

DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2018.0308

王芳龙,李忠勤,尤晓妮,等.2018.2015—2017年天水市大气污染物变化特征及来源分析[J].环境科学学报,38(12):4592-4604

Wang F L, Li Z Q, You X N, et al. 2018. Variation characteristics and source analysis of atmospheric pollutants in Tianshui from 2015 to 2017 [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 38(12): 4592-4604

2015—2017年天水市大气污染物变化特征及来源分析

王芳龙¹, 李忠勤^{1,2,*}, 尤晓妮³, 刘峰¹, 周茜⁴, 仝纪龙⁵, 张昕¹, 汪芳琳⁴, 马珊⁴, 张添姿⁶

1. 西北师范大学地理与环境科学学院, 兰州 730070
2. 中国科学院西北生态环境资源研究院, 冰冻圈科学国家重点实验室/天山冰川站, 兰州 730000
3. 天水师范学院资源与环境工程学院, 天水 741000
4. 兰州大学资源环境学院, 兰州 730000
5. 兰州大学大气科学学院, 兰州 730000
6. 93212 部队, 大连 116000

收稿日期: 2018-06-01 修回日期: 2018-07-22 录用日期: 2018-07-22

摘要: 据天水市 2015—2017 年大气污染物(SO₂、NO₂、CO、O₃、PM_{2.5}和 PM₁₀)的监测数据及气象资料,分析了天水市大气污染物的浓度变化特征,并利用排放源清单和 HYSPLIT 模型对污染物来源进行了解析。结果表明:①天水市空气质量有所下降,总体优良率达 84.9%。SO₂、NO₂、CO 均达标,污染物以颗粒物和 O₃ 为主。②一次污染物 SO₂、NO₂、CO、PM_{2.5} 和 PM₁₀ 浓度具有相似的季节变化和日变化特征,冬季最高,夏季最低,日变化呈早晚双峰型。二次污染物 O₃ 夏季浓度最高,冬季最低,日变化呈单峰型。③天水市空气质量主要受污染物的本地排放和外来输送的影响,本地民用和工业部门对 SO₂、CO、PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的贡献最大,交通和工业部门对 NO_x 的分担率最高,民用部门是 CO 的最大排放源;西北和东部气流是污染物外来的最主要输送路径。此外,污染物在城市大气中的稀释、扩散和转移也受当地气象因素(气温、降水、风向等)的影响。

关键词: 天水市; 大气污染特征; 来源分析; 排放清单; HYSPLIT 模型

文章编号: 0253-2468(2018)12-4592-13 中图分类号: X51 文献标识码: A

Variation characteristics and source analysis of atmospheric pollutants in Tianshui from 2015 to 2017

WANG Fanglong¹, LI Zhongqin^{1,2,*}, YOU Xiaoni³, LIU Feng¹, ZHOU Xi⁴, TONG Jilong⁵, ZHANG Xin¹, WANG Fanglin⁴, MA Shan⁴, ZHANG Tianzi⁶

1. College of Geographic and Environmental Science, Northwest Normal University, Lanzhou 730070
2. State Key Laboratory of Cryospheric Sciences/ Tianshan Glaciological Station, Northwest Institute of Eco-Environment and Resources, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000
3. College of Resources and Environmental Engineering, Tianshui Normal University, Tianshui 741000
4. College of Earth and Environmental Sciences, Lanzhou University, Lanzhou 730000
5. College of Atmospheric Sciences, Lanzhou University, Lanzhou 730000
6. 93212 PLA Troops, Dalian 116000

Received 1 June 2018; received in revised form 22 July 2018; accepted 22 July 2018

Abstract: Based on the monitoring data of air pollutants and corresponding meteorological records, we investigated the concentration variation of air pollutants in Tianshui from 2015—2017, and the source of pollutants was analyzed by using emission source inventory and HYSPLIT model. The results show that Tianshui's air quantity declined to some extent in past three years, but the days with excellent or good quality is still in the majority, with an eligibility rate of 84.9%. Primary pollutants (SO₂, NO₂, CO, PM_{2.5} and PM₁₀) show similar seasonal and daily variation patterns. The maximum primary pollutant concentration appears in winter and minimum is in summer, with a bimodal daily variation pattern (morning and evening). While concentration

基金项目: 冰冻圈科学国家重点实验室自主课题(No. SKLCS-ZZ-2018); 国家自然科学基金(No. 41761017)

Supported by the SKLCS Founding(No. SKLCS-ZZ-2018) and the National Natural Science Foundation of China (No. 41761017)

作者简介: 王芳龙(1994—)男, E-mail: 1426416693@qq.com; * 责任作者, E-mail: lizq@lzb.ac.cn

Biography: WANG Fanglong(1994—) male, E-mail: 1426416693@qq.com; * Corresponding author, E-mail: lizq@lzb.ac.cn

of secondary pollutants O_3 is highest in summer and lowest in winter, with a unimodal daily variation pattern. Tianshui's air quality is mainly affected by local emission and external atmospheric transport. The contribution of local civil and industrial sectors to SO_2 , CO , $PM_{2.5}$ and PM_{10} is predominant, and the main emission of NO_x is transportation and industrial sectors. Civil sector is the largest emission sources of CO among various sectors. The results of back trajectory analysis indicate that northwest and eastern air mass is the main transport path for external pollutant. Besides, dilution, diffusion and transfer of pollutants are also influenced by local meteorological factors (temperature, precipitation, wind direction, etc.)

Keywords: Tianshui; air pollution characteristic; source analysis; emission inventory; HYSPLIT model

1 引言(Introduction)

快速的城市化和工业发展导致了我国城市空气质量的严重恶化,城市大气污染问题日益严重.大气污染物包括气态污染物和颗粒物,对气候、大气环境和人体健康有着重要的影响(Lim *et al.*, 2013; Kan *et al.*, 2007).暴露于空气中的 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 会加重慢性呼吸道和心血管疾病,改变机体防御能力,并损害肺组织(Chen *et al.*, 2011),也可能导致过早死亡和癌症。 O_3 会加重慢性呼吸道疾病,并导致肺功能的短期下降,接触 CO 、 SO_2 和 NO_2 会使工作能力下降、心血管疾病加重、对肺功能产生负面影响,并引起呼吸系统疾病、肺刺激和肺防御系统的改变(Bernard *et al.*, 2001; Chen *et al.*, 2012a; 2012b).因此,大气污染物的研究受到社会公众和政府部门的高度重视.

目前,很多国内外学者已从全球、区域、城市群、城市等尺度对大气污染物问题开展了诸多研究.肖悦等(2018)利用空间自相关和核密度法分析了中国空气质量的时空演化特征,并运用空间计量经济模型从全国和区域两个尺度探讨空气污染的社会经济影响因素.田谧等(2013)利用统计方法和后向轨迹模拟研究了河北廊坊地区大气污染物变化特征及其污染物的来源追踪.王艳等(2008)研究了长江三角洲地区大气污染物的输送规律.孙雪等(2017)利用多元统计分析探讨了南京市大气污染物的时间变化特征及其与气象要素的关系.王世强等(2015)进行了广州地区大气污染物的输送通道特征研究.但研究多集中于经济快速发展和人类活动频繁的东部和东南部地区,对西北地区的关注较少.

天水市 2009 年成为国家级开发区后经济发展迅速,作为关中-天水经济区次极核心城市和重要的发展极,在“十三五”期间被列入国家层面城市群规划和区域中心城市,是“一带一路”的重要战略节点,因此,对其大气污染的研究和环境的管控意义重大.目前针对天水市已开展的研究仅限于单一污

染物(马新民,1998;赵晓莉,2012;2016;李兵等,2016;王箐等,2018),且连续性较差,尚缺乏多种污染物的研究.因此,本文利用天水市 3 个环境监测站 2015—2017 年 SO_2 、 NO_2 、 CO 、 O_3 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 浓度数据及同期气象资料,分析了天水市大气污染物浓度的时序变化特征及其与气象要素的关系,并对污染物来源及浓度变化的原因进行了探讨,旨在为改善天水市大气环境、制定切实可行的大气污染治理措施提供一定的科学依据.

2 资料与方法(Materials and methods)

2.1 研究区及监测站点概况

天水市地处陕、甘、川三省交界处,东临陕西省宝鸡市,南、北、西分别与陇南、平凉、定西相接,地理范围为 $34^{\circ}05' \sim 35^{\circ}10'N$, $104^{\circ}35' \sim 106^{\circ}14'E$.现辖秦州、麦积两区和秦安、甘谷、武山、清水、张家川回族自治县五县.境内山脉纵横,地势西北低东南高,处于黄土高原沟壑区与西秦岭山脉的结合地带.

天水市区平均海拔高度 1100 m,由南北两山夹持,南北宽只有 1~3 km,东西延伸 36 km,面积约 56 km^2 .3 个监测站的具体位置,如图 1 所示.

2.2 数据来源和处理

本研究采用 2015—2017 年天水市 3 个环境监测站 6 项大气污染物(SO_2 、 NO_2 、 CO 、 O_3 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10})浓度的城市 24 h 日平均和小时数据.污染物数据来源于中国国家环境监测中心(<http://106.37.208.233:20035/>).后向轨迹模式使用的资料为 NCEP(National Center for Environmental Prediction, 美国国家环境预报中心)提供的 2015—2017 年全球资料同化系统(GDAS)数据.气象资料来源于国家气象科学数据共享服务平台(<http://data.cma.cn/>).MEIC 大气污染物网格化排放清单数据来源于清华大学开发和维护的中国多尺度排放清单模型(MEIC)网站(<http://www.meicmodel.org>).

基于环境空气质量指数技术规范(HJ633—2012)(2012)和环境空气质量标准(GB3095—2012)(2012)对污染物数据和 AQI(Air Quality

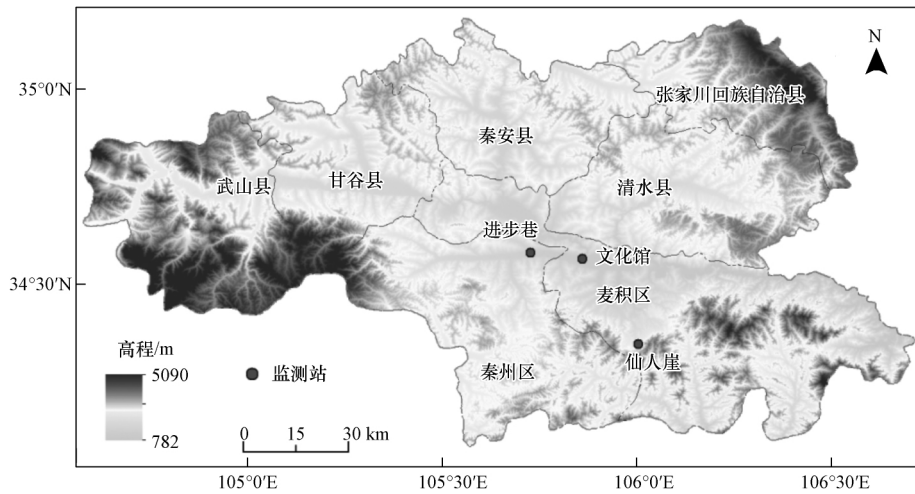


图 1 天水市环境监测点分布示意图

Fig.1 Distribution of environmental monitoring points in Tianshui

Index) 进行统计计算以及首要污染物的确定. 同时在 SPSS 软件下进行 AQI 与污染物的相关分析, 并利用 TrajStat 软件研究污染物的输送来源.

2.3 HYSPLIT 模型

HYSPLIT 模型是由美国国家海洋大气中心 (NOAA) 和澳大利亚气象局 (BOM) 共同研发的一种综合模式系统. 其可用于计算和分析气流运动、沉降、大气污染物输送和扩散轨迹等过程 (Draxler *et al.*, 1998; Stein *et al.*, 2016); 目前已被广泛应用于研究空气污染物的传输途径和来源解析 (张青新 2013; 王芳等 2009; 赵恒等 2009).

本文利用 TrajStat 后续软件 (Wang *et al.*, 2009) 来进行天水市的后向轨迹分析和研究. 鉴于 500 m 高度的风场较能准确反映边界层的平均流场特征 (赵恒等 2009), 所以将模拟高度选为 500 m. 天水市 ($34^{\circ}58'$

N , $105^{\circ}72'E$) 作为模拟受点, 每日 8:00 (北京时间) 为后推起始时间, 计算 2015—2017 年逐日到达受点的 72 h 后向轨迹, 以便于反映气流特征.

3 结果与分析 (Results and analysis)

3.1 天水市空气质量现状

2015—2017 年天水市日值 AQI 总有效监测天数为 1093 d (表 1). AQI 均值为 71.89, 空气质量主要以优、良为主, 优良天数为 928 d, 达标率为 84.9%. 轻度污染及以上天数 165 d, 超标率为 15.1%. 相比 2015 年, 2017 年一级和三级空气质量天数分别下降了 71% 和 7%, 二级空气质量天数上升了 67%, 四至六级的空气质量天数也有所上升. 总体达标率有所下降, AQI 均以 $7.82/a$ ($R^2 = 0.934$) 的速率上升, 表明 3 年来天水市环境空气质量有所下降.

表 1 2015—2017 年天水市 AQI 级别天数统计表

Table 1 Statistics table of AQI level days in Tianshui from 2015—2017

年份	天数/d						AQI	优良率	污染率	监测天数/d
	一级	二级	三级	四级	五级	六级				
2015	156	158	44	4	2	1	65.26	86.03%	13.97%	365
2016	121	184	48	7	3	1	69.51	83.33%	16.67%	364
2017	45	264	41	8	4	2	80.92	84.48%	15.51%	364

近 3 年 AQI 的月均变化趋势较为相似, 均呈双峰周期型 (图 2). 1—4 月和 9—12 月分别是迅速下降和上升期, 4—5 月呈缓慢上升趋势, 5—9 月呈缓慢下降趋势. 夏季 AQI 呈逐年上升趋势, 受夏季臭氧污染物的影响较大. 其他季节的逐年变化趋势各异,

可能与污染物的年际排放、政府部门的环境空气污染防治措施及当年天气状况等有关.

天水市首要特征污染物主要是 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 、 O_3 , 三者占总监测天数的 78.98% (图 3). 其中 O_3 为首要污染物的天数最多, 为 352 d; 其次为 PM_{10} 和

PM_{2.5}, 分别为 294 d 和 218 d。此外, NO₂ 为首要污染物的天数也较多, 为 59 d。季节方面, 首要污染物为 O₃ 在春季、夏季和秋季的出现频率高, 最高频次出现在夏季。首要污染物为 PM_{2.5} 出现在冬季、秋末和初春, 而首要污染物为 PM₁₀ 在夏季出现频次低, 春

季和冬季出现频次均较高。年际变化方面, 首要污染物为 SO₂、NO₂、CO、PM_{2.5} 的天数逐年减少, 可能与近两年天水市采取的空气污染治理措施有关。但首要污染物为 O₃ 和 PM₁₀ 的天数明显增多, 可能受冬春季沙尘和夏秋季臭氧光化学反应的影响。

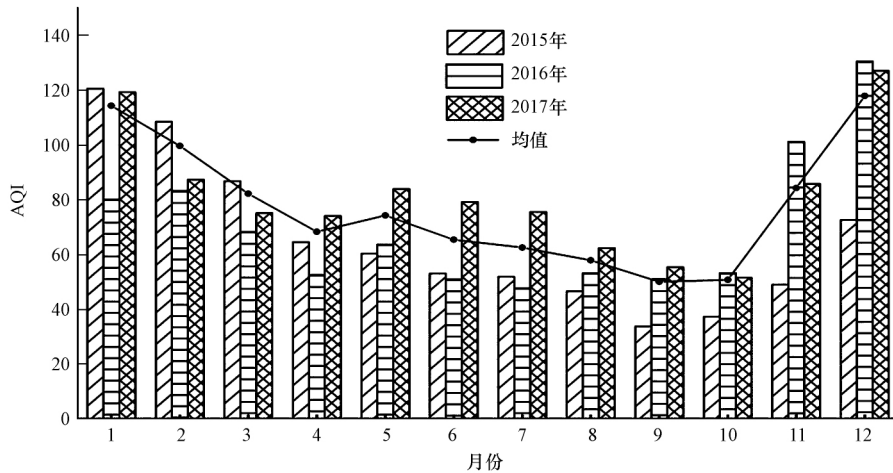


图2 2015—2017年天水市AQI月均值分布

Fig.2 Distribution of monthly mean AQI in Tianshui during the period 2015—2017

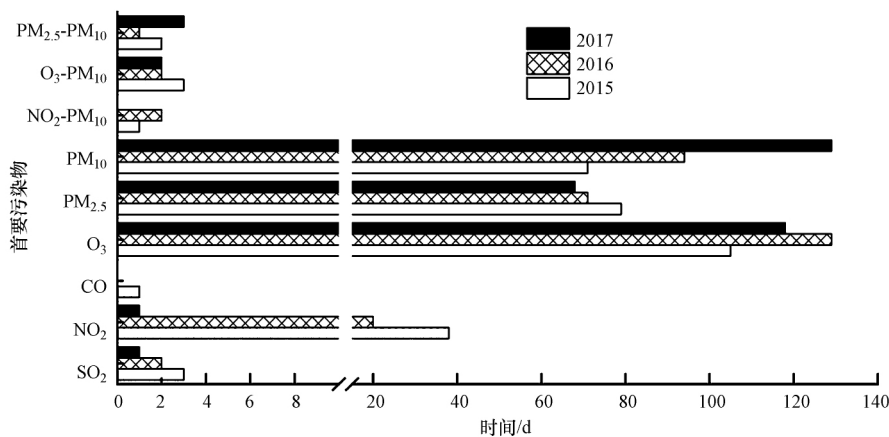


图3 2015—2017年天水市首要污染物天数统计

Fig.3 Statistics of days of major pollutant in Tianshui during the period 2015—2017

3.2 大气污染特征

3.2.1 污染物浓度水平 2015—2017年天水市AQI、SO₂、NO₂、CO、O₃、PM_{2.5}和PM₁₀浓度变化区间分别为AQI(23~500)、SO₂(3~182 μg·m⁻³)、NO₂(6~118 μg·m⁻³)、CO(0.2~5.41 mg·m⁻³)、O₃(9~210 μg·m⁻³)、PM_{2.5}(3~178 μg·m⁻³)、PM₁₀(10~684 μg·m⁻³) (表2)。各项污染物全年浓度值变化波动较大。除了受季节及天气的影响外, 还可能与边界层的扩散及扬尘、沙尘暴事件有重要的关系, 前者可有利或不利于污染物的扩散 (Marcazzan *et al.*,

2001), 后者在很大程度上增加了颗粒物的浓度 (尤其是增加PM₁₀的浓度) (Xie *et al.*, 2005)。

3年间, SO₂、NO₂、CO、O₃、PM_{2.5}和PM₁₀的浓度均值分别为(24.91±22.55) μg·m⁻³、(33.55±15.33) μg·m⁻³、(0.89±0.49) mg·m⁻³、(90.17±33.24) μg·m⁻³、(39.25±27.72) μg·m⁻³、(77.91±53.7) μg·m⁻³。SO₂、NO₂、CO均达标, O₃浓度值逐年有小幅度的上升。PM_{2.5}和PM₁₀分别超出国家环境空气质量标准二级浓度年均限值0.12倍和0.11倍, 3年均不达标。SO₂、NO₂、CO和PM_{2.5}的逐年均值波动较小, 变化

趋势相似,均呈倒“V”型,与在全国城市提倡环保的大背景下政府的一切减排环保措施有关。 PM_{10} 浓度均超过国家环境空气污染物二级浓度年均限值,且以 $9.35/a$ ($R^2=0.9438$) 的速度上升。利用 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 进行不同尺寸大气颗粒物的来源识别 (Wang *et al.*,

2014) 结果显示:天水市 3 年来 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 比分别为 0.53、0.52、0.47,可能与其地处西北内陆地区,易受到沙尘天气(浮尘、沙尘暴和扬沙)的影响有关。3 年间 NO_2/SO_2 之比分别为 1.25、1.31、1.48,表明交通移动源的贡献度逐步增大。

表 2 AQI 及主要大气污染物浓度水平

Table 2 AQI and concentration levels of major atmospheric pollutants

年份	统计值	AQI	$SO_2/$ ($\mu g \cdot m^{-3}$)	$NO_2/$ ($\mu g \cdot m^{-3}$)	$CO/$ ($mg \cdot m^{-3}$)	8 h $O_3/$ ($\mu g \cdot m^{-3}$)	$PM_{2.5}/$ ($\mu g \cdot m^{-3}$)	$PM_{10}/$ ($\mu g \cdot m^{-3}$)
2015	均值±标准差	65.26±32.65	23.09±21.07	28.78±12.75	0.88±0.45	86.25±30.58	35.4±28.42	67.27±46.52
	实测值	23~207	3~182	6~118	0.33~5.41	9~169	3~155	10~312
2016	均值±标准差	69.51±32.73	27.83±25.65	36.57±16.46	1.01±0.52	91.18±32.46	42.23±26.7	80.57±50.01
	实测值	27~216	5~132	8~82	0.37~3.12	21~195	11~166	16~286
2017	均值±标准差	80.92±37.96	23.81±20.3	35.33±15.42	0.79±0.48	93.12±36.18	40.12±27.64	85.97±61.83
	实测值	25~500	6~95	7~80	0.2~2.4	14~210	8~178	14~684
3 年平均	均值±标准差	71.84±35.1	24.91±22.55	33.55±15.33	0.89±0.49	90.17±33.24	39.25±27.72	77.91±53.7
	实测值	23~500	3~182	6~118	0.2~5.41	9~210	3~178	10~684

3.2.2 季节变化特征 天水市一次污染物浓度的季节变化呈“U”型特征(图 4),均为冬季>秋季>春季>夏季。 SO_2 、 NO_2 和 CO 的四季浓度范围分别为 $9.61 \sim 52.39 \mu g \cdot m^{-3}$ 、 $20.7 \sim 50.56 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $0.50 \sim 1.61 mg \cdot m^{-3}$ 。上述变化特征(冬季煤烟型污染)明显受天水市 11 月中旬到次年 3 月中旬集中供暖的影响,采暖期化石燃料的燃烧、工业用煤、民用小锅炉及冬季差的扩散条件导致高浓度的 SO_2 ,而夏季燃烧源较少,降水较多,使得 SO_2 浓度降低。但 NO_2 、CO 与 SO_2 的全年变化趋势差异显著。前两者月浓度值变化极为相似,波动性较小。 SO_2 浓度值春夏季各个月份变化幅度较小,表明交通源(如机动车尾气排放)和人为燃烧源对天水市影响比较持久。 NO_2 光化学活性会引发 O_3 和其他污染前体物的光化学反应 (Artiñano *et al.*, 2003),因此,在夏季 NO_2 出现低值。相反臭氧出现最高值($81.4 \mu g \cdot m^{-3}$),主要是与夏季太阳辐射强、气温高及光化学反应强烈有关。 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 浓度最高值出现在 12 月,分别为 $143.18 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $77.06 \mu g \cdot m^{-3}$ 。采暖期家庭集中供暖燃烧大量煤炭、春运期间交通运输量的急剧增加、较差的天气状况以及逆温等因素导致污染物的积聚和冬季的高浓度值 (Liu *et al.*, 2015)。此外, PM_{10} 浓度在春季也较高,可能是受西北方沙尘暴、浮尘天气的影响。

3.2.3 日变化特征 图 4 为 6 种大气污染物日变化情况。其中 SO_2 浓度从凌晨 4:00 开始缓慢增加,中午 11:00 达到最高值($43.29 \mu g \cdot m^{-3}$),午后浓度迅速

降低,下午 16:00 有一个最低的浓度值。随后浓度上升,夜晚 22:00 达到次高值,白天 SO_2 浓度值高于夜晚,其日变化呈早晚双峰型。 O_3 的最高值和最低值分别出现在下午 16:00 和上午 8:00,呈单峰型特征。 NO_2 和 CO 的浓度日变化都呈早晚双峰型,两者高峰出现在早晨 9:00 和晚上 21:00,低峰出现在下午 15:00,且晚上 NO_2 小时浓度峰值高于白天的峰值。早高峰主要是受人类活动和机动车交通高峰的影响。午后随着太阳辐射的变化和温度的升高, NO_x ($NO+NO_2$)和空气中的 O_3 产生光化学反应,消耗了 NO_2 ,使其在下午 15:00 达到最低值;随着交通晚高峰的到来,太阳辐射强度的减弱以及空气中的光化学反应,产生大量的 NO_2 集聚,因此出现了晚高峰高于早高峰的现象。此外,冬季采暖期供热使得夜间污染物浓度值偏高。 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 的日变化也呈早晚双峰型,且 $PM_{2.5}$ 夜晚浓度峰值($44.34 \mu g \cdot m^{-3}$)高于白天浓度峰值($37.83 \mu g \cdot m^{-3}$)。此类日变化特征与 NO_2 相似,均表明交通污染源对 $PM_{2.5}$ 影响的重要性。

3.3 气象要素与污染物的关系

一个地区的环境空气质量和污染物浓度受多种因素的影响和控制,但鉴于城市环境短期内下垫面变化整体不大,因此其污染物浓度主要受污染物的排放和气象要素的影响(张国勋等, 2003)。气象要素(尤其是气温、降水和风速)影响大气污染物浓度变化的重要因素。在污染源相对稳定的情况下,污染物在大气中的稀释、扩散、迁移、转化等过程主要取决于气象要素(李小飞等, 2012)。

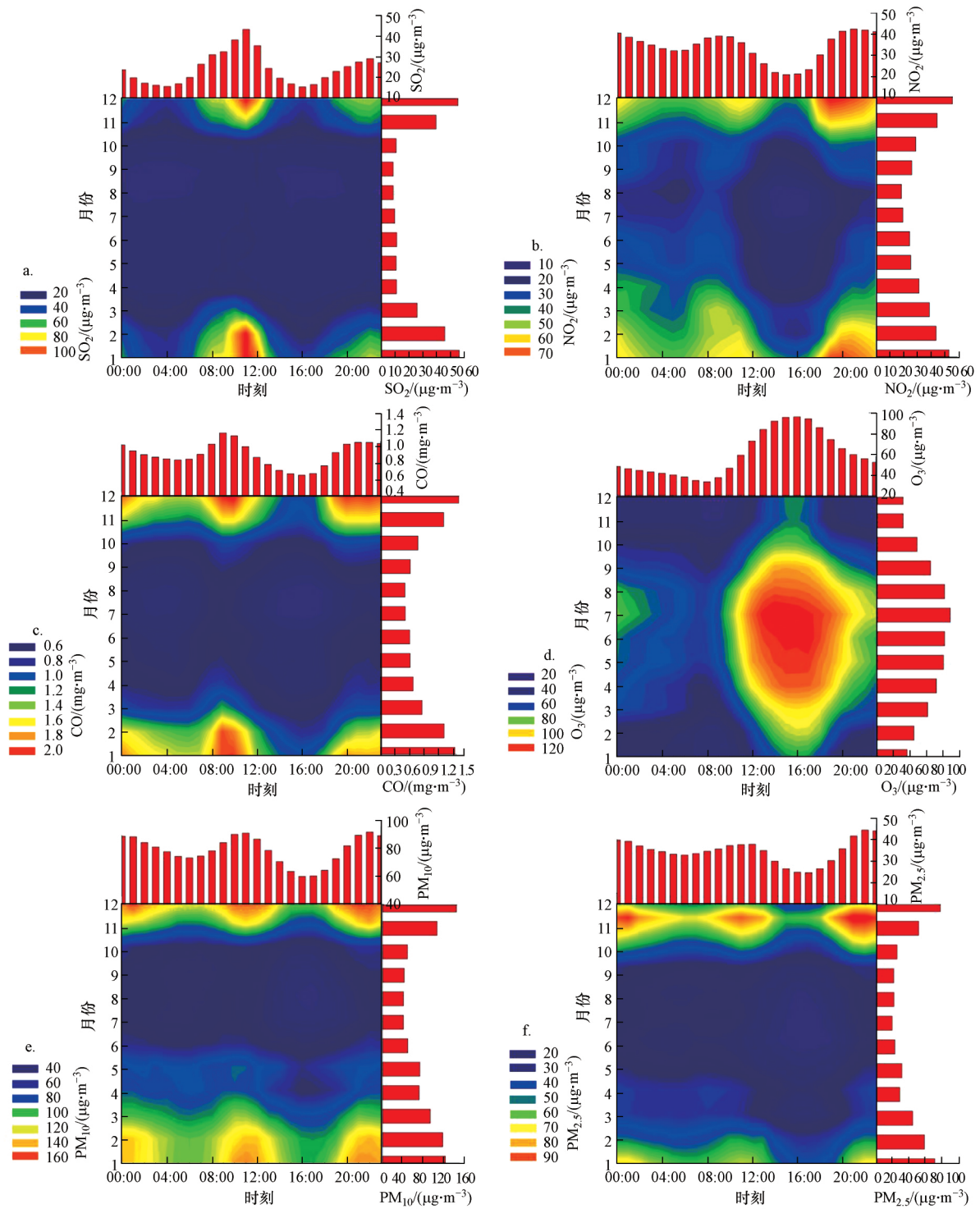


图 4 大气污染物的季节和日变化

Fig.4 seasonal and diurnal variations of atmospheric pollutants

气温变化对气体污染物和尘埃变化有直接的影响(Zyromski *et al.*, 2014).当地面温度较高时,近地层对流活动旺盛,影响大气的湍流混合进而影响大气污染物的扩散,使其向上输送,从而降低近地

层污染物浓度,地面温度较低时,情况相反.如图 5 所示,PM_{2.5}浓度与温度呈明显的负相关.在不考虑采暖影响的情况下,随着温度的降低,污染物浓度逐渐升高,在每一年的冬季达到最高值,而在夏季

达到最低值。

降水对污染物有重要的清除作用,悬浮颗粒物、可溶于水的 SO_2 、 NO_2 可通过降水不断的被溶解、冲刷,进而降低大气污染物的浓度.如图 5 所示,降

水事件发生时污染物浓度相对较低.统计表明,降水日污染物的浓度值远远低于非降水日(表 3).降水对颗粒物的湿清除作用最为明显,而对臭氧的清除作用最弱.

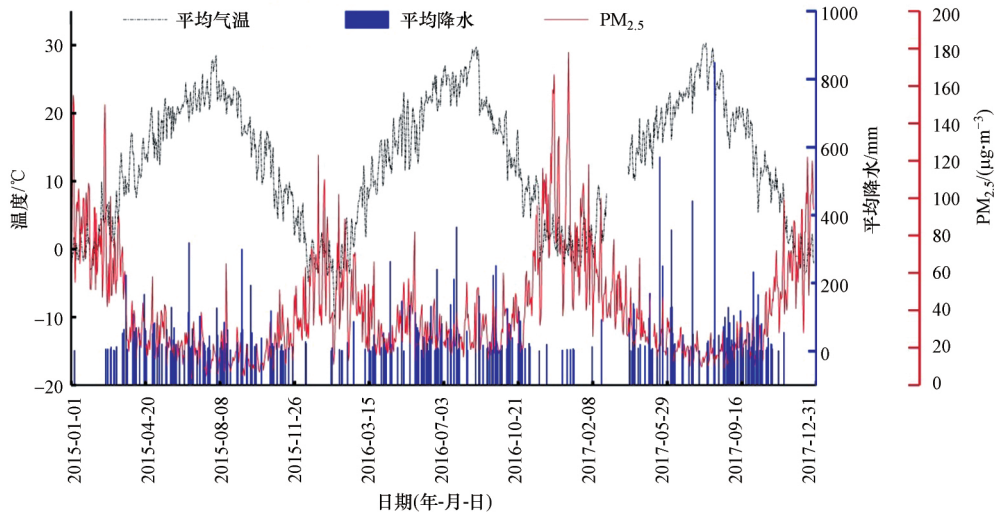


图 5 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度与气温降水的关系

Fig.5 Relationship between mass concentration of $\text{PM}_{2.5}$ and temperature precipitation

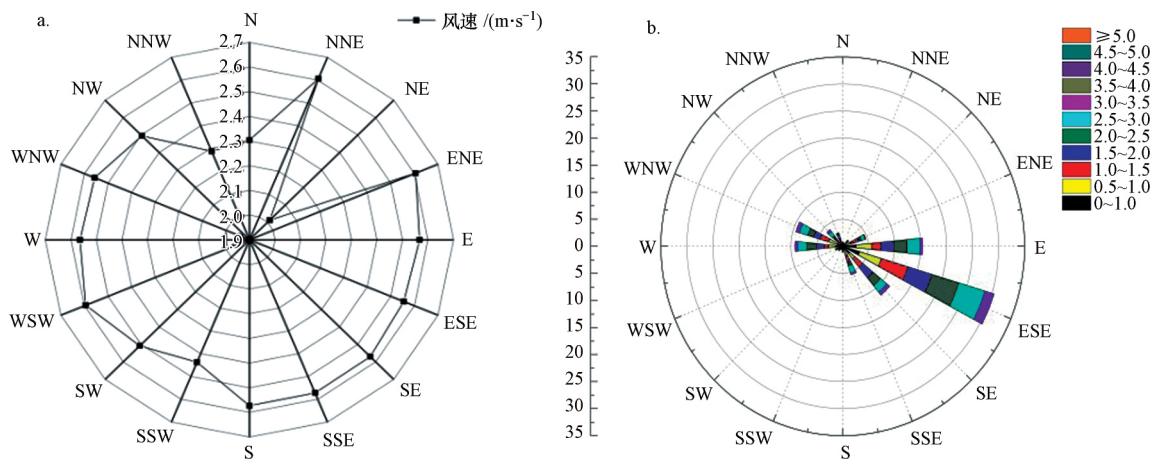
表 3 天水市降水日和非降水日污染物浓度对比

Table 3 Comparison of daily and non-precipitation pollutant concentrations in Tianshui City

天气类型	$\text{SO}_2 / (\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3})$	$\text{NO}_2 / (\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3})$	$\text{CO} / (\text{mg}\cdot\text{m}^{-3})$	8 h- $\text{O}_3 / (\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3})$	$\text{PM}_{2.5} / (\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3})$	$\text{PM}_{10} / (\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3})$
非降水日	28.59	36.03	0.95	90.23	43.13	86.48
降水日	13.95	26.16	0.72	90.01	27.66	52.35

风速对大气污染物的扩散起着非常重要的作用,风向和风频的变化对污染物的输送和浓度变化也有重要影响.天水市东风和西风偏南、偏北方向的风速较大(图 6 a);风向频率主要是 ESE 和 WNW,

常年主导风向为东南风和偏东风,其次为西北风(图 6 b).污染系数(蒋玉珍,1986)综合了风速和风向的作用,可直接用风向频率和平均风速计算获取,其值可定性估计某地大气的扩散能力.天水市污



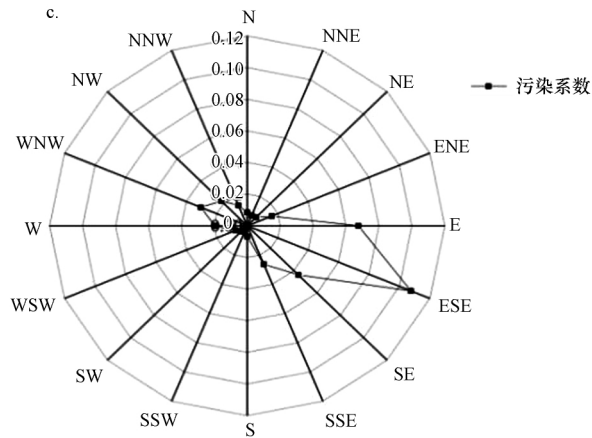


图 6 天水市风速 (a)、风向 (b) 及污染系数 (c) 玫瑰图

Fig.6 Wind speed (a), wind direction (b) and pollution coefficient (c) rose chart of Tianshui city

染系数最大值在 ESE 方向(图 6 c), 较大值在 E、ES 和 WNW 方向, 表明上述污染系数大的上风方向对天水市污染影响较大。上风向西北方位的甘谷、武山两县工业较为发达, 生态脆弱, 人类污染源多。另一方面, 天水市东部临近陕西省南部, 处于其下风向, 存在着南部污染的扩散影响。

4 来源解析 (Source apportionment)

4.1 大气污染物排放源清单的估算

中国多尺度排放清单模型 (MEIC) 是一套自下而上覆盖 700 多种人为排放源的中国大气污染物和温室气体排放清单模型, 是目前国内具有较高代表性的中国区域排放源清单。采用 2016 年 $0.25^{\circ} \times 0.25^{\circ}$ MEIC 大气污染物网格化排放清单, 利用 ArcGIS 将栅格排放数据转点, 将天水市范围内经纬度格点各类污染源排放量的和等效估算为天水市排放量, 得到大气污染物排放源清单(表 4)。由表可知: 2016 年天水市 SO_2 、 NO_x 、 CO 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 的排放总量分别为 13.78×10^3 、 24.29×10^3 、 241.02×10^3 、 13.88×10^3 、 3.0×10^3 t。从不同排放部门对大气污染物的贡献来看, 民用和工业合计排放 SO_2 、 CO 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 分别占各污染物排放总量 91.72%、87.24%、93.63% 和 96.52%; 交通和工业部门对 NO_x 的贡献最大, 分别占总排放的 46.75% 和 39.90%; 民用部门是 CO 的最大排放源。

据《甘肃省 2017 年统计年鉴》, 2016 年全市工业废气排放量为 $229.35 \times 10^8 \text{ m}^3$, SO_2 、氮氧化物、烟粉尘排放量分别为 1.59×10^4 、 1.31×10^4 、 1.2×10^4 t。天水市能源结构主要以煤炭为主, 每年采暖期期间

(11 月中旬到次年 3 月中旬) 大量烧煤, 排放了更多的污染物。妙旭华(2011) 研究得出 15 家空气污染大户中位列前四位的大唐甘谷电厂、天水祁连山水泥厂、天水永固水泥厂、甘谷浴佛水泥厂是影响天水市空气质量的主要工业污染源。资料显示 2011—2016 年, 天水市民用汽车拥有量由 7 万辆增加到 25.70 万辆, 年均递增率为 29.7%。受狭长的河谷地形限制, 道路规划建设和拓宽工程远低于机动车辆的递增速度, 市区和重要交通干线交通拥挤和车辆堵塞的现象时有发生, 机动车怠速行驶造成汽车尾气污染物排放量增大, 造成氮氧化物升高, 导致空气质量恶化。此外, 近年来一系列市政建设工程(如北山中梁机场、高铁站、南北大桥的修建、房地产开发和河道整治工作等) 的开展和进行对天水市颗粒物浓度有重要的影响。

表 4 2016 年天水市大气污染物排放清单

Table 4 2016 Tianshui air pollutant emission list

行业	SO_2	NO_x	CO	$\text{PM}_{2.5}$	PM_{10}
火电	0.74	1.02	1.59	0.16	0.08
工业	7.01	9.69	33.32	3.30	1.70
民用	5.63	2.22	176.95	9.70	1.19
交通	0.40	11.36	29.16	0.73	0.02
农业	-	-	-	-	-
总量	13.78	24.29	241.02	13.88	3.00

注: -表示无此项。

需要说明的是, 将已建立的国家清单数据降尺度应用于城市区域时, 清单有一定的参考价值。但往往存在统计口径不一致、时空分辨率不足等问题, 清单可比性不强, 对城市尺度污染物的排放量估算

结果仍有一定的不确定性.

4.2 AQI 与大气污染物浓度的相关分析

Pearson 相关分析表明(表 5): AQI 与颗粒物之间的相关性最高,尤其是与 PM_{10} 相关系数可达 0.92,与颗粒物的四季相关性从大到小为:秋季>冬季>春季>夏季,说明颗粒物尤其是 PM_{10} 对天水市全年空气质量有长期的影响.冬季 AQI 与 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 相关性显著,而与 SO_2 、 NO_2 、CO 三者之间呈弱相关,这

主要是因为冬季中 IAQIPM_{2.5}(污染物项目 $PM_{2.5}$ 的空气质量分指数)和 IAQIPM₁₀ 最高的次数最多,即 AQI = IAQIPM_s 的概率最大. AQI 与 NO_2 的相关性几乎全年高于 SO_2 和 CO,说明相较于 SO_2 和 CO,天水市空气质量受 NO_2 的影响程度更大,这与前文中 NO_2 为第二污染物的研究结果呼应. AQI 与臭氧二者之间除了在夏季有显著正相关关系,其他季节均为负相关,表明夏季臭氧对天水市空气质量有重要的影响.

表 5 污染物的相关分析
Table 5 Correlation analysis of pollutant

		AQI	SO ₂	NO ₂	CO	O ₃	PM _{2.5}	PM ₁₀
全年	AQI	1						
	SO ₂	0.549**	1					
	NO ₂	0.573**	0.796**	1				
	CO	0.470**	0.805**	0.802**	1			
	O ₃	-0.196**	-0.592**	-0.564**	-0.628**	1		
	PM _{2.5}	0.834**	0.732**	0.762**	0.705**	-0.466**	1	
	PM ₁₀	0.921**	0.583**	0.628**	0.529**	-0.345**	0.834**	1
	春季	AQI	1					
SO ₂		0.293**	1					
NO ₂		0.258**	0.572**	1				
CO		0.002	0.477**	0.463**	1			
O ₃		0.162**	-0.337**	-0.280**	-0.408**	1		
PM _{2.5}		0.672**	0.512**	0.456**	0.402**	-0.249**	1	
PM ₁₀		0.893**	0.332**	0.279**	0.101	-0.059	0.680**	1
夏季		AQI	1					
	SO ₂	0.021691	1					
	NO ₂	0.222**	0.346**	1				
	CO	-0.278**	0.206**	0.311**	1			
	O ₃	0.630**	0.017	0.169**	-0.059	1		
	PM _{2.5}	0.246**	0.011	0.282**	0.425**	0.185**	1	
	PM ₁₀	0.483**	0.093	0.449**	0.238**	0.185*	0.745**	1
	秋季	AQI	1					
SO ₂		0.677**	1					
NO ₂		0.793**	0.725**	1				
CO		0.510**	0.733**	0.700**	1			
O ₃		-0.139*	-0.384**	-0.352**	-0.487**	1		
PM _{2.5}		0.940**	0.718**	0.860**	0.639**	-0.261**	1	
PM ₁₀		0.978**	0.703**	0.813**	0.555**	-0.222**	0.930**	1
冬季		AQI	1					
	SO ₂	0.135*	1					
	NO ₂	0.378**	0.657**	1				
	CO	0.344**	0.615**	0.780**	1			
	O ₃	-0.151*	-0.516**	-0.550**	-0.502**	1		
	PM _{2.5}	0.816**	0.308**	0.631**	0.539**	-0.284**	1	
	PM ₁₀	0.957**	0.069	0.317**	0.264**	-0.090	0.713**	1

注: ** 在 0.01 水平(双侧)上显著相关; * 在 0.05 水平(双侧)上显著相关.

污染物相关性分析表明,颗粒物与 SO_2 、 NO_2 、CO 相关性显著,说明颗粒物与 SO_2 、 NO_2 、CO 之间具有相似的来源,其可作为 SO_2 、 NO_2 、CO 的载体,为

硫酸和硝酸的发展和形成提供反应界面,且可能携带部分金属元素从而催化该反应过程(赵敏, 2016). $PM_{2.5}$ 与 PM_{10} 相关性显著,说明两者具有相同或相似

的来源. $PM_{2.5}$ 与 SO_2 、 NO_2 、 CO 的相关性大于 PM_{10} 它们的相关性 (0.63), 表明气态污染物的排放过程伴随着颗粒物的产生, 尤其是细颗粒物. 通常情况下 SO_2 、 NO_2 、 CO 的排放往往与颗粒物的排放有关, 并且这些气体污染物会伴随着二次气溶胶粒子如 $PM_{2.5}$ 的产生 (Zhou *et al.* 2018). 但臭氧与其他污染物呈负相关, 可能是由于 O_3 在氧化过程中的耗减所致 (Rypdal *et al.* 2009).

4.3 后向轨迹与聚类分析

气流轨迹的聚类分析表明 (图 7), 西北气流移动速度最快, 输送距离最长, 其次是北方气流, 东部气流和南部气流最慢. 从气流占比及混合垂直运动看, 气流占比最多的西北气流 (26.6% ~ 34.4%) 的输送高度最高, 普遍在 800 hPa 以下. 其次是北方气流和南方气流, 输送高度最低的东部气流 (17.2% ~ 38.6%) 对天水市贡献也较多.

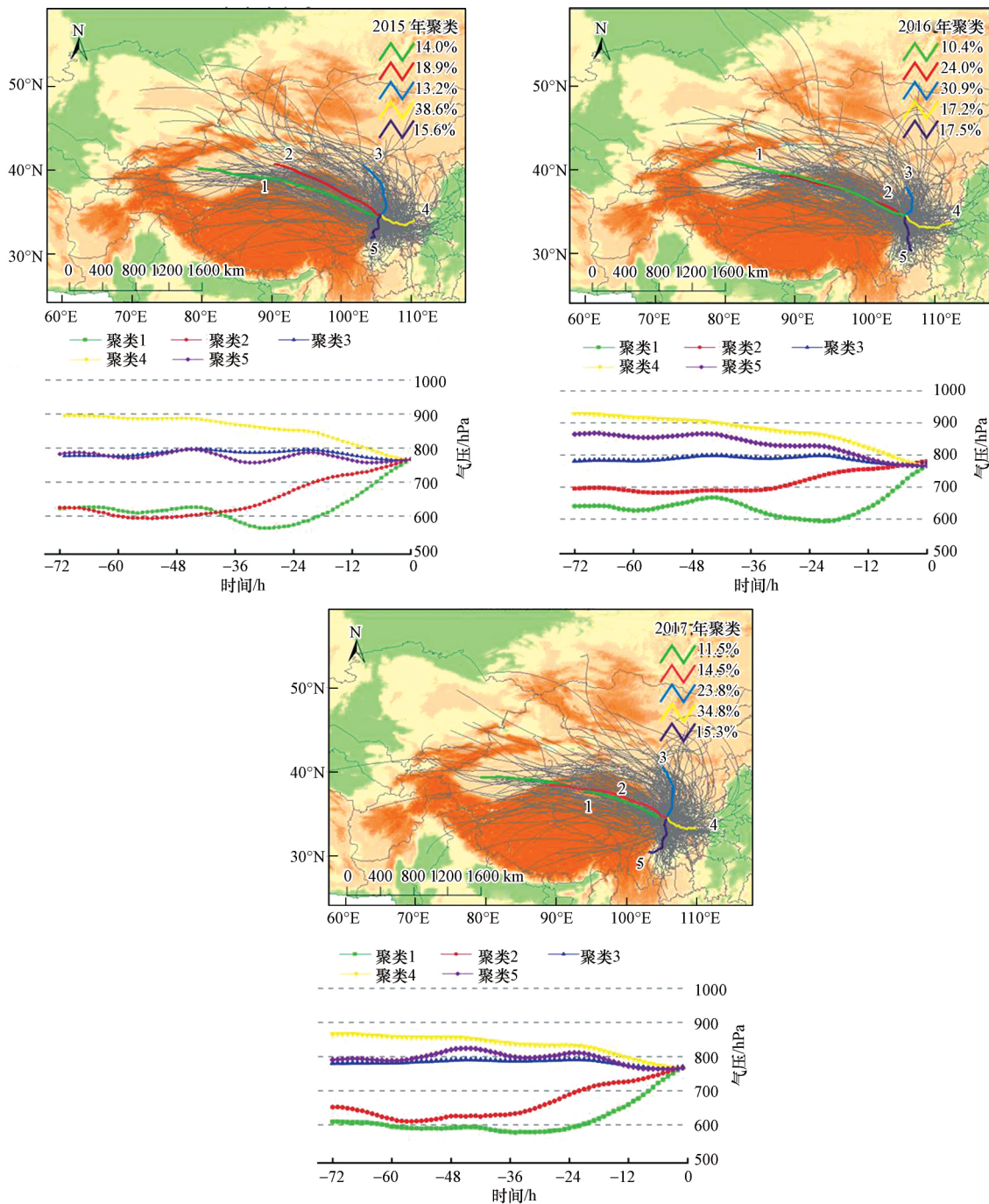


图 7 2015—2017 年天水市后向轨迹气团聚类

Fig.7 Cluster of backward track air mass in Tianshui City, 2015—2017

由于受点天水市周围地区污染物排放来源分布不均匀,不同方向的轨迹气团中可能含有不同程度的污染物.将后向轨迹聚类结果和污染物浓度资料结合,分析各个轨迹气团对研究区污染物的影响.结果如表6所示,不同轨迹气团中污染物浓度差异较大,聚类1中污染物SO₂、NO₂、CO、PM_{2.5}、PM₁₀的浓度值最大,聚类2的浓度值次之,主要是西北气流(轨迹1、轨迹2)最远来自塔克拉玛干沙漠、库木塔格沙漠、吐鲁番盆地、柴达木盆地等沙漠戈壁地带,远距离输送使其成为影响天水市大气颗粒物浓度最主要的输送路径;中远距离途径西宁市南部(海东地区)、临夏州等工业污染源区域;近距离途径天水市西北方向的武山、甘谷,两县海拔较低、地势平

坦、人口密集、生态也较脆弱.同时人类活动频繁,工业(发电厂、水泥厂)较为发达,人为污染源较多,这些区域成为影响天水市污染物浓度的又一输送路径.虽然北部气流、东部气流和南部气流轨迹对应的污染物浓度值差别不大,但东部气流的全年出现频率较高,对天水市的影响也较大;可能是由于东部气流途径污染较严重的河南西部和陕西南部.北方气流和南方气流对应的臭氧浓度值最大,相比之下,其他气流轨迹对应的臭氧浓度值较小,可能是由于天水市南部山区和北部山地森林资源丰富、植被覆盖率高,植物所释放的大量挥发性有机物为光化学反应的发生提供了大量前体物,从而导致O₃浓度较高,进而随风输送至城市.

表6 不同年份各类轨迹污染物浓度统计结果

Table 6 Statistical results of pollutant concentration in different years

年份	轨迹	出现频率	SO ₂ / ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	NO ₂ / ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	CO / ($\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$)	O ₃ / ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	PM _{2.5} / ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	PM ₁₀ / ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)
2015	1	14.00%	42.49	38.29	1.12	69.94	57.41	105.06
	2	18.90%	28.07	33.35	0.97	83.57	39.86	74.01
	3	13.20%	17.73	25.69	0.67	93.9	27.6	60.5
	4	38.60%	17.80	25.99	0.84	84.85	31.79	59.39
	5	15.30%	17.21	24.14	0.8	101.38	25.68	50.18
2016	1	10.40%	52.55	52.37	1.54	65.39	65.68	132.32
	2	24.00%	42.00	45.51	1.26	79.92	51.05	104.65
	3	30.90%	20.16	30.72	0.79	101.94	30.97	61.04
	4	17.20%	14.14	28.84	0.81	95.49	34.98	57.81
	5	17.50%	20.43	32.79	0.93	99.02	43.03	73.21
2017	1	11.50%	39.52	48.55	1.26	77.4	67.33	148.62
	2	14.50%	30.81	44.38	1.02	86.83	51.68	124.28
	3	23.80%	22.35	34.24	0.7	93.33	33.31	74.19
	4	34.80%	18.57	30.42	0.66	96.06	33.33	65.43
	5	15.30%	19.48	29.64	0.69	103.89	34.39	66.96

5 结论(Conclusions)

1) 近3年天水市环境空气质量有所下降,总体优良率达84.9%.PM_{2.5}和PM₁₀分别超出国家环境空气质量污染物二级浓度年均限值0.12倍和0.11倍,3年均不达标.SO₂、NO₂、CO均达标,污染物以颗粒物和O₃为主.在全国城市提倡环保的大背景下,SO₂、NO₂、CO、PM_{2.5}浓度在2017年有所降低.

2) 一次污染物SO₂、NO₂、CO、PM_{2.5}和PM₁₀浓度具有相似的季节和日变化.一次污染物季节变化呈“U”型特征,污染物浓度均为冬季>秋季>春季>夏季,日变化呈早晚双峰型.二次污染物O₃夏季浓度最高,冬季最低,日变化呈单峰型,午后16:00浓度

最大.AQI与颗粒物相关性显著,颗粒物与SO₂、NO₂、CO相关性显著,说明颗粒物与SO₂、NO₂、CO之间具有相似的来源.

3) 天水市空气质量主要受与污染物的本地排放和外来输送的影响.本地民用和工业部门对SO₂、CO、PM_{2.5}和PM₁₀的贡献最大,交通和工业部门对NO_x的分担率最高,民用部门是CO的最大排放源;途径沙漠、戈壁地带、西宁工业污染源区域以及武山、甘谷人为污染源较多的西北气流,和途径污染较严重的河南西部和陕西南部的东部气流是影响天水市大气污染物浓度的最主要输送途径.污染物在城市大气中的稀释、扩散和转移也受当地气象因素(气温、降水、风向等)的影响.

4) 天水市空气质量的改善应以全年的颗粒物治理为重点, 尤其注重其在秋、冬和春季的防治。结合冬季取暖燃烧过程管理, 治理散烧煤, 加速推进煤改电、改气步伐。加强工业、民用及交通污染源的管控力度, 限制机动车出行数量。优先控制氮氧化物的基础上控制挥发性有机物排放量, 以防范夏季 O_3 污染形势的恶化。同时治理道路扬尘、建筑工地扬尘和工业粉尘, 防止二次扬尘, 从而改善空气质量。

将已建立的国家清单数据降尺度应用于城市时, 清单有一定的参考价值, 但对城市尺度污染物的排放量估算结果仍有一定的不确定性。后续将基于详细本地化污染源普查数据、排污申报、环境统计数据以及活动水平研究, 开展重点源排放实测工作, 对排放进行空间定位和精细化处理, 进一步完善和细化天水市大气污染物排放源清单, 以掌握污染源的基本情况, 为政府指导大气污染防治工作的开展、治理以及环境决策提供依据。

致谢 (Acknowledgements): 感谢青悦开放环境数据中心 (<https://data.epmap.org>) 及清华大学 MEIC 模型团队 (<http://www.meicmodel.org>) 提供的环境数据处理支持。

参考文献 (References):

- Chen C, Zhao B. 2011. Review of relationship between indoor and outdoor particles: I/O ratio, infiltration factor and penetration factor [J]. *Atmospheric Environment*, 45(2): 275-288
- Chen C, Zhao B, Weschler C J. 2012a. Assessing the influence of indoor exposure to outdoor ozone on the relationship between ozone and short-term mortality in U.S. communities [J]. *Environmental Health Perspectives*, 120: 235-240
- Chen C, Zhao B, Weschler C J. 2012b. Indoor exposure to outdoor PM_{10} : Assessing its influence on the relationship between PM_{10} and short-term mortality in U.S. cities [J]. *Epidemiology*, 23: 870-878
- Draxler R R, Hess G D. 1998. An overview of the hysplit-4 modeling system for trajectories [J]. *Australian Meteorological Magazine*, 47(4): 295-308
- 国家环境保护部. 2012. HJ633—2012 中华人民共和国国家环境保护标准环境空气质量指数(AQI) 技术规定[S]. 北京: 中国环境科学出版社
- 国家环境保护部. 2012. GB3095—2012 中华人民共和国国家标准环境空气质量标准[S]. 北京: 中国环境科学出版社
- 《甘肃发展年鉴》编辑部. 2017. 甘肃发展年鉴[M]. 北京: 中国统计出版社
- 蒋玉珍. 1986. 污染系数及风玫瑰图[J]. *沙漠与绿洲气象*, (10): 31-34
- Kan H, London S J, Chen G, et al. 2007. Differentiating the effects of fine and coarse particles on daily mortality in Shanghai, China [J]. *Environment International*, 33(3): 376-384
- 李兵, 巨天珍, 张斌才, 等. 2016. 天水市大气 SO_2 浓度时空变化特征的卫星遥感监测与影响分析[J]. *中国环境监测*, 32(2): 134-140
- Lim S S, Vos T, Flaxman A D, et al. 2012. A comparative risk assessment of burden of disease and injury attributable to 67 risk factors and risk factor clusters in 21 regions, 1990 - 2010: a systematic analysis for the Global Burden of Disease Study 2010 [J]. *The Lancet*, 380(9859): 2224-2260
- 李小飞, 张明军, 王圣杰, 等. 2012. 中国空气污染指数变化特征及影响因素分析[J]. *环境科学*, 33(6): 1936-1943
- Liu Z, Hu B, Wang L, et al. 2015. Seasonal and diurnal variation in particulate matter (PM_{10} and $PM_{2.5}$) at an urban site of Beijing: analyses from a 9-year study [J]. *Environmental Science & Pollution Research*, 22(1): 627-642
- 妙旭华. 2011. 天水市环境空气质量评价与分析[J]. *甘肃科技*, 27(19): 59-62
- Marcaccani G M, Vaccaro S, Valli G, et al. 2001. Characterisation of PM_{10} and $PM_{2.5}$ particulate matter in the ambient air of Milan (Italy) [J]. *Atmospheric Environment*, 35(27): 4639-4650
- 马新民. 1998. 天水市大气中 SO_2 污染特征分析[J]. *环境研究与监测*, 11(4): 16-17
- Rypdal K, Rive N, Berntsen T, et al. 2009. Climate and air quality-driven scenarios of ozone and aerosol precursor abatement [J]. *Environmental Science & Policy*, 12(7): 855-869
- Stein A F, Draxler R R, Rolph G D, et al. 2016. NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system [J]. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 96(12): 2059-2077
- Sun X, Luo X, Chen Y, et al. 2017. Spatio-temporal characteristics of air pollution in Nanjing during 2013 to 2016 under the pollution control and meteorological factors [J]. *Journal of Earth Environment*, 8(6): 506-515
- 田谧, 吉东生, 王跃思, 等. 2013. 河北廊坊地区大气污染物变化特征与来源追踪[J]. *环境工程学报*, 7(12): 4895-4903
- 王芳, 陈东升, 程水源, 等. 2009. 基于气流轨迹聚类的大气污染输送影响[J]. *环境科学研究*, 22(6): 637-642
- 王世强, 黎伟标, 邓雪娇, 等. 2015. 广州地区大气污染物输送通道的特征[J]. *中国环境科学*, 35(10): 2883-2890
- 王艳, 柴发合, 王永红, 等. 2008. 长江三角洲地区大气污染物输送规律研究[J]. *环境科学*, 29(5): 1430-1435
- 王菁, 巨天珍, 谢顺涛, 等. 2018. 利用 OMI 数据对我国西部城市 NO_2 柱浓度的时空分布特征研究——以天水市为例[J]. *安全与环境工程*, 25(1): 51-57
- Wang Y, Ying Q, Hu J, et al. 2014. Spatial and temporal variations of six criteria air pollutants in 31 provincial capital cities in China during 2013—2014. [J]. *Environment International*, 73(1): 413-422
- Wang Y Q, Zhang X Y, Draxler R R. 2009. TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data [J]. *Environmental Modelling & Software*, 24(8): 938-939
- Xie S, Qi Y Z L, Tang X. 2005. Characteristics of air pollution in Beijing during sand-dust storm periods [J]. *Water Air & Soil Pollution*

- Focus , 5(3/6) : 217-229
- 肖悦,田永中,许文轩,等.2018.中国城市大气污染特征及社会经济影响分析[J].生态环境学报,27(3) : 518-526
- Żyromski Andrzej , Małgorzata B P , Ewa B A , *et al.* 2014.Evaluation of relationship between air pollutant concentration and meteorological elements in winter months [J]. Journal of Water & Land Development , 22(1) : 25-32
- 赵恒,王体健,江飞,等.2009.利用后向轨迹模式研究 TRACE-P 期间香港大气污染物的来源[J].热带气象学报,25(2) : 181-186
- 张国勋,陈超,王成臣.2003.气象因素对杭州城市空气质量的影响[J].干旱环境监测,17(3) : 147-148
- 赵敏.2016.眉山市东坡区中心城区环境空气质量评价及污染源浅析[J].环境与可持续发展,41(5) : 214-216
- 张青新.2013.基于气流轨迹聚类的大气输送对丹东市酸雨形成影响[J].中国环境监测,29(1) : 52-57
- Zhou X , Zhang T , Li Z , *et al.* 2018.Particulate and gaseous pollutants in a petrochemical industrialized valley city , Western China during 2013 – 2016 [J]. Environmental Science & Pollution Research , 25(15) : 15174-15190
- 赵晓莉,黄海玲.2016.天水市环境空气中臭氧浓度特征分析[J].资源节约与环保,(12) : 237-238
- 赵晓莉.2012.天水市大气铅浓度水平与污染特征分析[J].甘肃科技,28(4) : 34-35