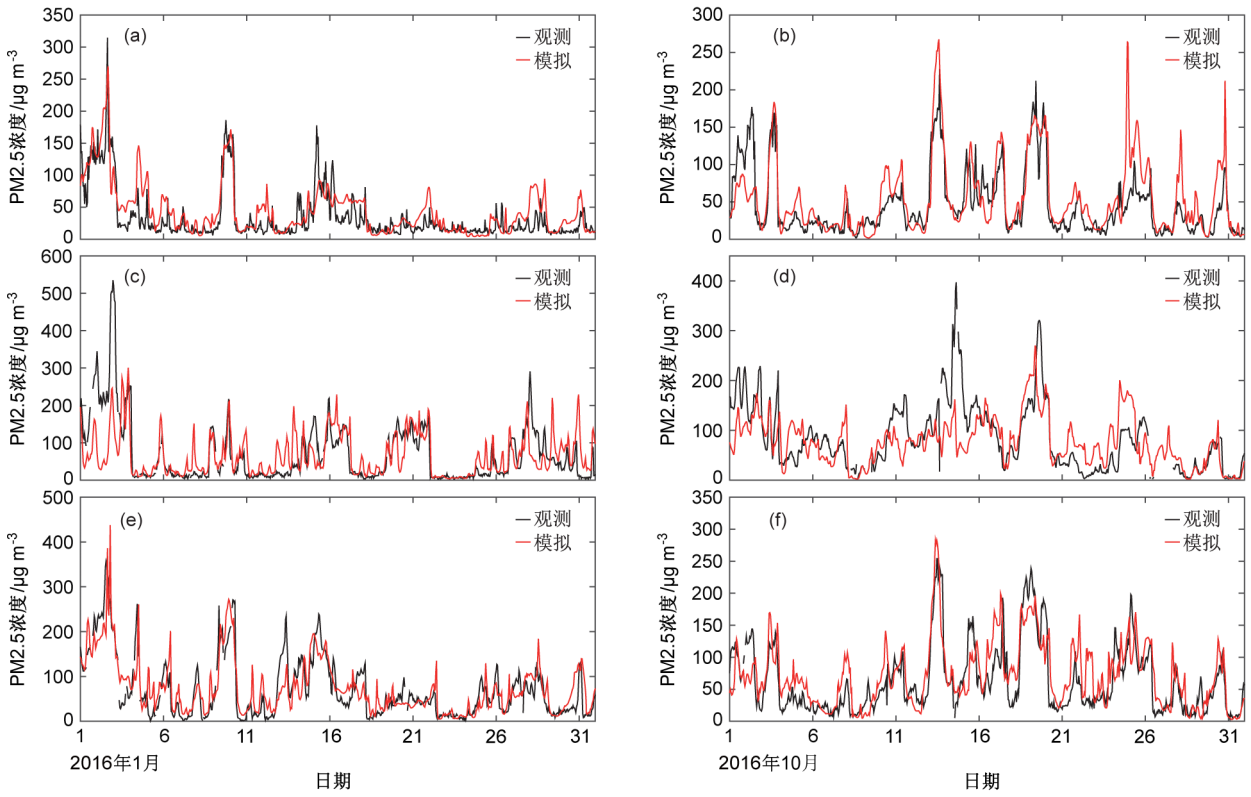

图4 曹妃甸及周边地区2016年（a、c、e）1月和（b、d、f）10月PM2.5浓度模拟值与观测值的对比：（a、b）曹妃甸、（c、d）北京、（e、f）天津

Fig. 4 Comparison between simulated and observed hourly averaged PM2.5 concentration of typical sites in Caofeidian and surrounding areas in (a, c, e) January and (b, d, f) October 2016: (a, b) Caofeidian; (c, d) Beijing; (e, f) Tianjin

表2 代表性地区PM2.5模拟效果评估统计表

Table 2 Statistical parameters of comparisons between simulated and observed PM2.5 of typical sites

月份	城市	样本数/h	观测平均值/ μg m^{-3}	模拟平均值/ μg m^{-3}	均方根误差/ μg m^{-3}	标准平均偏差	标准化平均误差	平均分数偏差	平均分数误差	r
1月	曹妃甸	743	34.5	44.4	27.0	29%	56%	26%	54%	0.81
	北京	726	68.6	66.6	67.2	-3%	60%	22%	62%	0.58
	天津	720	71.0	74.7	39.2	5%	40%	19%	49%	0.82
10月	曹妃甸	744	46.2	55.5	32.8	20%	47%	18%	49%	0.77
	北京	700	84.7	78.4	56.1	-7%	47%	3%	52%	0.58
	天津	740	63.8	72.3	36.0	13%	43%	16%	48%	0.77

注：样本数即有效小时数。

分别为0.77、0.58和0.77。秋冬季节3个城市均通过了置信度为0.01的显著性检验，其他统计参数结果如表2所示。

图4看出对于重污染的时段，如1月3日、10日和10月19日，模式较好地再现了曹妃甸、天津地区污染的出现和结束时间以及污染物浓度，对连续的重污染天气表征性较好。

针对PM2.5的模拟评估，Boylan and Russell（2006）指出，当M_{FB}≤±30%且M_{FE}≤50%时，表明模拟偏差很小，在理想范围内;而当M_{FB}≤±60%且M_{FE}≤75%时，表明模拟偏差在可接受范围内。按照该指标，3个代表性城市的PM2.5模拟效果均在可接受范围之内。

综合考虑多个指标，秋冬季节模拟值和观测值均大致相符，冬季模拟比秋季相关性更高，秋季京津冀地区PM2.5波动幅度大于冬季。总体上

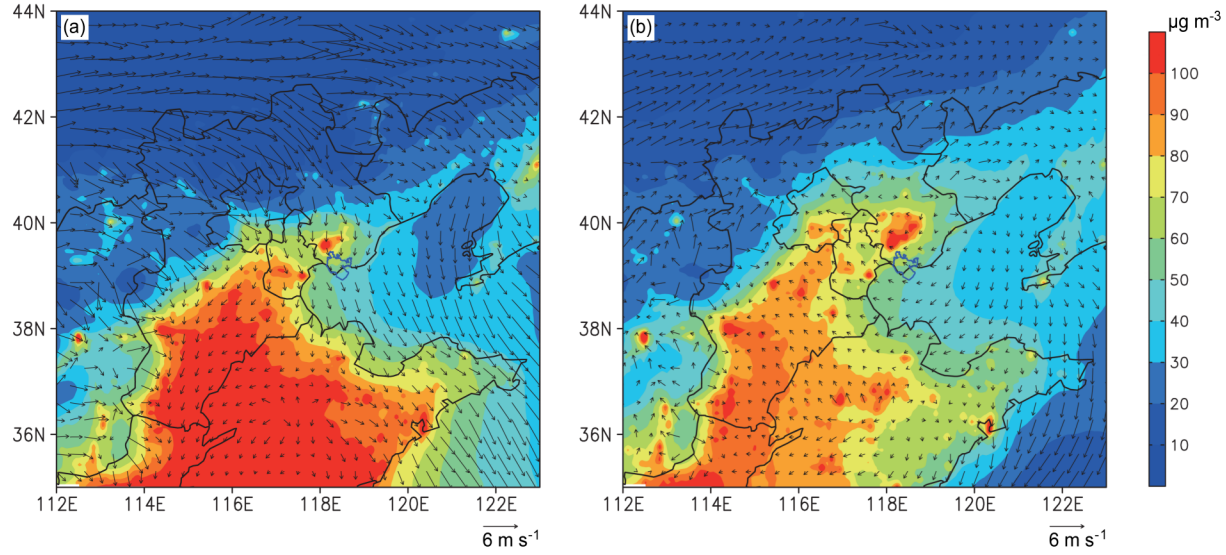

图5 2016年（a）1月和（b）10月京津冀地区PM2.5月均浓度和风场分布模拟结果

Fig. 5 Spatial distribution of simulated monthly average PM2.5 concentration and wind vector during (a) January and (b) October 2016 over the Beijing–Tianjin–Hebei region

NAQPMS模式能较好再现曹妃甸、北京、天津等地区秋冬季节污染过程，反映了污染物浓度变化趋势，为分析曹妃甸和京津冀地区秋冬季节空气污染区域输送和源解析提供研究依据。

2016年1月和10月京津冀地区PM2.5月均浓度和风场分布如图5所示。从图中可以看出，1月京津冀北部地区盛行偏西北气流且风速较大，PM2.5平均浓度较低；唐山市和天津市部分污染排放较强的地区PM2.5月均浓度达到80 μg/m^3；京津冀南部地区受到较弱的偏北和偏东北气流控制，且冬季供暖导致污染排放增加，部分城市PM2.5月均浓度高达100 μg/m^{3}以上。10月京津冀地区整体而言受偏南和偏东南气流影响，风力较小，京津冀北部、北京市、唐山市等地PM2.5平均浓度高于1月；而京津冀中南部和山东PM2.5月均在70～90 μg/m^3，与1月相比有明显降低。

4 分析与讨论

4.1 曹妃甸及周边地区秋冬季节PM2.5来源分析

4.1.1 冬季曹妃甸及周边地区月均PM2.5来源分析

表3计算了冬季曹妃甸及周边地区近地面PM2.5浓度的来源贡献率，本节中计算的来源贡献率为地区覆盖范围内所有网格的平均结果，可减少不同站点污染源解析结果的差异导致的不确定性。结果显示：平均而言，曹妃甸地区PM2.5主要来自于本地生成和唐山市输送，贡献率分别达到17.8%和21.2%，这主要是由于冬季曹妃甸地区在冷空气影响下盛行偏北风，上游唐山市的输送对其影响最大；其次受到曹妃甸周边其他地区输送影响，天津、河北中南部城市以及山东省的贡献率分别达到11.5%、13.0%和9.5%。曹妃甸地区位于环渤海中心地带，冬季对于环渤海洋面上空的PM2.5浓度贡献达到16%，对周边唐山市和天津市的贡献率分别为3.5%和3.4%，对其他城市和省份的贡献率均在2%以内，影响较小。

除曹妃甸外，其他陆地地区受到本地排放的影响最大，河北中南部地区和山东省本地贡献率均超过60%；北京、天津和唐山等地，本地贡献的占比在30%～50%。北京市PM2.5浓度受到河北省输送的影响达到33.4%。天津市PM2.5来源除了本地排放外，主要来自于河北中南部地区、山东省和唐山市，月均贡献率分别达到25.0%、10.5%和8.5%。

4.1.2 秋季曹妃甸及周边地区月均PM2.5来源分析

表4展示了10月曹妃甸及周边地区近地面月均PM2.5浓度来源贡献率。曹妃甸PM2.5主要来自本地生成和山东地区输送，贡献率分别为25.8%和30.0%。其次来自曹妃甸周边其他地区输送，唐山和河北中南部贡献率为10.6%和13.0%。曹妃甸冬季对环渤海洋面上空的PM2.5浓度贡献达到26.2%，对周边唐山和天津分别贡献7.3%和5.3%，

表3 曹妃甸及周边地区2016年1月月均PM2.5浓度来源贡献率

Table 3 Average monthly PM2.5 contributions of tagged regions to each other in January 2016

	贡献率（来源城市）									
受体城市	曹妃甸	唐山	天津	北京	河北北部	河北中南部	山东	辽宁	其他陆地	海洋
曹妃甸	17.8%	21.2%	11.5%	2.5%	6.0%	13.0%	9.5%	8.4%	6.9%	3.2%
唐山	3.5%	45.4%	8.1%	2.2%	16.4%	7.0%	5.5%	5.7%	5.2%	1.0%
天津	3.4%	8.5%	32.9%	4.7%	4.8%	25.0%	10.5%	3.5%	5.6%	1.2%
北京	1.1%	4.6%	7.6%	40.2%	15.3%	17.1%	2.5%	1.4%	9.8%	0.4%
河北北部	2.1%	6.3%	1.6%	2.2%	47.9%	2.6%	2.1%	4.9%	29.6%	0.8%
河北中南	1.2%	0.8%	3.7%	1.6%	1.1%	60.0%	13.4%	1.0%	16.6%	0.5%
山东	1.8%	0.6%	1.0%	0.3%	0.4%	7.9%	76.7%	1.8%	8.7%	0.7%
辽宁	0.9%	2.7%	0.8%	0.3%	19.3%	1.4%	1.5%	43.0%	29.8%	0.4%
其他陆地	1.4%	0.2%	0.5%	0.2%	2.7%	20.7%	4.6%	1.1%	68.0%	0.6%
海洋	16.0%	6.1%	7.5%	1.3%	3.9%	12.2%	26.6%	10.9%	9.1%	6.4%

表4 曹妃甸及周边地区2016年10月月均PM2.5浓度来源贡献率

Table 4 Average monthly PM2.5 contributions of tagged regions to each other in October 2016

	贡献率（来源城市）									
受体城市	曹妃甸	唐山	天津	北京	河北北部	河北中南部	山东	辽宁	其他陆地	海洋
曹妃甸	25.8%	10.6%	4.6%	0.4%	1.9%	13.0%	30.0%	3.7%	2.9%	7.0%
唐山	7.3%	41.9%	10.8%	0.5%	6.4%	9.9%	15.7%	2.5%	2.5%	2.5%
天津	5.3%	5.7%	36.0%	1.0%	1.8%	23.2%	20.3%	1.8%	2.7%	2.1%
北京	0.8%	1.7%	10.1%	46.6%	4.2%	28.7%	5.1%	0.5%	1.9%	0.3%
河北北部	2.2%	7.5%	6.9%	8.9%	45.0%	10.9%	5.7%	1.7%	10.3%	0.8%
河北中南	1.3%	0.6%	2.1%	1.5%	0.4%	63.7%	17.0%	0.5%	12.3%	0.5%
山东	3.0%	0.3%	0.6%	0.3%	0.2%	6.7%	83.0%	1.1%	3.6%	1.3%
辽宁	3.4%	14.2%	4.1%	0.3%	21.4%	4.4%	7.3%	32.5%	11.3%	1.2%
其他陆地	0.8%	1.4%	1.1%	2.3%	9.5%	22.8%	4.1%	1.3%	56.4%	0.3%
海洋	26.2%	2.5%	2.2%	0.2%	1.9%	8.3%	39.4%	4.9%	3.3%	11.0%

对其他陆地区域贡献率均小于3.5%，影响较小。

除曹妃甸外，其他地区受到本地排放的影响最大，河北中南部和山东地区本地污染贡献超过60%，北京、天津、唐山和河北北部本地贡献率为35%～46%。北京和天津PM2.5来源除本地排放外，主要来自于河北中南部，贡献率分别为28.7%和23.2%。

冬季和秋季各地贡献率有较大差异。曹妃甸、北京、天津和山东本地贡献率上升，唐山和河北北部本地PM2.5贡献有小幅下降。周边区域传输中相比冬季，秋季山东对周围地区贡献较大，对曹妃甸、天津和唐山贡献率分别为30.0%、20.3%和15.7%。河北中南部和天津对北京和河北北部贡献率明显增加。这是由于秋季偏南气流影响下将山东地区污染物携带至山东以北地区。河北中南部分污染物随南风运输至河北北部、北京和天津等地。

4.2 典型城市秋冬季节不同PM2.5浓度下来源分析

图6展示了曹妃甸、北京和天津近地面PM2.5浓度在不同范围时，来自于不同地区的平均贡献率。由图可见曹妃甸1月本地贡献在10%～20%；当曹妃甸地区空气质量为优良时，PM2.5主要受短距离周边传输影响，外来贡献主要来自于唐山市和天津市，最大分别可达36%和16%；当曹妃甸地区空气质量为轻度及以上污染时，受到较长距离输送的影响明显增加，山东省对于曹妃甸地区PM2.5浓度贡献可达到25%～38%，河北中南部地区在曹

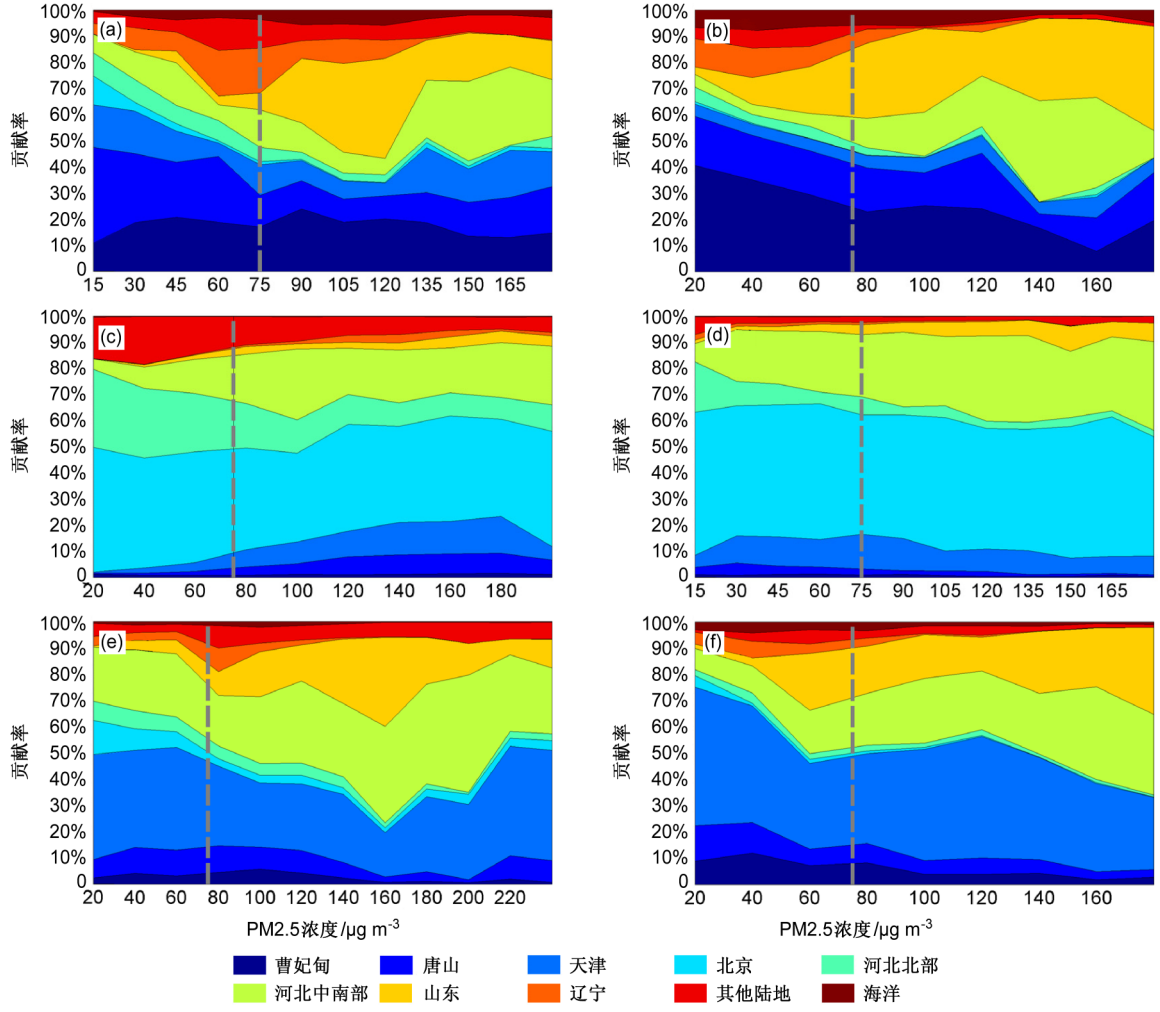

图6　2016年1月（左列）和10月（右列）（a、b）曹妃甸、（c、d）北京和（e、f）天津PM2.5浓度与来自于不同地区的PM2.5浓度贡献率的关系（填色部分为贡献率；灰色虚线为PM2.5浓度75 μg/m³分界线，左侧代表空气质量优良，右侧代表轻度及以上污染）

Fig. 6　Relationship between PM2.5 concentrations of (a, b) Caofeidian, (c, d) Beijing, and (e, f) Tianjin and regional contribution rates in January (left column) and October (right column) 2016. The colored part shows the contribution rate; the gray dotted line is the dividing line of PM2.5 concentration of 75 μg/m³; the left side corresponds to good and moderate air quality, and the right side corresponds to lightly polluted and more severely polluted air

妃甸地区PM2.5出现较高浓度时贡献可达22%～30%。

曹妃甸10月受本地排放影响大于1月。当曹妃甸地区空气质量优良时，本地贡献率为23%～40%，山东贡献率较1月有所增加，最大可达到17%；当曹妃甸空气质量为轻度及以上污染时，本地贡献率减小为8%～25%，PM2.5受到较长距离输送的影响明显增加，河北中南部和山东地区贡献之和为40%～50%。秋季曹妃甸受近距离周边传输影响小于冬季，唐山和天津贡献率不随PM2.5浓度变化而发生较大变化，分别为17%和5%。

北京市基本不受曹妃甸地区污染物排放贡献影响，不同PM2.5浓度时，曹妃甸地区贡献率均在1.6%以下。北京市本地排放为PM2.5主要来源，10月本地贡献率大于1月。河北地区对北京PM2.5贡献影响也较大，贡献率在30%左右。其中，10月河北中南部地区贡献率大于1月。1月北京轻度污染及以上时，唐山和天津对北京贡献率最大可达22%。10月唐山对北京贡献率较小，天津对北京贡献率为6%～12%。

曹妃甸地区污染物排放对天津贡献较小。天津空气质量优良时，曹妃甸排放影响相对较大，1月和10月分别为4%～6%和8%～12%，PM2.5轻度及以上污染时，曹妃甸影响均小于4%。天津市本

地排放为PM2.5主要来源，1月和10月贡献率分别为17%～42%和30%～50%。1月天津空气质量轻度及以上污染时，长距离输送对天津影响较大，河北中南部和山东贡献率最大分别为36%和33%。

整体而言，曹妃甸本地排放为PM2.5重要来源，北京和天津本地排放为PM2.5主要来源，且本地排放贡献率秋季大于冬季。上述地区PM2.5浓度达到轻度及以上污染时，受长距离区域输送的影响明显增加。

4.3 秋冬季节典型城市PM2.5组分贡献分析

为进一步了解工业区建立后曹妃甸空气污染特征，分别对曹妃甸、北京和天津PM2.5组分进行分析。图7展示了2016年1月和10月曹妃甸、北京和天津地区PM2.5组分日均贡献率和PM2.5日均浓度。图中一次排放包括排放清单中一次排放PM2.5、黑炭和有机气溶胶，二次成分包含由化学反应生成的硫酸盐、硝酸盐、铵盐和二次有机气溶胶。

曹妃甸地区1月一次排放为PM2.5主要来源，贡献率为33%～60%，月均贡献46%。二次生成的硝酸盐、铵盐、二次有机气溶胶和硫酸盐对北京市PM2.5浓度贡献率依次减小，月均贡献率分别为25%、11%、10%和8%。结合PM2.5日均浓度可以看出，出现轻度及以上污染时，一次排放颗粒物贡献率较低，为35%左右，而二次有机气溶胶和二次生成硫酸盐贡献率相比空气质量优良时大，分别为18%左右和13%左右。当PM2.5浓度小于35 μg/m^{3}时，一次排放贡献占曹妃甸地区PM2.5浓度的50%以上，二次有机气溶胶贡献明显减少，在6%以内。

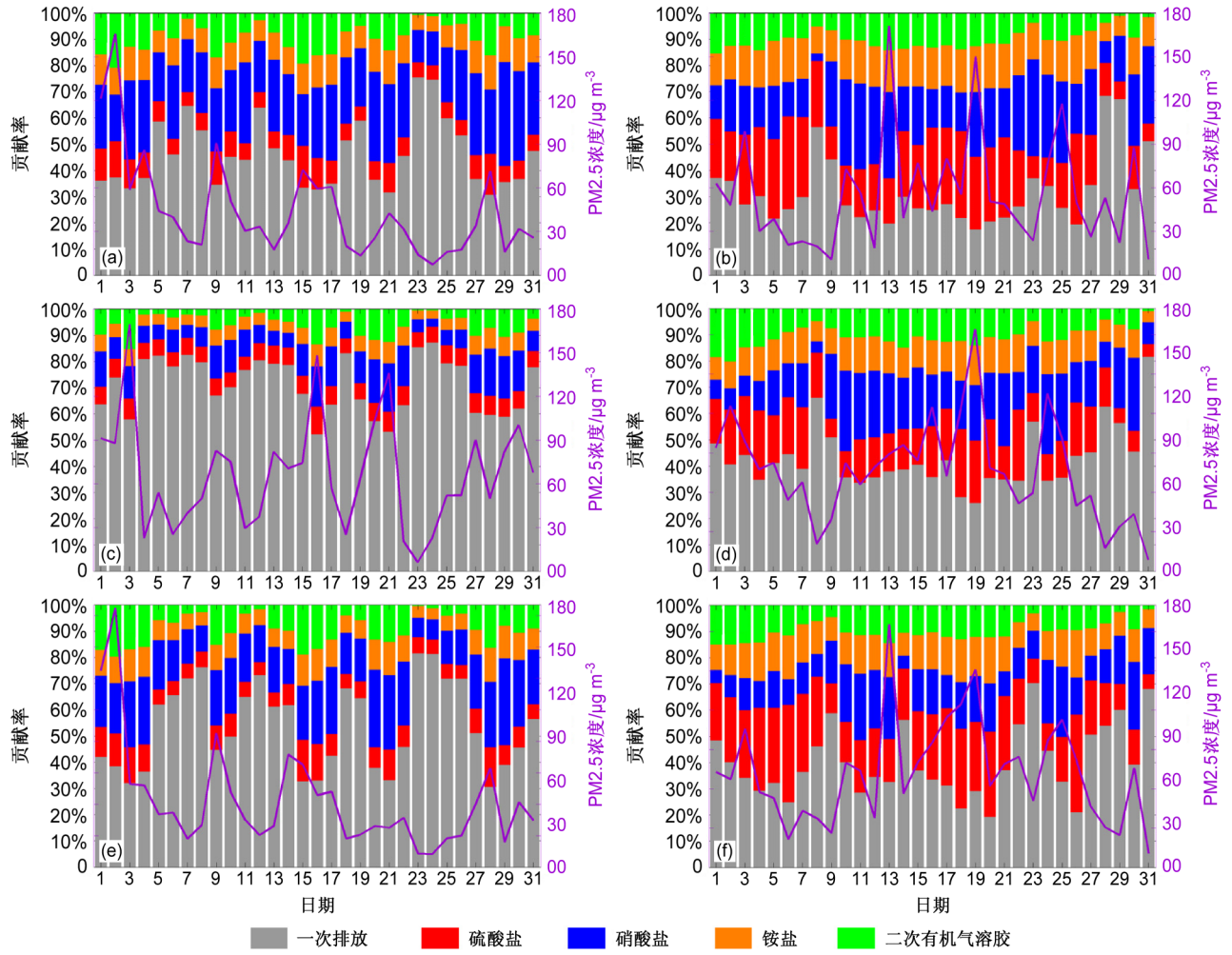

图7 2016年1月（左列）和10月（右列）（a、b）曹妃甸、（c、d）北京和（e、f）天津PM2.5组分贡献率和PM2.5浓度关系

Fig. 7 Relationship between the contribution rate of PM2.5 components and PM2.5 concentrations in (a, b) Caofeidian, (c, d) Beijing, and (e, f) Tianjin in January (left column) and October (right column) 2016

曹妃甸地区10月一次排放贡献率小于1月，月均贡献率为32%。二次生成硫酸盐贡献率较1月明显增加，平均贡献率为22%。二次生成的铵盐和二次有机气溶胶月均贡献率分别为15%和10%。结合PM2.5日均浓度可以看出，出现轻度及以上污染时，一次排放颗粒物贡献率较低，为18%；当PM2.5浓度属于优良范围内时，一次排放贡献率在20%以上。

北京1月一次排放为PM2.5组分主要来源，贡献率60%～79%，二次生成PM2.5贡献较小。北京10月一次排放颗粒物贡献率小于1月，贡献率范围集中在30%～50%；二次生成硫酸盐和铵盐贡献较1月明显增大，月均贡献率分别为18%和12%。北京轻度污染及以上时，一次排放贡献率明显下降，且1月二次有机气溶胶贡献率增加，贡献率为13%左右。

天津1月空气轻度及以上污染时，一次排放颗粒物贡献率较低，贡献率为30%～44%，二次有机气溶胶贡献率较高，为17%左右；PM2.5浓度空气质量优良时，一次排放颗粒物贡献率为60%～80%。天津10月一次排放贡献率小于1月，二次生成硫酸盐贡献率较1月明显增加，月均贡献率22%。二次有机气溶胶和二次生成铵盐贡献率分别为12%和10%左右。

综上所述，冬季一次排放对曹妃甸、北京和天津PM2.5浓度影响较大；秋季，化学反应生成的硫酸盐等二次成分贡献率较冬季明显增加。当PM2.5浓度为优良水平时，一次排放贡献率相对较高，可达40%～78%；当PM2.5浓度达到污染水平时，一次排放对PM2.5贡献率明显下降，二次生成无机盐类和二次有机气溶胶贡献率增加。因此，控制SO_2、NO_x和VOCs等前体物的排放，降低重污染时段PM2.5二次组分的浓度，能有效地缓解灰霾污染。

5 结论

利用NAQPMS模式模拟曹妃甸及周边区域2016年秋冬季节PM2.5浓度时空分布，结合NAQPMS模式在线源追踪技术，计算分析了2016年1月和10月上述地区PM2.5浓度主要来源贡献，并重点分析了曹妃甸、北京和天津3个代表性地区重污染过程期间本地排放及区域间污染输送和贡献率，得到如下主要结论：

（1）曹妃甸本地贡献为主要贡献源之一，冬季和秋季PM2.5月均占比分别为17.8和25.8%。唐山市对曹妃甸地区影响较大，冬季和秋季贡献率分别为21.2%和10.6%。曹妃甸地区秋季空气质量优良时，本地贡献率为23%～40%；轻度污染及以上时，本地贡献率为8%～25%。

（2）秋冬季节，曹妃甸地区空气质量优良时，PM2.5主要受短距离周边传输影响，唐山和天津贡献率之和冬季可达23%～53%，秋季为23%左右；曹妃甸地区空气质量出现轻度及以上污染时，PM2.5浓度主要受到较长距离输送的影响，河北中南部和山东地区贡献之和为40%～50%。

（3）曹妃甸地区污染排放在秋冬季节平均而言对周边地区PM2.5浓度贡献相对较小。2016年1月和10月，曹妃甸对唐山市PM2.5浓度贡献率分别为3.5%和7.3%，对天津市PM2.5浓度贡献分别为3.4%和5.3%，而对北京市PM2.5浓度贡献率仅为1%左右。

（4）京津冀及周边地区一次排放的有机气溶胶、黑炭等颗粒物是曹妃甸、北京和天津PM2.5主要来源，曹妃甸地区冬季和秋季直接排放的一次组分对于PM2.5浓度平均贡献分别为46%和32%。当PM2.5浓度出现轻度及以上污染时，一次排放对PM2.5贡献率有明显下降，二次生成无机盐类和二次有机气溶胶贡献率增加。

基于上述分析，曹妃甸PM2.5浓度受本地排放和区域输送共同影响，本地排放贡献为20%左右，唐山市的贡献为11%～21%，因此控制本地及唐山市污染排放对于改善曹妃甸地区空气质量非常重要。当曹妃甸地区出现灰霾污染时，河北中南部和山东地区较长距离输送的贡献较大，因此需要各地区进行联防联控，以有效降低重污染过程峰值。2016年秋冬季曹妃甸地区对周边地区如北京和天津等地PM2.5浓度贡献率较小，在当前排放水平下，工业区的建立及钢铁厂的迁入对周边地区PM2.5浓度和环境空气质量影响较小。

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, doi:10.5194/acp-8-5755-2008.

Boylan J W, Russell A G. 2006. PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models[J]. Atmos. Environ., 40(26): 4946−4959, doi:10.1016/j.atmosenv.2005.09.087.

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. Chen Huansheng, Wang Zifa, Wu Qizhong, et al. 2010. Source analysis of Guangzhou air pollutants by numerical simulation in the Asian Games period[J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 30 (11): 2145−2153, doi:10.13671/j.hjkxxb.2010.11.001.

陈焕盛, 王自发, 吴其重, 等. 2013. 空气质量多模式系统在广州应用及对PM10预报效果评估[J]. 气候与环境研究, 18(4): 427−435. Chen Huansheng, Wang Zifa, Wu Qizhong, et al. 2013. Application of air quality multi-model forecast system in Guangzhou: Model description and evaluation of PM10 forecast performance[J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 18(4): 427−435, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2012.11207.

Donahue N M, Robinson A L, Stanier C O, et al. 2006. Coupled partitioning, dilution, and chemical aging of semivolatile organics [J]. Environ. Sci. Technol., 40(8): 2635−2643, doi: 10.1021/es052297c.

Ge B Z, Wang Z F, Lin W L, et al. 2018. Air pollution over the North China Plain and its implication of regional transport: A new sight from the observed evidences[J]. Environmental Pollution, 234: 29−38, doi:10.1016/j.envpol.2017.10.084.

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, doi:10.1016/j.envpol.2013.12.014.

郭健, 庄涛, 刘善军, 等. 2018. 工业区颗粒物无组织排放对空气质量影响的数值模拟研究[J]. 环境科技, 31(1): 56−61. Guo Jian, Zhuang Tao, Liu Shanjun, et al. 2018. Numerical simulation study on the effect of fugitive emissions of particulate matter on air quality in industrial area[J]. Environmental Science and Technology (in Chinese), 31(1): 56−61, doi: 10.3969/j. issn. 1674-4829.2018.01.013.

黄蕊珠, 陈焕盛, 葛宝珠, 等. 2015. 京津冀重霾期间PM2.5来源数值模拟研究[J]. 环境科学学报, 35(9): 2670−2680. Huang Ruizhu, Chen Huansheng, Ge Baozhu, et al. 2015. Numerical study on source contributions to PM2.5 over Beijing−Tianjin−Hebei area during a severe haze event[J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 35 (9): 2670−2680, doi:10.13671/j.hjkxxb.2015.0046.

黄艳玲, 刘永红, 蔡铭, 等. 2010. 佛山市中心城区工业污染源排放的数值模拟[J]. 环境科学研究, 23(5): 570−574. Huang Yanling, Liu Yonghong, Cai Ming, et al. 2010. numerical simulation of industrial pollution in the central district of Foshan City[J]. Research of Environmental Sciences (in Chinese), 23(5): 570−574, doi:10.13198/j.res.2010.05.46.huangyl.020.

李君, 关维俊, 佟俊旺, 等. 2006. 曹妃甸工业区建设初期环境状况调查与评价[J]. 中国煤炭工业医学杂志, 9(12): 1312−1314. Li Jun, Guan Weijun, Tong Junwang, et al. 2006. Survey and assessment on environmental status of Caofeidian industrial area at the early construction stage[J]. Chinese Journal of Coal Industry Medicine (in Chinese), 9(12): 1312−1314, doi: 10.3969/j. issn. 1007-9564.2006.12.065.

Li J, Wang Z, 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, doi:10.5194/acp-8-7335-2008.

Li J, Wang Z, Zhuang G, et al. 2012b. Mixing of Asian mineral dust with anthropogenic pollutants over East Asia: A model case study of a super-duststorm in March 2010[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 12(16): 7591−7607, doi:10.5194/acp-12-7591-2012.

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 Jie, Yang Wenyi, Chen Huansheng, et al. 2014. Modeling study of atmospheric respirable particulate matter over East Asia[J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 34(3): 548−557.

李珊珊, 程念亮, 徐峻, 等. 2015. 2014年京津冀地区PM2.5浓度时空分布及来源模拟[J]. 中国环境科学, 35(10): 2908−2916. Li Shanshan, Cheng Nianliang, Xu Jun, et al. 2015. Spatial and temporal distrubions and source simulation of PM2.5 in Beijing−Tianjin−Hebei region in 2014[J]. China Environmental Science (in Chinese), 35(10): 2908−2916, doi: 10.3969/j. issn. 1000-6923.2015.10.004.

Li Y, Lau A K H, Fung J C H, et al. 2012a. Ozone source apportionment (OSAT) to differentiate local regional and super-regional source contributions in the Pearl River Delta region, China [J]. J. Geophys. Res., 117(D15): D15305, doi: 10.1029/2011JD017340.

Lin J, An J L, Qu Y, et al. 2016. Local and distant source contributions to secondary organic aerosol in the Beijing urban area in summer[J]. Atmos. Environ., 124: 176−185, doi: 10.1016/j. atmosenv. 2015.08.098.

刘俊, 安兴琴, 朱彤, 等. 2014. 京津冀及周边减排对北京市PM2.5浓度下降评估研究[J]. 中国环境科学, 34(11): 2726−2733. Liu Jun, An Xingqin, Zhu Tong, et al. 2014. Evaluation of PM2.5 decrease in Beijing after emission restrictions in the Beijing−Tianjin−Hebei and surrounding regions[J]. China Environmental Science (in Chinese), 34(11): 2726−2733.

刘丽丽, 王莉莉. 2015. 天津冬季重霾污染过程及气象和边界层特征分析[J]. 气候与环境研究, 20(2): 129−140. Liu Lili, Wang Lili. 2015. Characteristics of winter heavy pollution episodes and meteorological causes and structures of boundary layer in Tianjin[J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 20(2): 129−140, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2014.14096.

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. Luo Gan, Wang Zifa. 2006. A global environmental atmospheric transport model (GEATM): Model description and validation[J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 30(3): 504−518, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2006.03.13.

王文丁, 陈焕盛, 吴其重, 等. 2016. 珠三角冬季PM2.5重污染区域输送特征数值模拟研究[J]. 环境科学学报, 36(8): 2741−2751. Wang Wending, Chen Huansheng, Wu Qizhong, et al. 2016. Numerical study of PM2.5 regional transport over Pearl River Delta during a winter heavy haze event[J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 36(8): 2741−2751, doi:10.13671/j.hjkxxb.2016.0067.

王学远, 蒋维楣, 刘红年, 等. 2007. 南京市重点工业源对城市空气质量影响的数值模拟[J]. 环境科学研究, 20(3): 33−43. Wang Xueyuan, Jiang Weimei, Liu Hongnian. 2007. Numerical simulation study on the effect of major industrial sources in Nanjing on urban air quality[J]. Research of Environmental Sciences (in Chinese), 20 (3): 33−43, doi:10.3321/j.issn:1001-6929.2007.03.006.

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 (1): 3−14. Wang Zifa, Li Jie, Wang Zhe,et al. 2014. Modeling study of regional severe hazes over mid-eastern China in January 2013 and its implications on pollution prevention and control[J]. Science China Earth Sciences, 57(1): 3−13, doi:10.1007/s11430-013-4793-0.

Wu D W, Fung J C H, Yao T, et al. 2013. A study of control policy in the Pearl River Delta region by using the particulate matter source apportionment method[J]. Atmos. Environ., 76: 147−161, doi: 10.1016/j.atmosenv.2012.11.069.

周瑞, 辛金元, 邢立亭, 等. 2011. 唐山工业新区冬季采暖期大气污染变化特征研究[J]. 环境科学, 32(7): 1874−1880. Zhou Rui, Xin Jinyuan, Xing Liting, et al. 2011. Variation of air pollution in new Tangshan industrial area during winter heating period[J]. Environmental Science (in Chinese), 32(7): 1874−1880, doi: 10.13227/j.hjkx.2011.07.020.

缪育聪, 郑亦佳, 王姝, 等. 2015. 京津冀地区霾成因机制研究进展与展望[J]. 气候与环境研究, 20(3): 356−368. Miao Yucong, Zheng Yijia, Wang Shu, et al. 2015. Recent advances in, and future prospects of, research on haze formation over Beijing−Tianjin−Hebei, China[J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 20(3): 356−368, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2015.14255.