



大气污染防治理论与应用丛书

MODELING SIMULATION  
OF  $PM_{2.5}$  TRANSPORT CHARACTERISTICS  
AND ITS ENVIRONMENTAL CAPACITY

# $PM_{2.5}$ 输送特征 与环境容量模拟

薛文博 王金南 韩宝平 武卫玲 著

中国环境出版社

# PM<sub>2.5</sub> 输送特征与环境容量模拟

Modeling Simulation of PM<sub>2.5</sub> Transport Characteristics  
and Its Environmental Capacity

薛文博 王金南 韩宝平 武卫玲 著

中国环境出版社·北京

图书在版编目 (CIP) 数据

PM<sub>2.5</sub> 输送特征与环境容量模拟/薛文博等著. —北京: 中国环境出版社, 2016.10

(大气污染防治理论与应用)

十二五国家重点图书项目

ISBN 978-7-5111-2836-2

I. ①P… II. ①薛… III. ①颗粒物污染—污染控制—数值模拟②颗粒物污染—大气遥感—卫星遥感—反演算法 IV. ①X513

中国版本图书馆 CIP 数据核字 (2016) 第 131568 号

审图号: GS (2016) 2914 号

出版人 王新程  
责任编辑 葛莉  
责任校对 尹芳  
封面设计 彭杉

---

出版发行 中国环境出版社  
(100062 北京市东城区广渠门内大街 16 号)  
网 址: <http://www.cesp.com.cn>  
电子邮箱: [bjgl@cesp.com.cn](mailto:bjgl@cesp.com.cn)  
联系电话: 010-67112765 (编辑管理部)  
010-67113412 (第二分社)  
发行热线: 010-67125803, 010-67113405 (传真)

印 刷 北京中科印刷有限公司  
经 销 各地新华书店  
版 次 2017 年 1 月第 1 版  
印 次 2017 年 1 月第 1 次印刷  
开 本 787×1092 1/16  
印 张 12.5  
字 数 272 千字  
定 价 56.00 元

---

【版权所有。未经许可, 请勿翻印、转载, 违者必究。】  
如有缺页、破损、倒装等印装质量问题, 请寄回本社更换

# 目 录

|                                             |     |
|---------------------------------------------|-----|
| 1 绪论.....                                   | 1   |
| 1.1 研究背景及意义 .....                           | 1   |
| 1.2 国内外研究进展 .....                           | 3   |
| 1.3 研究内容 .....                              | 22  |
| 1.4 技术路线 .....                              | 24  |
| 2 基于污染源的国家尺度排放清单研究 .....                    | 26  |
| 2.1 排放清单基本特征 .....                          | 26  |
| 2.2 污染源排放数据获取途径 .....                       | 27  |
| 2.3 排放清单集成模型开发 .....                        | 52  |
| 2.4 综合排放清单构建 .....                          | 58  |
| 2.5 小结 .....                                | 59  |
| 3 中国大陆地区 2010 年三维逐时气象场模拟 .....              | 61  |
| 3.1 WRF 气象模型 .....                          | 61  |
| 3.2 输入数据及参数设定 .....                         | 62  |
| 3.3 关键气象要素模拟 .....                          | 63  |
| 3.4 大气污染自净能力分析 .....                        | 69  |
| 3.5 小结 .....                                | 72  |
| 4 中国大陆地区 PM <sub>2.5</sub> 污染特征数值模拟研究 ..... | 73  |
| 4.1 空气质量模型集成 .....                          | 73  |
| 4.2 输入数据及参数设定 .....                         | 77  |
| 4.3 CMAQ 与 CAMx 模型对比分析 .....                | 79  |
| 4.4 模拟结果验证 .....                            | 86  |
| 4.5 PM <sub>2.5</sub> 时空分布规律 .....          | 88  |
| 4.6 PM <sub>2.5</sub> 组分构成模拟 .....          | 102 |

4.7 PM<sub>2.5</sub> 空间输送模拟 ..... 119

4.8 PM<sub>2.5</sub> 控制空间的区划 ..... 146

4.9 小结 ..... 148

5 PM<sub>2.5</sub> 年均浓度达标约束下的大气环境容量 ..... 150

5.1 方法与数据 ..... 151

5.2 环境容量核算 ..... 153

5.3 小结 ..... 160

6 典型时段 PM<sub>2.5</sub> 近地面浓度卫星反演研究 ..... 161

6.1 方法与数据 ..... 162

6.2 AOD 时空演变特征 ..... 163

6.3 PM<sub>2.5</sub> 拟合模型 ..... 167

6.4 PM<sub>2.5</sub> 浓度反演 ..... 176

6.5 小结 ..... 177

7 结论 ..... 179

参考文献 ..... 182

# 1 绪 论

## 1.1 研究背景及意义

随着我国国民经济的持续快速、跨越式发展,能源消费量急剧攀升,发达国家在上百年工业化过程中分阶段出现的环境问题,我国在近二三十年来集中出现。我国大气污染在尚未解决烟粉尘、二氧化硫等煤烟型污染问题的情况下,以  $\text{PM}_{2.5}$ 、 $\text{O}_3$  污染为特征的区域性复合型大气污染问题日益突出<sup>[1,2]</sup>。区域复合型大气污染本质上是由“多种污染物排放”引起的“多重环境问题”相互耦合,并随大气环流跨界传输所形成的,表现为连片区域  $\text{PM}_{2.5}$  与  $\text{O}_3$  浓度升高、灰霾及光化学烟雾污染频繁发生等重污染现象<sup>[3]</sup>。其中,  $\text{PM}_{2.5}$  (是悬浮于空气中粒径小于  $2.5\text{ }\mu\text{m}$  的颗粒物总称,也称为可吸入颗粒物)与较粗的大气颗粒物相比,粒径小,富含大量有毒、有害物质且在大气中的停留时间长,输送距离远,因而能对大气环境质量、大气能见度及人体健康造成极大影响<sup>[4-6]</sup>。近几年来,大规模灰霾污染事件在我国华北及华东大部分地区频繁发生,尤其是 2013 年 1 月发生的灰霾污染事件,涉及的区域超过了  $130\times 10^4\text{ km}^2$ ,影响人口达 8.5 亿,其持续时间之长、覆盖范围之广、污染程度之高、危害人群之多在全球均属罕见。重度  $\text{PM}_{2.5}$  污染事件已对公众健康造成巨大危害,特别是首都北京被贴上了“北京咳”的标签,使一个单纯的“环保问题”迅速演变成成为复杂的“社会问题”,并成为公众、媒体所诟病的焦点,大大影响了北京市的国际形象。因此,以  $\text{PM}_{2.5}$  为主的区域大气污染问题已经引起了国内外专业和非专业人士的广泛关注。

$\text{PM}_{2.5}$  来源极为广泛,组分构成及污染成因异常复杂<sup>[7]</sup>,但导致  $\text{PM}_{2.5}$  污染的主要因素归结起来包括大量污染物排放和不利气象条件两方面,其中人为源排放的大量气态及固态污染物是导致  $\text{PM}_{2.5}$  污染的根本原因<sup>[8]</sup>。 $\text{PM}_{2.5}$  排放既有人为活动的排放,又有自然源的贡献;既有火电、钢铁、水泥、燃煤锅炉等工业源的排放,又有机动车、居民等生活源的排放;既有建筑施工、道路扬尘等产生的颗粒物,又有餐饮油烟、装修装潢、生物质燃烧等量大面广的面源影响<sup>[9-18]</sup>。有研究表明,2010 年我国人为源排放的一次  $\text{PM}_{2.5}$  总量约为  $1\,214.84\times 10^4\text{ t}$ ,其中电力、工业、生活及交通源分别排放  $89.15\times 10^4\text{ t}$ 、 $603.30\times 10^4\text{ t}$ 、 $472.97\times 10^4\text{ t}$ 、 $49.42\times 10^4\text{ t}$ ,工业排放量所占比接近 50%<sup>[19]</sup>。依据污染源排放的一次  $\text{PM}_{2.5}$  组分构成来看,BC (黑炭)、OC (有机碳) 排放量分别为  $175.48\times 10^4\text{ t}$ 、 $337.90\times 10^4\text{ t}$ ,

BC、OC 合计占 PM<sub>2.5</sub> 排放总量的比例超过 40%<sup>[19]</sup>。此外,空气中高浓度的 PM<sub>2.5</sub> 不仅由污染源直接排放的一次 PM<sub>2.5</sub> 引起,也由污染源排放的二氧化硫、氮氧化物、氨、挥发性有机物等气态物质经过复杂的化学反应,形成的大量二次细颗粒物引起。有研究表明,气态污染物转化所形成的二次颗粒物约占空气中 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度的 50%<sup>[7]</sup>。

从 NASA 卫星反演的 PM<sub>2.5</sub> 质量浓度(2001—2006 年)来看<sup>[20]</sup>,全球 PM<sub>2.5</sub> 污染最重的区域主要集中在东亚、印度及北非地区,其中我国京津冀地区、长三角地区、成渝地区、中原地区及新疆部分地区最为严重,已成为全球 PM<sub>2.5</sub> 污染最严重的地区之一。这些区域中 PM<sub>2.5</sub> 年均浓度均超过或接近 80 μg/m<sup>3</sup> 以上,远超过国家环境空气质量二级标准限值或 WHO 第一阶段指导值 35 μg/m<sup>3</sup>, 大约是美国平均浓度的 8 倍;从城市空气质量监测数据来看<sup>[21]</sup>,2013 年我国 74 个开展 PM<sub>2.5</sub> 监测的城市,PM<sub>2.5</sub> 年均值最高达到 155.2 μg/m<sup>3</sup>,其中仅有拉萨、海口、舟山 3 个城市 PM<sub>2.5</sub> 年均浓度低于 WHO 第一阶段指导值或国家环境空气质量二级标准限值 35 μg/m<sup>3</sup>。2014 年 161 个开展 PM<sub>2.5</sub> 监测的城市,PM<sub>2.5</sub> 年均值最高达到 130 μg/m<sup>3</sup>,年均浓度达标城市数仅占 11%。大气中高浓度的 PM<sub>2.5</sub> 导致能见度大幅度下降,京津冀、长三角、珠三角等区域每年出现灰霾污染的天数达 100 天以上,个别城市甚至超过 200 天。如将 PM<sub>2.5</sub> 纳入空气质量评价体系,估计 2013 年全国地级及以上城市空气质量达标率将不足 25%。由此可见,我国 PM<sub>2.5</sub> 污染形势极其严峻。

为了解决重点区域日益严重、日趋复杂的 PM<sub>2.5</sub> 污染问题,改善大气环境质量,保障公众健康,“十二五”期间环保部已在“三区十群”13 个重点区域开展了大气污染联防联控工作,编制了《重点区域大气污染防治“十二五”规划》。重点区域大气污染防治规划将 SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、PM、VOCs 四项污染物作为污染减排对象,明确了四项污染物排放量削减目标,同时对 PM<sub>2.5</sub> 浓度提出了明确的控制要求,这是我国首次将 PM<sub>2.5</sub> 污染控制纳入国家控制战略。为配合规划的实施,2012 年环保部颁布了《环境空气质量标准》(GB 3095—2012),新标准将 PM<sub>2.5</sub> 纳入空气质量日常监测及评价指标体系,年均及日均浓度标准分别执行 35 μg/m<sup>3</sup>、75 μg/m<sup>3</sup>,同时要求全国在 2016 年前全面执行新修订的环境空气质量标准,并且要求重点区域、113 个环保重点城市、直辖市、省会城市及国家环保模范城市在 2013 年前率先执行。此外,为进一步强化、加快 PM<sub>2.5</sub> 污染的治理,2013 年国家颁布了《大气污染防治行动计划》,明确提出未来五年,我国空气质量要有明显改善,具体目标是到 2017 年,全国地级及以上城市 PM<sub>10</sub> 年均浓度比 2012 年下降 10%以上,京津冀地区、长三角地区、珠三角地区等区域 PM<sub>2.5</sub> 年均浓度分别下降 25%、20%、15%左右。

尽管我国政府已将 PM<sub>2.5</sub> 控制纳入国家行动计划,但由于 PM<sub>2.5</sub> 在大气中可以稳定存在数天至数周时间,能够随着大气传输至数百公里以外,因此 PM<sub>2.5</sub> 污染往往由来自不同区域的大气污染物共同贡献,并呈现出显著的区域性污染特征。已有研究表明,在京津冀、长三角和珠三角等区域,部分城市的 PM<sub>2.5</sub> 污染在很大程度上受到外来源的影响,其中北京市和上海市的 PM<sub>2.5</sub> 受外来源的影响达 20%~25%,特定气象条件下,跨界输送对 PM<sub>2.5</sub>

浓度的贡献甚至可高达 40%以上<sup>[22-25]</sup>。目前我国尚未全面开展  $\text{PM}_{2.5}$  监测工作, 缺乏统一的  $\text{PM}_{2.5}$  污染现状监测数据库。因此, 无法揭示较大时空范围内  $\text{PM}_{2.5}$  污染的时空分布、化学构成及跨界输送规律, 控制  $\text{PM}_{2.5}$  缺乏有效和扎实的技术支撑。因此, 有必要在国家尺度对  $\text{PM}_{2.5}$  污染的时空分布特征、形成机理、化学组分构成、空间输送及健康暴露等关键科学问题进行深入系统地研究, 为国家制定科学有效的大气污染防治策略及  $\text{PM}_{2.5}$  控制战略提供理论依据。

## 1.2 国内外研究进展

国内外大气污染控制理论与实践研究基本是建立在大气污染源排放清单、空气质量模型与实验观测(含地面观测与卫星遥感技术等)3种技术手段之上, 因此大气污染物排放清单、空气质量模型、实验观测(含地面观测与卫星遥感技术)已逐步发展成为大气环境科学三大基础性与支柱性研究领域。本节主要对  $\text{PM}_{2.5}$  控制理论、污染源排放清单、空气质量模型与卫星反演技术4个方面国内外的相关工作进行评述, 以梳理本书的研究思路。

### 1.2.1 $\text{PM}_{2.5}$ 控制理论的研究进展

由于  $\text{PM}_{2.5}$  污染存在着显著的跨界传输特征, 欧美发达国家在控制  $\text{PM}_{2.5}$  污染的过程中, 非常重视通过协调区域间的控制目标, 减少跨界污染物及其前体物的排放, 优化污染控制工程的资源配置工作。

美国为了控制全国层面的  $\text{PM}_{2.5}$  污染, 在以州实施计划为核心的属地管理模式基础上, 于 2005 年发布了《清洁空气州际法规》<sup>[26]</sup>, 试图通过使用排污交易等市场手段, 对美国中东部地区各州的  $\text{SO}_2$  和  $\text{NO}_x$  等二次颗粒物前体物进行减排, 以使  $\text{O}_3$  和  $\text{PM}_{2.5}$  浓度未达标区的面积分别减少 95%和 67%。2011 年, 美国又发布了《跨州空气污染条例》<sup>[27]</sup>, 在替代《清洁空气州际法规》(Clean Air Interstate Rule, CAIR)的同时提高了控制目标。《跨州空气污染条例》针对美国中东部地区的 23 个州提出了  $\text{SO}_2$  和  $\text{NO}_x$  排放控制目标, 控制区域的选择和控制目标的确定所依据的是每个州的  $\text{SO}_2$  和  $\text{NO}_x$  排放对自身和其他州  $\text{PM}_{2.5}$  和  $\text{O}_3$  浓度的影响。控制目标确定过程的技术核心包括利用 CAMx 等空气质量模型模拟各州之间的二次颗粒物跨界传输, 定量评价州际跨界传输对每个州空气质量超标的影响程度, 并结合污染控制成本等因素, 确定各州排放控制目标。

欧盟在 20 世纪 70 年代之前就基于区域酸雨跨界传输的科学事实, 制定了《远程大气污染跨界输送协议》<sup>[28]</sup>, 建立了跨国界的政策与科学平台, 用于协调制定跨界污染物的减排总体目标以及各国减排份额, 并在此平台上开展污染物减排的区域合作。在《远程大气污染跨界输送协议》的框架下, 欧洲国家通过签订多个确定跨界污染物总量减排的议定书, 推动  $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$ 、 $\text{NH}_3$ 、VOCs 以及一次颗粒物在各国的减排工作。2001 年, 欧盟结合空气

质量控制目标,考虑污染物跨界影响,在《远程大气污染跨界输送协议》等已有的政策基础上制订了《欧洲清洁空气计划》<sup>[29]</sup>,对欧洲各个国家设定了2020年的主要污染物减排目标。这些减排目标的实现将显著降低欧洲各国之间 $\text{PM}_{2.5}$ 的跨界传输,有助于欧洲整体达到空气质量目标。

无论是美国还是欧洲,其区域大气污染防治机制的设计、执行及评估过程均建立于大量的科学技术手段基础之上。欧洲在1984年建立了远程大气污染输送监测和评估合作计划(EMEP),将“监测—模型—评估—对策”等过程紧密联系在一起,提供了区域合作共同解决环境问题的成功范例。现有的EMEP体系已覆盖欧盟各国的 $\text{PM}_{2.5}$ 监测、污染源监控、防治对策研究以及实施效果评估等多个工作体系,为推进区域大气污染防治提供了重要科学支撑。美国也在《清洁空气州际法规》实施的同时,运用一整套包括排放清单编制、空气质量数值模拟、空气质量监测等技术手段的大气污染防治评估体系,对政策实施的效果进行评估,为政策的改进提供了可靠的技术支持。

相比欧美发达国家,我国在全国层面对大气污染跨界传输的评估和控制工作相对较弱,但在京津冀、长三角、珠三角等区域已开展了一些基础性研究工作。王自发等利用NAQPMS模型模拟了北京及周边地区臭氧浓度变化情况和输送过程,结果表明周边地区的污染输送对北京市区和远郊的最大贡献率分别达到了28.1%和59.5%<sup>[22]</sup>;Streets等用MODEL-3/CMAQ模拟了2008年北京奥运会期间周围省市对北京的大气污染浓度贡献,模拟结果显示在稳定的南风作用下,河北省污染排放对北京市大气中 $\text{PM}_{2.5}$ 和 $\text{O}_3$ 的浓度贡献分别达到50%~70%和20%~30%<sup>[23]</sup>;王淑兰等利用CALPUFF模型模拟了珠江三角洲城市群的大气污染传输,研究结果表明珠三角城市间污染相互作用显著<sup>[24]</sup>;胡晓宇等结合Models-3/CMAQ模拟系统进行敏感性分析,量化城市间的相互影响,并定义了“相对敏感指数”,并把它作为表征外来影响程度的指标<sup>[25]</sup>。这些研究均证实我国重点区域城市大气污染存在显著的跨界输送特征。

在前期研究的基础上,我国借助2008年北京奥运会、2010年上海世博会及2010年广州亚运会等重大赛会的机会,整合区域资源,开展了大气污染联防联控工作,分别在京津冀、长三角和珠三角地区,通过区域协同控制,成功保障了赛会举办地的空气质量。借鉴这些探索性工作,环境保护部于2012年颁布了《重点区域大气污染防治“十二五”规划》,强调建立“统一规划、统一监测、统一监管、统一评估、统一协同”的区域联防联控机制,应对区域性的大气污染问题;2013年6月,国务院出台了《大气污染防治行动计划(2013—2017)》,进一步要求加强区域协作,统一对 $\text{PM}_{2.5}$ 污染进行控制。

从国内外对 $\text{PM}_{2.5}$ 研究的技术手段来看,主要包括实验室分析、地面连续监测、卫星遥感、源解析技术及空气质量模型模拟等方法。在我国尚未对所有城市 $\text{PM}_{2.5}$ 地面浓度进行统一监测的情况下,通过卫星遥感及空气质量模型开展 $\text{PM}_{2.5}$ 污染特征研究是最经济、最有效及最可行的方法之一。在 $\text{PM}_{2.5}$ 卫星遥感及数值模拟领域,国内外已开展了大量研

究。Van Donkelaar A 等利用卫星遥感的气溶胶光学厚度 (AOD) 数据反演全球区域的  $\text{PM}_{2.5}$  浓度, 揭示了全球  $\text{PM}_{2.5}$  浓度的污染分布格局<sup>[30]</sup>; Pawan Gupta 等使用一年的 Terra 和 Aqua 卫星中分辨率成像光谱仪 (MODIS) 气溶胶光学厚度数据与澳大利亚悉尼、印度德里、中国香港、美国纽约及瑞士的 26 个地面监测颗粒物浓度数据进行比较, 证明卫星数据是监测颗粒物浓度的一种有效方法<sup>[31]</sup>; Lin 等运用长时间 MODIS 的 AOD 产品评估了中国细颗粒物的控制效果<sup>[32]</sup>; 李成才用 MODIS 气溶胶光学厚度产品对北京和香港的区域大气环境进行了初步研究分析, 发现 MODIS 气溶胶产品卫星遥感数据和地面监测数据之间有良好的相关性<sup>[33, 34]</sup>; 刘桂青等利用长江三角洲地区几个城市的空气污染指数与 MODIS 气溶胶光学厚度进行对比, 指出 MODIS 气溶胶光学厚度从某种程度上可以反映地面大气污染状况<sup>[35]</sup>; Wang 和 Christopher 利用 2002 年 7 个地面监测站的小时  $\text{PM}_{2.5}$  浓度和 MODIS 气溶胶光学厚度建立相关性模型, 得到较好的相关系数<sup>[36]</sup>。D.G. Streets 等应用 CMAQ 模型对北京奥运会期间空气状况进行了模拟研究, 发现北京市  $\text{PM}_{2.5}$  有 34% 来自周边地区的源排放<sup>[37]</sup>; Fu J S 利用 MM5/CMAQ 模式模拟了 2001 年北京冬夏季  $\text{PM}_{2.5}$  浓度, 揭示了  $\text{PM}_{2.5}$  浓度在这两个季节的变化特征<sup>[37]</sup>; 刘晓环等利用 CMAQ 模型模拟了济南市  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$  和 OC 在  $\text{PM}_{2.5}$  中所占的比例, 与观测值有良好的吻合度<sup>[38]</sup>; 冯业荣等利用 CMAQ 空气质量模式对珠江三角洲热带气旋产生的灰霾天气进行了研究, 揭示了热带气旋雨和灰霾天气之间的统计关系<sup>[39, 40]</sup>。但是上述研究大多涉及的地域空间较小或时间周期较短, 或仅从卫星遥感与空气质量模型某一方面对  $\text{PM}_{2.5}$  污染情况进行研究, 而在大尺度范围、长时间周期、卫星遥感与空气质量模型耦合技术领域对  $\text{PM}_{2.5}$  污染特征的研究还较少, 其结果难以为我国制定  $\text{PM}_{2.5}$  控制策略提供扎实的技术支撑。

### 1.2.2 污染源排放清单研究进展

大气污染物排放源清单指的是各类大气污染源所排放的不同污染物信息的集合。目前在国际范围内, 大气污染物排放源清单并没有统一的定义, 但不同研究机构对大气污染物排放源清单定义中所表示的内容基本相同。如美国国家环保局 (United States Environmental Protection Agency, U.S.EPA) 的定义是“排放源清单是按排放源类型列出的数据库, 是各种大气污染源在一定时期内排放到大气中的不同污染物的排放量”。欧洲环境署 (European Environment Agency, EEA) 将排放源清看作包含了许多支持性数据, 如排放源的空间位置、排放量测试、排放因子、产品产量及活动数据、工艺状况、排放量测试及估算的方法等集成成的一个清单。我国郑君瑜等综合上述定义认为排放源清单是指某一特定地理区域在某一特定时期内, 基于污染源分类的, 由各种污染源排放到大气中的一种或多种污染物的列表<sup>[41]</sup>。大气污染物排放的来源包括自然排放源和人为排放源两大类。自然排放源是指土壤、植物、海洋、山林火灾、火山活动、岩石风化、海啸等自然活动为源头的排放; 人为排放源则是指由人类日常的生活和生产活动引起的各类污染物排放, 相对于自然排放

源, 可通过人为方式进行控制的人为排放源更为人们所关注。

大气污染物排放源清单是伴随着大气污染问题的出现和污染控制的需要而发展起来的, 作为区域空气质量模型模拟研究的基础支撑数据, 在区域大气污染研究与控制中起着重要作用。高时空分辨率的源排放清单能够真实地反映污染源排放的实际情况, 有助于全面了解大气污染排放特征和规律, 尤其是在利用数值模拟的方法来研究复杂地形地区, 例如海岸带、山区、河谷、城市等地区的复合型大气环境问题, 以及为区域大气环境管理制定相应的对策措施提供科学依据过程中作用巨大。

大气污染排放源种类繁多, 受人类活动、能源结构等因素的影响, 具有一定的不确定性, 其空间和时间分布表现为非均匀性的特征。大气污染源一般可以分为点源、线源、面源和生物源。其中点源表现为集中在一点或者在可以当作一点的小范围内的污染物排放, 主要来源是大工厂、发电厂连续排放污染物的大烟囱。线源表现为沿着线性走向的污染物排放, 主要来源是汽车、火车、飞机、轮船等交通工具的排放。面源表现为在一个较大范围内污染物的排放, 例如密集低矮居民住宅的烟囱群、居民区内的茶炉、取暖锅炉和中小工厂的锅炉、窑炉以及无组织排放等。针对不同类型的污染源其估算方法和主要关注的因素也有所不同, 对于点源不仅需要了解污染物的成分、性质、排放强度以及排放的时间变化规律, 还需要掌握烟囱高度、位置、烟气温度、烟气速率、烟囱出口直径等参数来评估其排放情况。对于线源其污染排放依赖于环境温度、道路类型以及交通工具的类型、使用年限和行驶里程等参数, 由于测量技术的限制以及具有流动性强的特点, 线源污染一般较难估算。对于面源由于其污染物的排放和温度、太阳辐射、地表覆盖等因素有关, 且数量较大, 同样较难统计<sup>[42-52]</sup>。

污染源排放清单的建立方法目前主要有以下几种: 实测法、模型法、排放系数法、物料平衡法、生命周期法等。实测法主要通过被认可的监测方法来测量排放气体的流速、流量、污染物浓度等基础数据获得相应的源排放信息。模型法是采用已开发的排放模型, 结合当地的输入参数来模拟污染物的排放, 该法主要在交通源的排放估算方面应用较为广泛。排放系数法是在正常技术、经济和管理条件下, 用单位能源消耗所排放的污染物数量的统计平均值来进行排放估算, 它比较适用于监测数据不够详尽的情况。物料平衡法是基于物质守恒原理, 把工业排放源的排放量、生产工艺和管理、资源的综合利用及环境治理结合起来, 系统全面地研究生产过程中污染物的产生量、排放量。生命周期法主要是分析产品的整个生命周期中各阶段的排放情况来综合得到污染物的排放数据。在上述方法中, 排放系数法和模型估算法较为常用<sup>[53]</sup>。

美国国家环保局在 20 世纪 90 年代初就建立起了全国性的大气污染物排放清单, 目前已发展到 National Emission Inventory 2011 (NEI 2011), 包括了 8 种标准污染物 (Criteria Air Pollutants) ——CO、NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、PM<sub>2.5</sub>、PM<sub>10</sub>、NH<sub>3</sub>、VOCs 及 Pb, 以及 187 种有毒污染物 (Hazardous Air Pollutants)。在联邦及州政府排放源清单基础上, 美国国家环保局通过

一系列情景预测与空气质量的模拟研究,于2005年3月发布了《清洁空气州际法规》。CAIR的制订是基于一整套污染综合防治技术的集成,区域排放源清单的编制技术则是整个集成体系中最关键的技术之一<sup>[54]</sup>。此外,EPA还发展了一套比较完整的排放系数AP-42,定义了美国国家环保局确定的需要优先考虑的污染物,其中包括温室气体、臭氧前驱物VOC和NO<sub>x</sub>,并要求另一些基本污染物,如硫氧化物、颗粒物以及CO也应在清单中分别列出。对于温室气体的排放清单则需要考虑CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O以及含氯氟烃、不含氯原子的氢氟烃类和C8类全氟碳化物等臭氧前驱物。对于有害空气污染物清单,要求估算《清洁空气法》(CAA)中列出的189种有害大气污染物(HAPs)。可见,AP-42对排放源清单的建立工作具有重要的指导意义。

在欧洲,英国、法国、德国等国家也都分别建立了全国范围的大气污染物排放清单。欧洲环境署建立了包括30个国家和地区在内的污染物排放清单CORINAIR90,并以5年为步长预测了直至2030年的污染物排放量,其中主要包括8种污染物——SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、NMVOC、NH<sub>3</sub>、CO、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O、CO<sub>2</sub><sup>[53]</sup>。

相对而言,亚洲地区的源排放清单研究起步较晚,只有印度、韩国、日本等国家的一些城市建立了相应的大气污染物排放清单。总体上来说排放源清单编制工作的系统性还不够,大多数排放源清单都是由各个国家或地区科研机构分散的研究工作而完成,整体性、统一性不够。T.Ohara等建立了1980—2020年亚洲区域排放清单(Regional Emission Inventory in Asia, REAS),该清单的估算和预测时间段为1980—2020年,是亚洲目前最完整的综合性排放清单。氮氧化物、二氧化硫、一氧化碳、二氧化碳、一氧化二氮、氨气、生物碳、有机碳、甲烷和非甲烷挥发性有机物是该清单估算的主要污染物;污染物来源主要包括人为源排放,例如工业、电力、交通及民用的石化及生物质燃料燃烧,工业过程及石油挥发等的无组织排放、种植土壤及牲畜的农业过程排放、生物质燃烧和水处理过程中的排放,以及自然排放,例如植被和土壤排放等<sup>[54]</sup>。David G.Streets等根据美国航空航天局(NASA)的TRACE-P项目(Transport and Chemical evolution over the Pacific)研制了2000年亚洲地区1°×1°的排放清单,利用航天器在西太平洋上空进行的实验及地面观测站、卫星接收站和模型研究所提供的详细数据获取污染排放数据。根据该污染物排放清单研究结果,化石燃料燃烧、其他工业活动、生物质燃烧、植被源及土壤扬尘是亚洲排放较严重的污染源。该清单目前已更新至2006年0.5°×0.5°分辨率的亚洲地区INTEX-B排放清单<sup>[55]</sup>。

我国环境统计或排放清单工作始于20世纪70年代末,经过30余年的发展,形成了以环境统计、污染源普查、总量核查和在线监测为主的数据体系。由于我国早期大气环境问题主要以SO<sub>2</sub>和颗粒物污染为主,“十一五”之前长达20余年的时间,我国环境统计的重点围绕SO<sub>2</sub>和烟尘、粉尘开展。近年来NO<sub>x</sub>排放引起的环境问题逐渐突出,NO<sub>x</sub>排放控制被逐渐重视,为此我国于2007年首次开展了NO<sub>x</sub>统计工作,并在2007年开展的全国污染源普查工作中,第一次全面调查了NO<sub>x</sub>排放量,首次摸清了NO<sub>x</sub>排放底数。国民经济

“十二五”规划纲要中, NO<sub>x</sub> 被纳入污染物总量减排约束性指标, 为了在“十二五”期间开展 NO<sub>x</sub> 总量控制, 夯实总量减排基数, 我国在 2009 年和 2010 年分别对污染源普查数据进行了校核更新。自 2011 年开始 NO<sub>x</sub> 也被纳入每半年一次的总量核查工作, 电力、水泥等重点行业逐步安装了 NO<sub>x</sub> 在线监测设备, 国家尺度上的法定 NO<sub>x</sub> 排放清单逐步完善, 以 SO<sub>2</sub>、颗粒物污染及 NO<sub>x</sub> 为核心的国家排放清单基本建立。

除了政府部门主导的环境统计及污染源普查工作外, 相关研究机构和学者在大气污染源排放清单方面也做了大量深入的研究工作, 其中空间尺度最大、涵盖化学物种最多、应用范围最广的为清华大学参与编制的 TRACE-P (2000 年)、INTEX-B (2006 年) 排放清单及日本国立环境研究院编制的 REAS (1980—2020 年) 排放清单。在 INTEX-B 排放清单的基础上, 清华大学结合 863 课题“区域大气污染源识别与动态源清单技术及应用”将 2006 年排放清单更新至 2010 年 MEIC 排放清单。上述排放清单相比官方环境统计数据具有以下特点: ①污染源活动水平多采用宏观数据, 计算方法多采用排放系数, 在线监测等实测资料应用较少; ②采用“自上而下”的方法将排放量分解到网格, 具有较高的空间分辨率; ③涵盖的污染物除 SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、烟粉尘等常规污染物外, 还包括 VOC、BC、OC、PM<sub>10</sub>、PM<sub>2.5</sub>、NH<sub>3</sub> 等与复合型大气污染直接相关的污染物。

### 1.2.3 空气质量模型研究进展

空气质量模型是基于人类对大气物理和化学过程科学认识的基础上, 运用气象学原理及数学方法, 从水平和垂直方向在大尺度范围内对空气质量进行仿真模拟, 再现污染物在大气中输送、反应、清除等过程的数学工具。

近些年来, 空气质量模拟技术发展迅速, 相比其他环境要素的数学模拟技术更为成熟。当前各种空气质量模型已被广泛应用于环境影响评价、重大科学研究及环境管理与决策领域, 已成为模拟臭氧、颗粒物、能见度、酸雨甚至气候变化等各种复杂空气质量问题及研究区域复合型大气污染控制理论的核心技术之一, 并发展成为一个重要的学科方向<sup>[56-65]</sup>。特别是在北京奥运会、上海世博会、广州亚运会、APEC 等重大会议空气质量保障和我国“十二五”重点区域大气污染联防联控等工作中, 空气质量模型发挥了不可替代的作用。

#### 1.2.3.1 空气质量模型基本理论

空气质量模型一般考虑了以下大气过程: 排放 (人为和自然源排放)、输送 (水平平流和垂直对流)、扩散 (水平和垂直扩散)、化学转化 (气、液、固相化学反应)、清除机制 (干湿沉降) 等。其理论研究一直是沿着湍流扩散三个理论体系发展起来的, 即梯度输送理论 (K 理论)、统计理论和相似理论<sup>[38, 57]</sup>。

梯度输送理论 (K 理论): 是在湍流半经验理论的基础上发展起来的, 因此梯度输送理论在小尺度预测上缺陷很突出, 但它在处理大尺度污染扩散问题上具有一定优越性, 能

够利用观测的风速廓线资料,不需假定某种分布形式,即可得到污染物的浓度分布。其缺陷体现在:一方面,它把无规则的湍涡看成分子热运动,假定湍涡是流体微团,与分子输送模型具有相同属性,由此得到的梯度与通量之间的线性关系,实质上这只是一种假定。另一方面,近地层流场情况十分复杂,湍流输送的性质远非简单的线性关系,尤其是湍流交换系数,它随大气湍流场的性质及空间尺度而改变,其形式难以确定。

统计理论:是从湍流场的统计特征量出发,描述流场中扩散物质的散布规律。泰勒把扩散系数和湍流脉动场的统计特征量联系起来,用气象参数来表达这些统计特征量,找出扩散参数和气象条件的联系,导出了适用于连续运动扩散过程的泰勒公式。该理论的核心是扩散粒子关于时间和空间的概率分布,通过概率分布函数描述扩散粒子浓度的空间分布和时间变化。泰勒公式是在均匀、定常的假设条件下导出,而实际大气并不符合这种条件,只有在下垫面开阔平坦、气流稳定的小尺度扩散处理中,才近似满足这样的条件。

相似理论:是在量纲分析基础上发展起来的,是研究近地层大气湍流的一种有效理论方法。其基本原理是关于拉格朗日相似性的假设,假定流场的拉格朗日性质仅仅决定于表征流场欧拉性质的已知参数,粒子扩散的特征与流场的拉格朗日性质相联系。在上述假定下,就可以把大气扩散和风速及温度的空间分布联系起来。其原则上没有更多理论限制,但由于多变量量纲分析的复杂性和不确定性,目前主要在小尺度的垂直扩散问题中使用比较成功。

### 1.2.3.2 空气质量模型的发展历程

鉴于空气质量模型在大气污染状况评估和控制中的重要地位,开发和推广新型的空气质量模型显得尤为重要。自 20 世纪 60 年代到现在,美国国家环保局或其他机构共资助开发了三代空气质量模型。20 世纪 60 年代,EPA 推出了第一代空气质量模型,这些模型又分为高斯扩散模型和拉格朗日轨迹模型,其中高斯扩散模型主要有 ISC、AERMOD、ADMS 等,拉格朗日模型有 OZIP/EKMA、CALPUFF 等;80 年代到 90 年代的第二代空气质量模型包括 UAM、ROM、RADM 在内的欧拉网格模型;90 年代以后出现的第三代空气质量模型是以 CMAQ、CAMx、WRF-CHEM、NAQPMS 为代表的综合空气质量模型,即“一个大气”的模拟系统<sup>[38]</sup>。

#### 1) 第一代空气质量模型

在一系列大气污染问题出现之后,空气质量的控制和预测越来越多地受到人们的关注。空气质量模型研究始于 20 世纪 60 年代,第一代空气质量模型主要有基于质量守恒定律的箱式模型、基于湍流扩散统计理论的高斯模型和拉格朗日轨迹模式三种,代表模式有 ISC、AERMOD、ADMS、CALPUFF 及 EKMA 模式等。当时的模型一般以 Pasquill 和 Gifford 等研究者得出的离散不同稳定度条件下的大气扩散参数曲线和 Pasquill 方法确定的扩散参数为基础,采用简单的、参数化的线性机制描述复杂的大气物理过程,适用于模拟惰性污染物的长期平均浓度。高斯模式(如 ISC、AERMOD、ADMS)由于其结构简单,对输入

数据的要求不高以及计算简便，20 世纪 60 年代以后，在大气环境问题中得到了最为广泛的应用。由于近年来城市或区域环境问题，如细粒子、光化学烟雾等往往与污染物在大气中的化学反应紧密相关，而第一代模型没有或仅有很简单的化学反应模块，不能揭示大气化学过程，因而使它们的应用受到了很大的限制。但是这些模型结构简单、运算速度快、长期浓度模拟的准确度高，至今仍在惰性污染物模拟方面被广泛使用。值得注意的是，第一代空气质量模型的划分并不是非常明确，例如 ADMS、AERMOD、CALPUFF 模型应用了 90 年代以来大气研究的最新成果，与传统的第一代模型已有很大不同<sup>[38, 66, 67]</sup>。

2) 第二代空气质量模型

20 世纪 70 年代末 80 年代初，随着对大气边界层湍流特征的研究，研究者开展了大量室内试验、数值试验和现场野外观测等工作，发现高斯模型对许多问题都无法给出合理的解答，这推动了第二代空气质量模型的研究与发展。第二代空气质量模型中加入了比较复杂的气象模式和非线性反应机制，并可以将被模拟区域细分为多个三维网格单元。模型将模拟每个单元格大气层中的化学变化过程、云雾过程，以及位于该网格周边的其他单元格内的大气状况，这包括污染源对网格区域内的影响以及所产生的干、湿沉降作用等<sup>[38, 66, 67]</sup>。

这类模型在 1980—1990 年被广泛应用。这一时期三维城市尺度光化学污染模式（如 CIT、UAM 等模式）、区域尺度光化学模式（ROM）以及酸沉降模式（RADM、ADOM、STEM 等模式）开始得到研究。我国第二代空气质量模型主要有中国科学院雷孝恩基于 RADM 模型建立的高分辨率对流层化学模式（HRCM）、中国科学院大气物理所等研发的区域空气质量模式 RAQM 和三维时变欧拉型区域酸沉降模式（RegADM）等<sup>[38, 66, 67]</sup>，不同空气质量模型特征对比情况见表 1-1。

表 1-1 第一代与第二代空气质量模型对比

| 名称   | OZIPM/EKMA                  | UAM                         | RADM                     | ROM                   |
|------|-----------------------------|-----------------------------|--------------------------|-----------------------|
| 结构   | 拉格朗日轨迹模型                    | 三维欧拉数值模型                    | 三维欧拉数值模型                 | 三维欧拉数值模型              |
| 模拟对象 | 城市内臭氧                       | 城市内臭氧                       | 地区性臭氧酸沉降                 | 地区性臭氧酸沉降              |
| 网格定义 | 小于 18 km                    | 20~80 km                    | 4~8 km                   | 一维                    |
| 设计目的 | 模拟城市的氧化物运动过程                | 模拟城市的氧化物运动过程                | 模拟光化学污染物的形成和沉降           | 模拟区域内光化学污染物沉降过程       |
| 缺点   | 模拟二次污染物如臭氧和颗粒物（PM）时，其机理过于复杂 | 结构复杂，无法同时模拟多种污染物对大气质量的影响    | 结构复杂，无法同时模拟多种污染物的共同影响    | 结构过于陈旧和复杂，致使非专业人士无法操作 |
| 现状   | 由于应用受到限制，已经基本被淘汰            | 目前唯一还得到 EPA 支持和推荐的第二代空气质量模型 | 用于美国、欧洲、亚洲的酸沉降和臭氧的决策和研究中 | EPA 已经停止对该模型发展的支持     |

3) 第三代空气质量模型

受时代的限制，第二代空气质量模型在设计上仅考虑了单一的大气污染问题，对于各污染物间的相互转化和相互影响考虑不全面，而实际大气中各种污染物之间存在着复杂的物理、化学反应过程。因此，20 世纪 90 年代末美国国家环保局基于“一个大气”理念，设计研发了第三代空气质量模型系统 Models-3/CMAQ。CMAQ 是一个多模块集成、多尺度网格嵌套的三维欧拉模型，这就突破了传统模型针对单一物种或单相物种的模拟，考虑了实际大气中不同物种之间的相互转换和互相影响，推动了模型发展的新理念。当前主流的第三代空气质量模型还包括 CAMx、WRF-CHEM 等，特别是美国大气研究中心 (NCAR) 开发的 WRF-CHEM 模型，它考虑了气象和大气污染的双向反馈过程，在一定程度上代表了区域大气模型未来发展的主流方向。中国的第三代空气质量模型以中国科学院大气物理所自主研发的嵌套网格空气质量预报模型 NAQPMS 为代表，目前已在北京、上海、深圳、郑州等城市空气质量实时预报业务中得以运用<sup>[38, 66, 67]</sup>，取得了较好的效果。

1.2.3.3 空气质量模型分类

按不同划分依据，可以将空气质量模型划分为下列几类：①按尺度划分，空气质量模型可以分为城市模型、区域模型和全球模型（如 GEOS-Chem）；②按机理划分，可分为统计模型和数值模型，前者是以现有的大量数据为基础做统计分析建立的模型，后者则是对污染物在大气中发生的物理化学过程（如传输、扩散、化学反应等）进行数学抽象所建立的模型；③从流体力学的角度划分，可分为拉格朗日模型和欧拉模型，前者由跟随流体移动的空气微团来描述污染物浓度的变化，后者则相对于固定坐标系研究污染物的运动，以空间内固定的微元为研究对象；④从模型研究对象来看，又分为惰性气体扩散模型、光化学氧化模型、酸沉降模型、气溶胶细粒子模型和综合空气质量模型<sup>[68]</sup>，空气质量模型分类及特征见表 1-2。

表 1-2 空气质量模型分类

| 扩散模式         | 模型机理    | 特点                                                                                                               | 限制                               |
|--------------|---------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------|
| 统计模式         | 回归方程    | 根据历史空气质量和气象条件建立回归方程，由气象条件推算浓度，计算非常简单，可用于所有大气污染物                                                                  | 不能反映污染源排放与环境质量之间的输入—响应数量关系       |
| 高斯烟流模式       | 分布函数    | 以 ISC、AERMOD、ADMS 为代表，可模拟 SO <sub>2</sub> 、NO <sub>2</sub> 、PM <sub>10</sub> 等。计算简单，可逐时、逐日进行长期浓度模拟               | 属于稳态烟流模型，不能考虑流场的空间变化             |
| 拉格朗日<br>轨迹模型 | 烟团模型    | 以 CALPUFF、CALGRID 为代表，用于模拟 SO <sub>2</sub> 、NO <sub>2</sub> 、PM <sub>10</sub> 和 O <sub>3</sub> 等，可使用客观分析法处理三维气象场 | 与高斯模式比较，计算工作量较大；与网格模型比较，化学机制相对简单 |
|              | 经验动力学模型 | 以 EKMA 为代表，便于使用，考虑的化学反应较为详细，计算速度快                                                                                | 物理过程过于简单，可模拟周期短，不能准确模拟多天时间或长距离输送 |

| 扩散模式   | 模型机理   | 特点                                                          | 限制                                   |
|--------|--------|-------------------------------------------------------------|--------------------------------------|
| 欧拉网格模型 | 城市网格模型 | 以 UAM 为代表, 物理过程详细, 适用于城市多天污染事件模拟                            | 计算工作量大, 模拟长距离输送问题时不稳定                |
|        | 区域网格模型 | RADM、ADOM、ROM 为代表, 物理、化学过程详细, 适用于区域臭氧及酸沉降污染模拟               | 计算量大, 空间分辨率有限, 无法准确反映城市污染物动态变化       |
|        | 嵌套网格模型 | 以 CMAQ、CAMx、WRF-CHEM 为代表, 可同时模拟区域和城市尺度各种大气污染过程, 在重点地区进行网格嵌套 | 模型机理复杂, 数据需求严格, 计算工作量大, 专业门槛高, 普及性不够 |

1.2.3.4 国内外典型空气质量模型

空气质量数值模型已经有数十年的发展历史, 在世界范围内产生了数百个不同的模型, 当前国际上典型的空气质量模型主要包括 ISC3、AERMOD、ADMS、CALPUFF 等法规化城市尺度模型, 以及 NAQPMS、CAMX、WRF-CHEM、CMAQ 等科研性区域尺度模型和 GEOS-CHEM 等全球尺度空气质量模型。

1) 城市尺度模型

ISC3、AREMOD、ADMS、CALPUFF 均属于第一代空气质量模型, 是最典型的法规化城市尺度模型。按照模型法规化进程划分, ISC3 属于第一代法规性模型, 而 AREMOD、ADMS、CALPUFF 为第二代法规性模型。四个模型的优点均在于结构简单且计算速度快、基础数据要求低等。其简单易用的优点奠定了其成为法规化模型的基础。不足之处体现在适用尺度相对较小、没有涉及化学过程或化学过程较为简化, 基本理论假设过于理想, 不能很好地模拟 O<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub>、酸雨等区域性复合型大气污染过程。从实践应用来看, ADMS、AREMOD、CALPUFF 模型多用于环境影响评价和城市尺度一次污染物模拟, 尤其是在国内外环境影响评价领域发挥了主力军作用, 已被多个国家定为法规化模型。我国环保部发布的《环境影响评价技术导则 大气环境》(HJ 2.2—2008) 奠定了 ADMS、AERMOD、CALPUFF 三个模型在我国环境影响评价领域的法规地位。下面分别分析各个模型的特征:

(1) ISC3 模型 (Industrial Source Complex3)

该模型属于第一代法规模型, 是美国国家环保局开发的一个复合工业源空气质量扩散模式, 其公式利用稳态封闭型高斯扩散方程。

ISC3 模式的适用范围一般小于 50 km, 模拟物质一般为一次污染物<sup>[69]</sup>。模式可处理各种烟气抬升和扩散过程, 如静风、风廓线指数、烟囱顶端尾流、城市建筑下洗、污染物转化、沉积和沉降等。可对点源、面源、线源、体源等多种污染源进行模拟; 可输出多种污染物浓度以及颗粒物的沉积和干、湿沉降量等计算结果; 污染物可选取 SO<sub>2</sub>、TSP、PM<sub>10</sub>、NO<sub>x</sub> 等; 可选择逐时、数小时、日、月及年等多种平均模拟时段<sup>[69]</sup>。

ISC3 与 AERMOD、ADMS 相比, 它的最大的优势是其操作简单, ISC3 需要的输入数