

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2021123101

张艺凡, 侯雪伟, 陈军, 等. 淮安市洪泽区细颗粒物及臭氧污染特征[J]. 环境化学, 2022, 41(8): 2561-2572. ZHANG Yifan, HOU Xuewei, CHEN Jun, et al. Study on characteristics of fine particulate matter and ozone pollution in Hongze District of Huai 'an City[J]. Environmental Chemistry, 2022, 41 (8): 2561-2572.

淮安市洪泽区细颗粒物及臭氧污染特征*

张艺凡1侯雪伟1** 陈 军2 王成刚1 杨 强3 吕 鑫1

(1.南京信息工程大学大气物理学院,气象灾害预报预警与评估协同创新中心,南京,210044;2.淮安市洪泽生态环境局,淮 安,223100;3.成都理工大学核技术与自动化工程学院,成都,610059)

摘 要 本研究基于我国生态环境部空气质量自动监测站逐时监测数据分析了淮安市洪泽区细颗粒物 (PM_{2.5})及臭氧(O₃)时空变化特征及其来源特征.结果表明,该地区 PM_{2.5}浓度冬季高,夏季低; O₃浓度春秋季高,冬季低;PM_{2.5}和O₃均呈现显著的目变化特征,PM_{2.5}呈U型分布,15时浓度最低, O₃呈单峰分布,15时达峰值,谷值出现在08时.与江苏省及淮安市区域平均值相比,洪泽区 PM_{2.5}浓度 较低而 O₃浓度则较高.对比洪泽区内两测站 PM_{2.5}及 O₃表明,湖畔 PM_{2.5}浓度较低而 O₃浓度较高,两 站差异在冬季,特别是 2—3 月差异最大,这很可能与工业园区一次排放、氮氧化物(NO_x)的滴定作 用以及湖陆风效应等有关.后向轨迹聚类和 PSCF 方法对洪泽区 PM_{2.5}潜在源的分析结果表明,污染物浓 度在冬季受区域传输的影响较大,安徽北部、东北部为洪泽区最主要的潜在贡献源区.洪泽区内冬季细 颗粒物在线源解析表明,监测期间 PM_{2.5}的上升主要受二次无机源、机动车尾气源、工业工艺源、燃煤 源增多的影响;作为 O₃重要前体物的可挥发性有机物(VOCs),其监测结果表明,洪泽工业园区 VOCs主要以芳香烃占比最高,为 58%;新华书店站 VOCs 也主要为芳香烃,占比 39%,其次为烷烃、 卤代烃及含氧含氮烃,分别占比 20%、17%及 16%.

关键词 PM_{2.5}, PSCF 潜在源模型, 在线源解析, VOCs 监测.

Study on characteristics of fine particulate matter and ozone pollution in Hongze District of Huai 'an City

ZHANG Yifan¹ HOU Xuewei¹^{**} CHEN Jun² WANG Chenggang¹ YANG Qiang³ LYU Xin¹

 Nanjing University of Information Science & Technology, Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing, 210044, China; 2. Hongze Ecological Environment Bureau of Huai'an, Huai'an, 223100, China; 3. Chengdu University of Technology, Chengdu, 610059, China)

Abstract Based on the hourly monitoring data of the air quality automatic monitoring station of the Ministry of ecological environment of China, this study analysed the temporal and spatial variation characteristics and source characteristics of fine particulate matter ($PM_{2.5}$) and ozone (O_3) in Hongze district on the east side of Hongze Lake. The results showed that the concentration of $PM_{2.5}$ was higher in winter and lower in summer; the concentration of O_3 was higher in spring and autumn, but lower in winter; both $PM_{2.5}$ and O_3 showed significant diurnal variation characteristics, $PM_{2.5}$ showed

²⁰²¹年12月31日收稿(Received: December 31, 2021).

^{*} 国家重点研发计划"全球变化及应对"重点专项 (2016YFA0602003) 和四川省重点研发计划 (2019YFS0473) 资助.

Supported by the National Key Research and Development Program of China (2016YFA0602003) and the Key Research and Development Program of Sichuan Province (2019YFS0473).

^{**} 通信联系人 Corresponding author, Tel: 15195916165, E-mail: houxw@nuist.edu.cn

a U-shaped distribution, the lowest concentration at 15:00, O₃ showed a single peak distribution, reached the peak at 15:00, and the valley appeared at 08:00. Compared with the regional average of Jiangsu Province and Huai'an City, the concentration of PM25 in Hongze was lower, while the concentration of O_3 was higher. The comparison of PM_{25} and O_3 between the two sites in Hongze shows that $PM_{2,5}$ concentration by the lakeside is lower while O_3 concentration is higher. The difference between the two sites is greatest in winter, especially in February and March, which is probably related to primary emissions from the industrial zone, titration of nitrogen oxides (NO_x) and lake-land wind effect. The analysis results of the potential sources of PM25 in Hongze by backward trajectory clustering and PSCF show that the pollutant concentration is greatly affected by the regional transport in winter, and the north and northeast of Anhui Province are the main potential sources of PM_{2.5} in Hongze. Online source analysis of PM_{2.5} in winter in Hongze shows that the increase of PM2.5 during the monitoring period is mainly affected by the increase of secondary inorganic sources, motor vehicle exhaust sources, industrial process sources and coal burning sources. As an important precursor of O₃, volatile organic compounds (VOCs), the monitoring results show that VOCs in Hongze Industrial Zone mainly take up the highest proportion of aromatic hydrocarbons, accounting for 58%; VOCs at Xinhua Bookstore site also are mainly aromatic hydrocarbons, accounting for 39%, followed by alkanes, halogenated hydrocarbons and oxygencontaining nitrogen hydrocarbons, accounting for 20%, 17% and 16%, respectively.

Keywords PM_{2.5}, PSCF, online source analysis, VOCs measurement.

《中国生态环境状况公报》2020年发布的数据显示,我国的城市大气污染状况相较于 2019年有所 好转,细颗粒物(PM_{2.5})、可吸入颗粒物(PM₁₀)、二氧化硫(SO₂)、二氧化氮(NO₂)、一氧化碳(CO)、臭 氧(O3)六项指标浓度超标比例呈现下降趋势,但空气质量状况仍十分严峻.目前细颗粒物(PM25)和臭 氧(O3)仍是影响我国空气质量最主要的两大污染物.国内学者对京津冀、长江三角洲和珠江三角洲地 区的 PM25和 O3展开了大量研究,结果表明, PM25的浓度主要由气象条件和污染源排放共同决 定^[1-2], 而 O₃ 的浓度主要由前体物 VOC_s、NO_x 浓度及气象条件决定^[3], 不同地区的 PM₂₅ 和 O₃ 浓度分 布具有不同的时空分布特征[4-5] 李名升等分析了中国大陆城市的 PM25 污染的时空分布规律[6],发现 冬季污染较重, PM2.5 的日变化呈现不太明显的双峰分布. 周明卫等研究分析了中国城市 O3 的时空变 化规律^[7],发现 O,浓度空间分布呈现北高南低的规律, O,浓度的高值主要出现在夏季.张亮等利用 WRF-Chem 空气质量模式对长江三角洲的一次 O,高污染事件进行了模拟¹⁸,研究发现长江三角洲地 区 O₃的时空分布主要受气象场、地理位置、区域输送和化学生成所影响.余钟奇等使用 WRF-Chem 和 WRF-FLEXPART 模式定量研究了长江三角洲 PM25 来源贡献¹⁹,发现长江三角洲内部排放及 污染相互传输的影响比外部的跨区域输送贡献更大.近年来,利用后向轨迹分析模型来判断污染物的 传输路径,并通过聚类分析对传输路径进行分类分析,再结合 PSCF 方法等来判断确定污染物的潜在 来源,已经成为了研究某个区域大气污染输送特征及潜在源区的常用方法[10-11].国内外学者利用此方 法展开了许多研究,如高晋徽等利用后向轨迹模式分析了 O3、NO2 和 SO2 的区域传输对南京北郊地区 污染的影响[12].

洪泽湖,是中国第四大淡水湖,位于江苏省西部淮河下游,苏北平原中部西侧,淮安、宿迁两市境内.在正常水位12.5 m时,水面面积为1597 km²,平均水深1.9 m,最大水深4.5 m,湖底浅平,高出洪泽湖大堤以东地区3—5 m,由此称之为"悬湖".辽阔的湖面形成的局地气候,如湖陆风环流等,将会显著影响周边城市的空气质量.淮安市洪泽区(东经118°28'-119°9'、北纬33°02'-34°24'间)位于洪泽湖东侧(如图1所示),主要工业格局为盐化新材料、机械制造、现代纺织以及电子信息等,年产值在2000万以上的规上企业约185家,其中盐化新材料约55户,为区内第一大产业,产品主要以元明粉、工业盐、纯碱、硝酸、合成氨、三氯氰胺、医药中间体等,其产值约占区内总产值的40%.独特的地理环境以及较大的盐化工业比重将会对本地的空气污染产生何种效应值得探究.



图 1 淮安市洪泽区地理位置以及监测站示意图 Fig.1 Huai 'an Hongze district geographical location and monitoring sites schematic diagram

本研究基于 2019 年 12 月至 2020 年 11 月我国生态环境部空气质量自动监测站的 PM_{2.5}、O₃数据、2020 年多次洪泽区可挥发性有机物(VOCs)监测以及 2020 年 12 月洪泽区在线源解析数据,结合 Hysplit 后向轨迹聚类和 PSCF 的方法,洪泽湖东侧的洪泽区大气污染的时空变化特征以及 PM_{2.5} 的潜势来源区以及行业来源.此外,还对比了洪泽区不同离湖区距离下空气质量的特征.该结果对洪泽湖东侧凹地的空气污染防治具有重要的指导意义,也将使我们更加深入地认识湖陆交接区以及湖畔凹地空 气质量特征.

1 数据来源及研究方法 (Data sources and research methods)

1.1 数据来源

PM_{2.5}和O₃的浓度数据来自于我国生态环境部空气质量自动监测站的小时监测数据,时间区间为2019年12月1日至2021年11月30日.其中,江苏省13个城市空气质量自动监测数据的平均值作为江苏省的整体状况,淮安市5个城市空气质量自动监测数据的平均值代表淮安市的PM_{2.5}及O₃水平.淮安市洪泽区内有两个监测站点,一个为洪泽水利局站,位于洪泽湖畔,距离湖区东侧约10m,属于省控点;另一个为新华书店站,位于洪泽城区中心,2020年1月设为国控点.为保证数据的可信度,本研究选取的起始时段为新华书店站设为国控点前1个月,即2019年12月.

GDAS 数据来自 NCEP(美国国家环境预报中心)(https://ready.arl.noaa.gov/archives.php)的全球资料同化系统 2019—2020 年数据,时间分辨率为一天 4 次,即世界标准时间 00、06、12 和 18,空间分辨率为 1°×1°,垂直方向分为 23 层,气象要素变量包括温度、气压、相对湿度、地面降水、纬向风速、经向风速等. GDAS 数据主要用于驱动 Hysplit 模型进行轨迹计算.

人为排放源数据来自 MEIC(中国多尺度排放清单模型),由清华大学自 2010 年起开发并维护,该 模型覆盖了中国大陆地区 700 多种人为排放源,包括 10 种主要大气污染物和二氧化碳.本研究采用 2018 年开发完成的 v1.3 版本,2017 年 PM_{2.5} 的人为排放源数据^[13-14]. MEIC 排放清单结合轨迹计算结 果用于潜在源区的确定.

2020年7月、9月以及11月共开展9次的高时空分辨率VOCs移动监测,监测设备为SPIMS 2000,其目的为获取洪泽区VOCs空间分布特征以及主要组分;2020年12月17日至2020年12月 24日,在新华书店站附近采用在线单颗粒气溶胶质谱仪(SPAMS 05系列)进行高精度连续观测,并进 行在线源解析,时间精度为小时分辨率.

学

1.2 后向轨迹及聚类分析法

后向轨迹模式以某一位置为基点,通过气象参数等计算示踪粒子的空间位移,从而得出气团到达 该位置的轨迹,同时计算气团沿途经过的污染源,直到选定位置^[15].本文基于 HYSPLIT(Hybrid Singleparticle Lagrangian Integrated Trajectory model)混合单粒子拉格朗日综合轨迹模式,该模式由美国国家 海洋和大气管理局 NOAA(National Oceanicand Atmospheric Administration)和空气资源实验室 ARL(Air Resources Laborotory)开发^[16],该模式可以模拟气团扩散轨迹,分析污染物来源和传输路径等.本研究中 模拟时段选取 2020 年 1 月、4 月、7 月和 10 月 4 个月份作为 4 个季节的代表月份,分析这 4 个月份的 24 小时后向轨迹,轨迹模拟起始高度为 500 m. 后向轨迹聚类分析法,又名簇分析法^[17],根据气团的移 动速度和方向对大量轨迹进行分组,得到不同的轨迹输送组.本文使用嵌套有 TrajStat 的 Meteoinfo 软 件对前述的后向轨迹利用 Euclidean Distance 算法进行聚类分析.

1.3 PSCF 方法

潜在污染源贡献函数 PSCF(Potential Source Contribution Function)是基于条件概率函数发展而来的一种判断污染潜在源区的方法^[18-19],本文将指定区域划分成 0.1°×0.1°的网格,在不考虑污染源的情况下,将《环境空气质量标准》(GB3095—2012)PM_{2.5}的 24 h 平均一级标准限值 35 μg·m⁻³ 作为条件阈值^[20], PSCF 值为受体点超过规定阈值时落在该网格点内的轨迹数(*m_{ij}*)与落在该网格点内的轨迹总数(*n_{ij}*)的比值,即

$$PSCF = \frac{m_{ij}}{n_{ij}} \tag{1}$$

某网格点的 PSCF 值越大,表明受体点的浓度超过规定浓度比例越多,故该网格点对受体点的污染潜在贡献较高^[21]. PSCF 是一种条件概率, PSCF 的误差会随着网格与采样点的距离增加而增加,当 *n_{ii}*较小时,会有很大的不确定性,因此引入权重函数 *W*(*n_{ii}*) 来减少不确定性^[22],计算 WPSCF.

$$WPSCF = W_{ij} \times \frac{m_{ij}}{n_{ij}}$$

$$W_{ij} = \begin{cases} 1.00, n_{ij} > 80 \\ 0.70, 20 < n_{ij} \le 80 \\ 0.42, 10 < n_{ij} \le 20 \\ 0.05, n_{ij} \le 10 \end{cases}$$
(2)

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 淮安市洪泽区 PM2.5 及 O3 的时空变化特征

江苏省、淮安市及洪泽地区 3 个不同区域范围内 PM_{2.5} 质量浓度及 O₃ 日最大 8 h 滑动平均 (MDA8-O₃) 浓度逐月变化, 如图 2 所示.



由图 2(a) 可以看出, 洪泽地区 PM_{2.5} 浓度呈现很明显的单峰分布, 冬季的 PM_{2.5} 的浓度较高, 在夏季 PM_{2.5} 浓度较低, 峰值出现在 1 月份, 达 74 μg·m⁻³, 谷值出现在 7 月份, 约 19 μg·m⁻³, 该变化特征主要 与冬季静稳天以及夏季有利的扩散条件、强降水有关. 洪泽地区 PM_{2.5} 浓度与江苏省和淮安市区域平 均 PM_{2.5} 浓度月变化趋势类似, 但比江苏省和淮安市区域平均值低, 这说明在江苏省整个区域以及淮安市范围内, 洪泽区的细颗粒物污染相对较轻. 由图 2(b) 可以看出, O₃ 的变化趋势与 PM_{2.5} 趋势不同, 呈双峰分布, 分别于 5 月和 9 月出现峰值, 其中 5 月最高, 达 150 μg·m⁻³, 冬季 O₃ 浓度最低, 约 65 μg·m⁻³, 其中冬季低值主要与弱的光化学过程有关, 夏季谷值可能与降水等对 O₃ 前体物的清除等作用有关. 洪泽地区与江苏省及淮安市的 O₃ 浓度月变化趋势大致相同, 均呈现双峰型分布, 但相比于江苏省和淮安市区域平均 O₃ 浓度偏高, O₃ 污染相对较重.

图 3 为四季江苏省、淮安市及洪泽区域平均的 PM_{2.5} 浓度日变化. 早上 8 时开始,由于太阳辐射增强,大气湍流开始发展,边界层高度升高,大气扩散强度增加,使得 PM_{2.5} 浓度开始下降,在 15 时达到谷值,随后 PM_{2.5} 浓度逐渐升高在次日早上达到峰值. 四季中,冬季早晨 PM_{2.5} 峰值出现时间晚于其余季节,约在 9 时, PM_{2.5} 约 70 μg·m⁻³,随后降低至下午 16 时的 50 μg·m⁻³;春秋季 PM_{2.5} 低谷范围较冬季宽;夏季 PM_{2.5} 日变特征不明显且浓度值较低,维持在 20—30 μg·m⁻³. 洪泽地区 PM_{2.5} 浓度相比于江苏省和淮安市区域平均值偏低,四季洪泽地区 PM_{2.5} 浓度日变化相比于江苏省及淮安市平均变化特征更加平缓.



Fig.3 Daily variation of PM_{2.5} concentration in different regions in winter(a), spring(b), summer(c) and autumn(d)

图 4 为 4 个季节江苏省、淮安市及洪泽地区各区域平均的 O₃ 浓度日变化. 从图 4 中可以看出,与 PM_{2.5} 浓度日变化特征不同, O₃ 浓度的日变化呈显著的单峰型分布,约在 15 时出现峰值,春夏秋三季 洪泽地区日 O₃ 浓度最低值出现在早上的 7 时,而冬季 O₃ 浓度最低值出现在 8 时,随后由于太阳辐射 的增强使得光化学反应剧烈, O₃ 浓度逐渐升高^[23],于 15 时出现峰值,然后开始下降直到次日早上,对 比看来春夏季 O₃ 浓度更高,峰值时 O₃ 浓度值可达 130 μg·m⁻³. 洪泽地区的日变化趋势与江苏省和淮 安市区域日变化趋势相似,但峰值时刻,洪泽地区 O₃ 更高,这说明相比于淮安甚至江苏省其他地区,洪 泽大气环境可能更有利于 O₃ 的光化学形成及累积.

洪泽区内有两个空气质量自动站,如图 1 所示,一个是位于区中心位置的新华书店站,一个是位于 洪泽湖畔的水利局站,尽管两站相距仅 3 km,但 PM_{2.5} 及 O₃ 浓度存在较明显的差异,如图 5 所示.新华 书店站 PM_{2.5} 浓度高于水利局站,特别是在冬季,两站差异最大,其中 2 月新华书店站 PM_{2.5} 浓度高出 水利局站 10 μg·m⁻³;夏季两站差异较小,接近于零.结合洪泽区工业区位置以及不同季节盛行风向可 以判断出,新华书店站正北方为大范围工业园区,区内有盐化企业以及热电厂等高温生产线以及大型 烟囱排口,高温以及高浓度一次污染物排放在冬季盛行的北风影响下很可能导致下风向的新华书店站 细颗粒物浓度升高;水利局站位于洪泽湖畔,上风向多为湖区,清洁的湖风不仅有利于局地污染物的扩 散,还会输送清洁的湖面气团,最终使得水利局站 PM_{2.5} 较低.



Fig.4 Daily variation of O₃ concentration in different regions in winter(a), spring(b), summer(c) and autumn(d)



图 5 淮安市洪泽区水利局站和新华书店站 PM_{2.5}及 O₃浓度对比 (a, b) 以及两站浓度差值 (c, d) 图, 其中两站差值为 水利局站 PM_{2.5}及 O₃浓度减去新华书店站的浓度

Fig.5 Comparison of PM_{2.5} and O₃ concentrations between Xinhua site and Shuili site in Hongze District, Huai'an City (a, b) and the difference of concentrations between the two sites (c, d)

而在夏季,多盛行偏南风,洪泽区南侧多为农田,污染排放量较少,两站差异较小.两站 O₃的差异 与 PM_{2.5} 完全相反,水利局站 O₃ 浓度全年均高于新华书店站,特别是 2—3 月份,水利局站高出新华书 店站约 20 μg·m⁻³,夏季平均约高出 10 μg·m⁻³;水利局站 O₃ 浓度高,可能存在如下原因:两站均处于城 区,属于 VOCs 控制区,水利局站 NO_x 低于新华书店站,根据 EKMA 曲线,NO_x 的降低,可能导致 O₃ 浓 度的升高;水利局站更靠近水体,湖面的镜反射,可能会加强观测点短波辐射强度,进而有利于 O₃ 的光 化学生成过程;下垫面为水体的时候,O₃ 干沉降弱,不利于 O₃ 的干沉降清除,因此,靠近水体的水利局 站,O₃ 沉降量比新华书店站低;两站温度及湿度的微弱差异也可能导致两站 O₃ 的差异. 湖陆风效应以 及细颗粒物表面的非均相反应对两站 PM_{2.5} 以及 O₃ 的差异也可能势致两站 O₃ 的差异. 湖陆风效应以 暖源,使得对流层会有更强烈的垂直交换,通常 PM_{2.5} 主要集中于边界层内,随着高度增加 PM_{2.5} 减少, 冬季湖畔水利局站周边强烈的垂直交换会使得 PM_{2.5} 浓度下降; 而 O₃则相反, 上层大气中存在着更高浓度的 O₃, 因此强烈的垂直交换会使得上层高 O₃ 被带至近地面, 并通过湖陆风输送到湖畔站. 或者减少辐射, 新华书店站 PM_{2.5} 浓度高于湖畔站, 细颗粒物的散射消光作用会减少辐射, 进而减弱 O₃ 的生成过程; 细颗粒物表面也会发生非均相化学反应, 减少臭氧前体物, 从而导致新华书店站 O₃ 的生成和浓度低于湖畔站. 总体来说, O₃ 为二次污染物并且 PM_{2.5} 与 O₃ 之间也存在复杂的相关关系, 两站 PM_{2.5} 和 O₃ 浓度的差异以及变化还需要大量的观测与模拟来揭示其中的机理, 在未来的研究中加强湖路交界处空气质量的监测以量化湖陆风效应以及非均相反应的影响.

2.2 PM_{2.5} 潜在源分析

由上文可以看出冬季 PM_{2.5} 浓度超标更严重且污染事件更为集中,故结合 PM_{2.5} 的浓度数据并利用 Meteoinfo 软件对洪泽地区冬季 PM_{2.5} 的后向轨迹进行聚类分析和 PSCF 分析,为方便对比,还列出了其他季节的情况,结果如图 6 所示.轨迹的方向和路径表示气团的移动路径,图中标号为不同类别轨迹的轨迹标号,轨迹末尾的百分数字为该轨迹占所有轨迹的百分比,括号内数字为该轨迹所携带 PM_{2.5} 的平均浓度.可以通过轨迹的长度判断气流移动的快慢,轨迹越长则移动速度越快.

不同季节的轨迹聚类结果和 PSCF 结果不同, 对于冬季而言, 聚类结果如图 6(a), 其中轨迹 4 所占 比例最高, 占总轨迹数的 22.58%, 且轨迹的 PM_{2.5} 平均浓度最高, 为 122 μg·m⁻³, 该轨迹来自西南方向, 途经安徽北部和江苏西北部, 该轨迹气团移动速度较慢; 其次, 是来自北部途经山东和江苏北部的轨 迹 6, 该轨迹气团移动速度较快, 占总轨迹数的 17.20%, 轨迹的 PM_{2.5} 平均浓度为 87 μg·m⁻³; 其他方向 的轨迹 PM_{2.5} 平均浓度较低. 洪泽区冬季 WPSCF 结果如图 6(b)所示, 冬季洪泽区 WPSCF 高值区域 (>0.5)分布较广且分布较为集中, 主要分布在山东南部、江苏北部及安徽东北部, 其中在安徽北部、东 北部 WPSCF 值甚至>0.8, 表明该区域存在强污染排放源, 是影响洪泽区 PM_{2.5} 的可能潜在源区. 结合 图 6(a)和图 6(b), 安徽北部、东北部为洪泽区冬季的可能潜在源区; 其次山东南部、江苏北部对洪泽 区的 PM_{2.5} 浓度有一定贡献.

对于春季和秋季,聚类结果如图 6(c)和图 6(g)所示,从图中可以看出春季和秋季各个轨迹的 PM_{2.5}平均浓度较低,均未超过 50 µg·m⁻³,春季来自北部的气团占比最高,秋季来自东北方向的气团占 比较高.对于春季,轨迹 3 所占比例最高,为 27.92%,该轨迹来自东部,途经黄海、江苏东南部,移动速 度较快;对于秋季,来自东北部的轨迹 1 和轨迹 4 占轨迹总数比例较高.洪泽区春季 WPSCF 结果如 图 6(d)所示,春季洪泽区 WPSCF 高值区域(>0.5)主要分布在江苏省西南部、江苏西北部及安徽南部, 表明该区域影响洪泽区 PM_{2.5} 的可能潜在源区.洪泽区秋季 WPSCF 结果如图 6(h)所示,可以看出在春 季洪泽区 WPSCF 高值区域(>0.5)分布较集中,主要分布在江苏省东北部及江苏东南部,表明该区域影 响洪泽区 PM_{2.5} 的可能潜在源区.结合图 6(c)和图 6(d),江苏西北部为洪泽区春季的可能潜在源区;其 次春季安徽南部、江苏西南部对洪泽区的 PM_{2.5}浓度有一定贡献.结合图 6(g)和图 6(h),江苏东北部 为洪泽区冬季的可能潜在源区;其次秋季江苏西南部对洪泽区的 PM_{2.5}浓度有一定贡献.

对于夏季,聚类结果如图 6(e),4 个轨迹的 PM_{2.5} 平均浓度较低,最高的平均轨迹浓度只有 20 μg·m⁻³. 轨迹 1 所占比例最高,为 49.06%,该轨迹来自东南偏东方向,途经黄海、江苏东部,移动速度最慢,轨迹 的 PM_{2.5} 平均浓度为 20 μg·m⁻³. 洪泽区夏季 WPSCF 结果如图 6(f)所示,可以看出在春季洪泽区 WPSCF 值总体较低(<0.3),无明显潜在源区.结合图 6(e)和图 6(f),洪泽区夏季气团主要来自东部(聚 类 1),但该轨迹 PM_{2.5} 平均浓度较低且 WPSCF 值偏低,对洪泽区的 PM_{2.5} 浓度贡献不大. 洪泽夏季总 体 WPSCF 值偏低,该地区夏季 PM_{2.5} 的主要来源可能为本地的排放.

洪泽区 PM_{2.5} 潜在源区随季节的变化而有所不同.聚类结果表明,洪泽区四季主要以东部及北部的气流为主,包括长距离输送和短距离输送,冬季的污染气流较多,而春夏秋 3 个季节的气团主要为清洁气团. PSCF 结果表明,冬季 WPSCF 值较高,且高值区域分布较为广泛和集中,夏季 WPSCF 无明显高值区.对于冬季而言,安徽北部为主要的污染源区,其次山东南部和江苏北部对洪泽区污染有一定贡献,对于春秋季节江苏东南部均为洪泽区的潜在源区,夏季区域传输对洪泽区的影响不大.



图 6 冬季轨迹聚类结果(a)、冬季 WPSCF 结果(b)、春季轨迹聚类结果(c)、春季 WPSCF 结果(d)、夏季轨迹聚类结 果(e)、夏季 WPSCF 结果(f)、秋季轨迹聚类结果(g)、秋季 WPSCF(h)

Fig.6 Cluster-mean back trajectories in winter(a), weighted potential source contribution function(WPSCF)maps of PM_{2.5} in winter(b), Cluster-mean back trajectories in spring(c), WPSCF maps of PM_{2.5} in spring(d), Cluster-mean back trajectories in summer(e), WPSCF maps of PM_{2.5} in summer(f), Cluster-mean back trajectories in autumn (g), WPSCF maps of PM_{2.5} in autumn (h)

2.3 PM_{2.5}在线源解析

基于 2020 年 12 月 17 日至 2020 年 12 月 24 日期间在线单颗粒气溶胶质谱仪(SPAMS 05 系列)连 续采样数据,参照《大气颗粒物来源解析技术指南》,结合当地的能源结构,按照环境管理需求对细颗 粒物排放源进行分类,将洪泽区细颗粒物污染来源归结 8 大类,分别为餐饮源、扬尘源、生物质燃烧 源、机动车尾气源、燃煤源、工业工艺源、二次无机源、其它.扬尘包含建筑扬尘、道路扬尘、土壤尘等 颗粒;生物质燃烧源主要是农作物秸秆、野草等露天焚烧及生物燃料锅炉排放的颗粒;机动车尾气源 包含了柴油车、汽油车等交通工具排放的颗粒;燃煤源包含了燃煤电厂、锅炉、散煤燃烧、煤工艺制造 过程等排放的颗粒;工业工艺源包含了化工、金属冶炼等工艺过程排放的颗粒;二次无机源主要指从 单颗粒谱图来看,除钾离子外,只含有二次无机组分(硫酸盐、硝酸盐等)的颗粒,在一定程度上可以反 映大气二次反应的强度.此类颗粒物中的硫酸盐、硝酸盐等二次组分主要是在高湿条件下由大气中的 二氧化硫、二氧化氮等气态污染物转化而成.未包含在上述源类以及未被识别的颗粒物归于其它源. 细颗粒物污染物来源解析结果表明,监测期间细颗粒物污染来源构成为:二次无机源(38.8%)、机动车 尾气源(20.3%)、扬尘源(15.2%)、工业工艺源(10.8%)、燃煤源(6.5%)、其它(3.6%)、生物质燃烧源 (2.5%)、餐饮源(2.3%).

12月17日至12月18日出现污染过程,如图7所示,PM_{2.5}日均浓度最大为129 μg·m⁻³,PM_{2.5}上升 过程主要受二次无机源的影响,同时,该时段机动车尾气源、扬尘源和工业工艺源占比较高,也是主要 污染来源.12月21日至12月24日出现较为严重的污染过程,PM_{2.5}日均浓度最大为153 μg·m⁻³, PM_{2.5}上升过程主要受二次无机源、机动车尾气源、扬尘源、工业工艺源以及燃煤源的影响.



图 7 2020 年 12 月观测期间细颗粒物来源及数浓度浓度小时变化 (a) 以及不同污染程度颗粒物来源对比 (b)
 Fig.7 The source of fine particulate matter and hourly variation of its number concentration and comparison of fine particulate matter sources under different pollution levels during the observation period in December 2020

根据 12 月观测期间 PM_{2.5}的浓度划分为 5 个等级,统计出各等级内不同来源所占比重的差异,如表 1 所示.从优到轻度污染等级, PM_{2.5}质量浓度均值从 32 μ g·m⁻³上升至 100 μ g·m⁻³, 期间机动车尾气源占比从 16.0% 上升至 22.7%, 颗粒物数浓度从 1629 个·h⁻¹上升至 5877 个·h⁻¹; 燃煤源占比从 5.5% 上升至 6.2%, 颗粒物数浓度从 566 个·h⁻¹上升至 1611 个·h⁻¹. 从轻度污染等级到中度污染等级, PM_{2.5} 质量浓度均值从 100 μ g·m⁻³上升至 132 μ g·m⁻³, 期间二次无机源占比从 35.8% 上升至 44.3%, 颗粒物数浓度从 9266 个·h⁻¹上升至 14713 个·h⁻¹; 工业工艺源占比从 9.9%上升至 10.9%, 颗粒物数浓度从 2567 个·h⁻¹上升至 3626 个·h⁻¹.从中度污染等级到重度污染等级, PM_{2.5} 质量浓度均值从 132 μ g·m⁻³上升至 176 μ g·m⁻³, 期间机动车尾气源占比从 17.3% 上升至 27.9%, 颗粒物数浓度从 5758 个·h⁻¹上升至 11497 个·h⁻¹; 燃煤源占比从 5.9% 上升至 7.7%, 颗粒物数浓度从 1972 个·h⁻¹上升至 3181 个·h⁻¹.总体来 看, 冬季监测期间 PM_{2.5} 的上升主要受二次无机源、机动车尾气源、工业工艺源、燃煤源增多的影响.

表1 不同污染程度各污染源贡献率以及对应的 PM2.5 浓度

Table 1	Contribution rates of	pollution sources and PM ₂	5 concentration at d	ifferent pollution levels
---------	-----------------------	---------------------------------------	----------------------	---------------------------

组分	优	良	轻度污染	中度污染	重度污染
Component	Excellent	Good	Light	Moderately	Severe
二次无机源(Secondary inorganic source)	36.9%	31.7%	35.8%	44.3%	36.4%

					续表 1
组分	优	良	轻度污染	中度污染	重度污染
Component	Excellent	Good	Light	Moderately	Severe
扬尘源(Dust)	19.5%	23.6%	16.4%	12.8%	12.4%
机动车尾气源(Vehicle exhaust)	16.0%	14.3%	22.7%	17.3%	27.9%
工业工艺源(Industrial process)	12.9%	14.3%	9.9%	10.9%	8.6%
燃煤源(Fire coal)	5.5%	6.7%	6.2%	5.9%	7.7%
其它(Rest)	4.6%	3.7%	3.8%	4.1%	2.6%
餐饮源(Catering)	2.4%	3.6%	2.6%	2.1%	1.7%
生物质燃烧源(Biomass burning)	2.2%	2.1%	2.5%	2.5%	2.6%
PM _{2.5}	32 µg · m⁻³	61 µg·m ⁻³	100 µg⋅m ⁻³	132 µg⋅m ⁻³	176 µg⋅m ⁻³

2.4 VOCs 空间分布特征

基于 2020 年 7 月、9 月以及 11 月开展的 9 次高时空分辨率 VOCs 移动监测, 得到洪泽工业园区多 条街道 VOCs 空间分布特征以及主要组分. 如图 8(a)所示街道范围内有 3 处总 VOCs 高值区, 第 1 处 为加油站周边,第2处为某化工企业周边,第3处为某纸业公司,其峰值浓度分别为16872、15849、 11070 μg·m⁻³. 第 2 处主要物质为: 氯苯(7248 μg·m⁻³), 甲苯(5187 μg·m⁻³), 二甲苯(1224 μg·m⁻³), 苯胺 (785 μg·m⁻³), 二氯苯(572 μg·m⁻³); 第 3 处主要物质为: 戊烯(3202 μg·m⁻³), 丁烯(1996 μg·m⁻³), 己烯 (1224 µg·m⁻³), 甲苯(1197 µg·m⁻³), 甲基环己烷(945 µg·m⁻³). 经实地考察以上物质主要为企业生产过 程中无组织释放的一些化学成分以及涂料.图 8(b)所示街道中有一处总 VOCs 高值区,峰值为 2361 μg·m⁻³, 周边 TVOCs 浓度约 50 μg·m⁻³, 主要物质为: 三甲苯(992 μg·m⁻³), 二乙基苯(401 μg·m⁻³), 该区域的峰值属于偶发事件,后期移动观测均未发现该高值区.图8(c)所示街道中显示一处 VOCs 高 值区, 其峰值浓度为 3701 μg·m⁻³, 主要物质为: 二甲苯(2875 μg·m⁻³), 丁烯(366 μg·m⁻³), 后经证实, 该高 值区为某木业厂区,木制品油漆无组织排放导致高浓度的 VOCs. 图 8(d)所示街道中总 VOCs 浓度均 处于 200 µg·m⁻³ 以下,没有峰值区.经以上观测可知,工业区内存在多处总 VOCs 高浓度区,其中以含 苯类、烯烃类物质为主.根据 VOCs 移动监测结果进行类源划分可得,洪泽工业园区 VOCs 主要以芳香 烃占比最高,如表2所示,占比58%;其次为烷烃;烯烃、卤代烃、含氧含氮烃、有机硫相对占比较小. 此外,还对淮安市洪泽新华书店周边 VOCs 进行了移动监测,其结果表明 VOCs 也主要为芳香烃,占比 39%, 其次为烷烃、卤代烃及含氧含氮烃, 分别占比 20%、17%及 16%; 其烯烃、有机硫相对占比较小. 从各类物质占比来看,国控点新华书店站 VOCs 的主要来源为周边工业区的排放.



图 8 洪泽区工业园区各街道 VOCs 浓度分布 Fig.8 VOCs concentration distribution in each street of Hongze Industrial Zone

Table 2 VOCs classfy source ratio of Hongze Industrial Zone and Xinhua Bookstore site					
VOCs源	工业园区/%	新华书店站/%			
VOCs sources	Hongze industrial zone	Xinhua bookstore site			
芳香烃(Arene)	58	39			
含氧含氮烃(Oxygen-nitrogenous hydrocarbons)	13	16			
烷烃(Alkane)	16	20			
卤代烃(Halohydrocarbon)	8	17			
有机硫(Organic sulfur)	2	4			
烯烃(Olefin)	3	5			

表 2 洪泽区工业园区以及新华书店站周边 VOCs 各类源占比

3 结论 (Conclusion)

(1) 基于 2019 年 12 月—2020 年 11 月 PM_{2.5} 和 O₃ 的监测结果,本研究表明洪泽区 O₃ 污染主要集中在春夏秋季,而 PM_{2.5} 污染主要集中在冬季,O₃ 和 PM_{2.5} 均呈现出明显的日变化特征, PM_{2.5} 在白天 8 时达峰值, 15 时达谷值;O₃ 浓度在早上 8 时达谷值, 15 时达到峰值.洪泽区 PM_{2.5} 浓度优于淮安市平均以及江苏省平均值,而 O₃ 劣于淮安市平均以及江苏省平均值.洪泽区内两测站 PM_{2.5} 及 O₃ 对比结 果表明, 湖畔 PM_{2.5} 浓度较低而 O₃ 浓度较高,两站差异在冬季,特别是 2—3 月差异最大,这很可能与工业园区—次排放、氮氧化物(NO_x)的滴定作用以及湖陆风效应等有关.

(2) 洪泽区的 PM_{2.5} 后向轨迹聚类结果表明, 春夏秋 3 个季节的气团携带的污染物浓度较低, 江苏 东南部为春秋季节的主要污染物潜在源区, 夏季区域传输对该地区的污染物浓度影响不大; 对于冬季, 安徽北部为主要的污染源区, 山东南部及江苏北部对该地区污染有一定影响. 冬季, 途经安徽北部、安 徽东北、江苏西北部的轨迹占比最高, 达 22.58%, 且轨迹所携带的污染物浓度最高达 122 μg·m⁻³. 潜在 源分析结果显示安徽北部、江苏北部及山东南部为主要高浓度潜在源区.

(3) 洪泽区内冬季细颗粒物在线源解析表明, 监测期间 PM_{2.5} 平均来源构成为:二次无机源 (38.8%)、机动车尾气源(20.3%)、扬尘源(15.2%)、工业工艺源(10.8%)、燃煤源(6.5%)、其它(3.6%)、 生物质燃烧源(2.5%)、餐饮源(2.3%). 监测期间 PM_{2.5} 的上升主要受二次无机源、机动车尾气源、工业 工艺源、燃煤源增多的影响; 作为 O₃ 重要前体物的可挥发性有机物(VOCs), 其监测结果表明, 洪泽工 业园区 VOCs 主要以芳香烃占比最高, 为 58%; 新华书店站 VOCs 也主要为芳香烃, 占比 39%, 其次为 烷烃、卤代烃及含氧含氮烃, 分别占比 20%、17% 及 16%.

综上所述, 就本地污染物特点来说, 冬季污染物主要为 PM_{2.5}, 其他季节主要为 O₃, VOCs 为 O₃ 的 重要前体物之一, 特别是城市地区; 二次无机源(硫酸盐、硝酸盐等颗粒)以及机动车尾气为区内细颗 粒物重要来源, 芳香烃为区内 VOCs 主要来源, 加强区内涉及该类污染物的化工企业的管理以及相关 交通管制将很可能有效改善区内空气质量.

致谢

本论文的数值计算得到了南京信息工程大学高性能计算中心的计算支持和帮助.感谢淮安市洪泽 生态环境局提供的数据支持

参考文献 (References)

[1] 史旭荣, 逯世泽, 易爱华, 等. 全国2018—2019年秋冬季气象条件变化对PM_{2.5}影响研究 [J]. 中国环境科学, 2020, 40(7): 2785-2793.

SHI X R, LU S Z, YI A H, et al. Impact of meteorological conditions on PM_{2.5} in autumn and winter of 2018-2019 in key areasFull text replacement [J]. China Environmental Science, 2020, 40(7): 2785-2793(in Chinese).

- [2] WANG P, CAO J J, TIE X X, et al. Impact of meteorological parameters and gaseous pollutants on PM_{2.5} and PM₁₀ mass concentrations during 2010 in xi'an, China [J]. Aerosol and Air Quality Research, 2015, 15(5): 1844-1854.
- [3] 黄小刚, 邵天杰, 赵景波, 等. 气象因素和前体物对中国东部O3浓度分布的影响 [J]. 中国环境科学, 2019, 39(6): 2273-2282.

HUANG X G, SHAO T J, ZHAO J B, et al. Impact of meteorological factors and precursors on spatial distribution of ozone concentration in Eastern China [J]. China Environmental Science, 2019, 39(6): 2273-2282(in Chinese).

- [4] ZHANG Y L, CAO F. Fine particulate matter (PM_{2.5}) in China at a city level [J]. Scientific Reports, 2015, 5: 14884.
- [5] 程麟钧, 王帅, 宫正宇, 等. 中国臭氧浓度的时空变化特征及分区 [J]. 中国环境科学, 2017, 37(11): 4003-4012.
 CHENG L J, WANG S, GONG Z Y, et al. Spatial and seasonal variation and regionalization of ozone concentrations in China [J].
 China Environmental Science, 2017, 37(11): 4003-4012(in Chinese).
- [6] 李名升,任晓霞,于洋,等.中国大陆城市PM_{2.5}污染时空分布规律[J].中国环境科学, 2016, 36(3): 641-650.
 LI M S, REN X X, YU Y, et al. Spatiotemporal pattern of ground-level fine particulate matter(PM_{2.5}) pollution in China's mainland [J].
 China Environmental Science, 2016, 36(3): 641-650(in Chinese).
- [7] 周明卫,康平,汪可可,等. 2016—2018年中国城市臭氧浓度时空聚集变化规律 [J].中国环境科学, 2020, 40(5): 1963-1974. ZHOU M W, KANG P, WANG K K, et al. The spatio-temporal aggregation pattern of ozone concentration in China from 2016 to 2018 [J]. China Environmental Science, 2020, 40(5): 1963-1974(in Chinese).
- [8] 张亮, 朱彬, 高晋徽, 等. 长江三角洲夏季一次典型臭氧污染过程的模拟 [J]. 环境科学, 2015, 36(11): 3981-3988. ZHANG L, ZHU B, GAO J H, et al. Modeling study of A typical summer ozone pollution event over Yangtze River Delta [J]. Environmental Science, 2015, 36(11): 3981-3988(in Chinese).
- [9] 余钟奇, 瞿元昊, 周广强, 等. 2018年秋冬季长江三角洲区域PM_{2.5}污染来源数值研究 [J]. 中国环境科学, 2020, 40(10): 4237-4246.

YU Z Q, QU Y H, ZHOU G Q, et al. Numerical simulations of $PM_{2,5}$ pollution source in the Yangtze River Delta region in fall and winter in 2018 [J]. China Environmental Science, 2020, 40(10): 4237-4246(in Chinese).

- [10] 刘慧,夏敦胜,陈红,等. 2017年兰州市大气污染物输送来源及传输特征模拟分析 [J].环境科学研究, 2019, 32(6): 993-1000.
 LIU H, XIA D S, CHEN H, et al. Simulation analysis of sources and transmission characteristics of air pollutants in Lanzhou City in 2017 [J]. Research of Environmental Sciences, 2019, 32(6): 993-1000(in Chinese).
- [11] 武高峰, 王丽丽, 董洁, 等. 国庆前后北京城区PM_{2.5}组分污染及来源特征分析 [J]. 环境化学, 2021, 40(12): 3721-3732.
 WU G F, WANG L L, DONG J, et al. Pollution and source characteristics of PM_{2.5} components in Beijing urban area around National Day [J]. Environmental Chemistry, 2021, 40(12): 3721-3732(in Chinese).
- [12] 高晋徽,朱彬,王东东,等.南京北郊O₃、NO₂和SO₂浓度变化及长/近距离输送的影响 [J].环境科学学报, 2012, 32(5):1149-1159.

GAO J H, ZHU B, WANG D D, et al. The variation of air pollutants and the impact of long-range transport in the northern suburb of Nanjing [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2012, 32(5): 1149-1159(in Chinese).

- [13] ZHENG B, TONG D, LI M, et al. Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, 18(19): 14095-14111.
- [14] 吴礼裕,何涛,王振.环太湖城市夏季臭氧的潜在影响分析 [J]. 污染防治技术, 2018(6): 61-65.
 WULY, HET, WANG Z. Analysis of the potential impact of the Taihu Lake on summer ozone of the surrounding cities [J]. Pollution Control Technology, 2018(6): 61-65(in Chinese).
- [15] DRAXLER R, STUNDER B, ROLPH G, et al. Hysplit4 User'S Guide [Z].
- [16] 沈学勇, 濯崇治, 许丽萍, 等. 利用轨迹模式研究重庆主城区冬季PM_{2.5}污染特征 [J]. 环境污染与防治, 2016, 38(3): 72-76. SHEN X Y, ZHAI C Z, XU L P, et al. Study on pollution characteristics of PM_{2.5} in Chongqing urban area in winter with backward trajectories [J]. Environmental Pollution & Control, 2016, 38(3): 72-76(in Chinese).
- [17] 王爱平,朱彬,银燕,等.黄山顶夏季气溶胶数浓度特征及其输送潜在源区 [J].中国环境科学,2014,34(4):852-861.
 WANG A P, ZHU B, YIN Y, et al. Aerosol number concentration properties and potential sources areas transporting to the top of mountain Huangshan in summer [J]. China Environmental Science, 2014, 34(4): 852-861(in Chinese).
- [18] 黄乾, 王海波. 南京北郊污染物来源及跨区域输送过程研究 [J]. 大气科学学报, 2019, 42(4): 531-541.
 HUANG Q, WANG H B. Sources and transport process of air pollutant in northern suburbs of Nanjing [J]. Transactions of Atmospheric Sciences, 2019, 42(4): 531-541(in Chinese).
- [19] 杨俊超, 陈志明, 支国瑞, 等. 百色市冬季PM_{2.5}传输路径及来源分析 [J]. 环境监测管理与技术, 2020, 32(1): 23-27. YANG J C, CHEN Z M, ZHI G R, et al. Transmission path and potential sources of PM_{2.5} during the winter in Baise [J]. The Administration and Technique of Environmental Monitoring, 2020, 32(1): 23-27(in Chinese).
- [20] 刘迎云,姜雨,宗梁,等.基于HYSPLIT模型的衡阳市大气PM_{2.5}潜在源分析 [J]. 南华大学学报(自然科学版), 2019, 33(6):
 12-17.
 LIU Y Y, JIANG Y, ZONG L, et al. Potential source analysis of PM_{2.5} based on HYSPLIT model in Hengyang [J]. Journal of

LIU Y Y, JIANG Y, ZONG L, et al. Potential source analysis of $PM_{2.5}$ based on HYSPL11 model in Hengyang [J]. Journal of University of South China (Science and Technology), 2019, 33(6): 12-17(in Chinese).

- [21] 姜雨,刘迎云,宗梁,等. 衡阳市冬季PM_{2.5}外来输送特征及潜在源分析 [J]. 环境工程, 2019, 37(7): 142-147.
 JIANG Y, LIU Y Y, ZONG L, et al. Analysis of characteristics and potential sources of pm_{2.5} external transportation in Hengyang in winter [J]. Environmental Engineering, 2019, 37(7): 142-147(in Chinese).
- [22] WANG Y Q, ZHANG X Y, ARIMOTO R. The contribution from distant dust sources to the atmospheric particulate matter loadings at Xi'an, China during spring [J]. Science of the Total Environment, 2006, 368(2/3): 875-883.
- [23] 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. LIU J, WU D, FAN S J, et al. Impacts of precursors and meteorological factors on ozone pollution in Pearl River Delta [J]. China Environmental Science, 2017, 37(3): 813-820(in Chinese).