席欣煜,许亦非,邓雯静,等.基于臭氧来源解析的局地精细化减排方案及效果评估 [J]. 中国环境科学, 2025,45(9):4786-4795.
Xi X Y, Xu Y F, Deng W J, et al. Localized fine-tuned emission reduction plan and effect evaluation based on ozone source apportionment [J]. China Environmental Science, 2025,45(9):4786-4795.

基于臭氧来源解析的局地精细化减排方案及效果评估

席欣煜[1,2],许亦非[3],邓雯静[2],黄渝瑄[2],沈 傲[2],刘一鸣[2],卢 骁[2],樊 琦[2],林泽健[1],卢 清[1*] (1.生态环境部华南环境科学研究所广东省水与大气污染防治重点实验室,广东 广州 510655；2.中山大学大气科学学院,广东 广州 510275；3.南京大学大气科学学院,江苏 南京 210023)

摘要：本研究以我国杭州湾某地区为例,对该地区人为源排放清单进行精细化处理并作为本地源更新至区域空气质量数值模型 WRF-CMAQ 中,同时采用 CMAQ 的源解析 ISAM 方法以及综合反应速率 IRR 方法定量计算分析了该地区典型月份臭氧污染的来源贡献.结果显示:该地区的臭氧污染主要来自区域外贡献,占比高达 73.3%,本地贡献占比为 26.7%,但在污染日本地贡献会上升至 35.6%.进一步对该地区不同行业的贡献占比进行解析,其中工业类排放源与交通类排放源分别占比 38.3%和 35.4%,是本地人为源排放生成臭氧的主要来源.基于臭氧来源解析结果,结合该地区的实际减排政策及减排潜力,对 40 个小类人为排放源进行精细化减排方案设计,并作为减排情景输入 CMAQ 模型中进行减排效果评估,结果显示:精细化减排方案对于该地区臭氧污染日中化学生成的臭氧具有较显著的削减效果,最大减少量可达 26.44μg/m^3,平均减少量为 3.5μg/m^3,平均减少浓度占该时段本地化学生成臭氧浓度的 7.1%.

关键词：臭氧(O_3)；WRF-CMAQ；来源解析；精细化减排方案
中图分类号：X511 **文献标识码**：A **文章编号**：1000-6923(2025)09-4786-10

Localized fine-tuned emission reduction plan and effect evaluation based on ozone source apportionment. XI Xin-yu[1,2], XU Yi-fei[3], DENG Wen-jing[2], HUANG Yu-xuan[2], SHEN Ao[2], LIU Yi-ming[2], LU Xiao[2], FAN Qi[2], LIN Ze-jian[1], LU Qing[1*] (1.Guangdong Provincial Key Laboratory of Water and Air Pollution Control, South China Institute of Environmental Sciences, Ministry of Ecology and Environment, Guangzhou 510655, China；2.School of Atmospheric Sciences, Sun Yat-senUniversity, Guangzhou 510275, China；3.School of Atmospheric Sciences, Nanjing University, Nanjing 210023, China). *China Environmental Science*, 2025,45(9)：4786~4795

Abstract：Taking a region in the Hangzhou Bay area of China as an example, this study refined the local anthropogenic emission inventory and incorporated it into the regional air quality model WRF-CMAQ. The source contributions to ozone pollution during a typical month were quantitatively analyzed using the Integrated Source Apportionment Method (ISAM) and the Integrated Reaction Rate (IRR) method within CMAQ. The results showed that ozone pollution in this area was mainly attributed to contributions from outside the region, accounting for 73.3%, while local contributions accounted for 26.7%. However, on pollution days, the local contribution was found to increase to 35.6%. Furthermore, the contributions of different local emission sectors were analyzed, and industrial and transportation emissions were identified as the major anthropogenic sources of local ozone formation, contributing 38.3% and 35.4%, respectively. Based on the source apportionment results and considering the region's actual control policies and reduction potential, a refined emission reduction strategy was designed for 40subcategories of anthropogenic sources. This strategy was implemented as an emission control scenario in the CMAQ model to assess its effectiveness. The results indicated that the refined reduction plan significantly reduced locally formed ozone on pollution days, with a maximum reduction of up to 26.44μg/m^3 and an average reduction of 3.5μg/m^3, representing 7.1% of the locally produced ozone concentration during the pollution period.

Key words：ozone (O_3)；WRF-CMAQ；source apportionment；fine-tuned emission reduction scheme

对流层臭氧(O_3)是由工业、交通等为活动及自然生物排放[1-3]的前体物进行光化学反应生成的二次污染物,且具有复杂的生成机制.臭氧污染多发生在人口密集的城市区域,存在损害人体健康[4],减少农作物产量[5-6],破坏生态系统等危害,亟需得到预防与治理.然而当前我国臭氧浓度日益增高,2023 年全国 339 个城市的环境空气质量监测数据显示:以臭氧为首要污染物的超标天数已经超过细颗粒物

收稿日期：2025-02-25
基金项目：中央级公益性科研院所基本科研业务专项(PM-zx703-202406-187);国家自然科学基金资助项目(42375182)
* 责任作者, 高级工程师, luqing@scies.org

($PM_{2.5}$),占总超标天数的 40.1%,$PM_{2.5}$ 为 35.5%[7].臭氧目前已成为我国的首要大气污染物.

前人研究表明 O_3 同氮氧化物(NO_x)及挥发性有机物(VOCs)等前体物之间存在复杂的非线性关系,反应涉及数千物种,前体物排放比例变化会导致臭氧浓度随之变化[8-10].通常短期臭氧浓度变化受气象因素影响[11],人为排放变化则对年际、年代际的长期臭氧浓度变化有着更显著的影响[12-13].中国大气臭氧污染防治蓝皮书(2020)也提到: “此前以颗粒物为主的减排措施而导致的污染源排放结构的变化可能是引起我国现阶段臭氧污染不降反升的重要原因”.目前我国的研究对臭氧污染机制已经具备大量的科学认知,但尚缺乏明确的具有可行性的实际防控策略,缺乏与精细化科学防控精密结合的相关研究,因此需要充分挖掘城市臭氧前体物的减排潜力、量化城市臭氧前体物减排对城市臭氧污染防控潜在的可能性,为城市减排政策的制定提供重要科学技术支撑.

区域多尺度空气质量模型 CMAQ 能综合考虑 NO_x 及 VOCs 等前体物对臭氧浓度的影响,并可通过设定不同减排清单,量化评估各类减排策略的成效.其集成的 ISAM 源解析方法,通过标记源排放实现对各前体物单一的追踪,有效降低来源追踪的不确定性,可直观量化区域传输与局地行业的贡献,因此被广泛应用于污染物来源研究中.已有研究显示,北京市臭氧中大于 52.6%来自区域外及边界传输,本地排放贡献约为 40%,同样不可忽视[14];在华南地区,韶关市污染期间的周边城市传输贡献甚至达到本地排放的 3.4 倍,凸显区域协同控制的重要性[15];此外,其它研究[16-17]也都表明本地生成与周边城市传输的贡献占比因排放及传输条件不同而有所差异,因此使用 ISAM 模块量化解析区域来源贡献对于明晰局地臭氧治理的重点减排区域具有重要意义.同时 ISAM 模块亦可有效解析局地臭氧的行业来源,例如耿雅娴等[18]对石家庄一次臭氧污染过程进行本地行业贡献率解析发现交通源(12.54%)贡献占比最大,其次为工业源(6.94%)、居民源(6.56%)、电力源(4.75%);类似的,在晋城市的研究中,工业和交通排放源被确定为 VOCs 与 NO_x 的主要来源[19].可见,CMAQ-ISAM 数值模型不仅有助于揭示臭氧生成与传输的过程机制,也为区域精细化治理和行业精准减排提供了科学依据.

现有研究从不同角度对研究区域的臭氧来源进行了较为详细的分析,但多数研究仅将行业来源划分为五类,精细化程度较低,限制了其在实际减排工作中的应用价值.本研究基于清华大学建立的中国多尺度排放清单 MEIC[20]2019 年人为排放数据同时结合重点研究区域内的本地人为源排放数据进行精细化处理.一方面,确保区域排放数据的一致性;另一方面,补充局地排放特征信息,细化行业分类,提高来源解析的精度,明确关键排放活动,为局地精细化减排方案的制定提供科学支撑.本研究中减排方案的设计首先结合地区各行业实际发展规划设定减排系数区间;其次基于行业来源解析的结果在减排系数区间内设置相应的减排系数.该方法综合考虑了不同行业排放量及减排潜力的差异性,明确了关键减排部门及减排系数,更精细地贴合实际减排过程,本研究成果对污染防控实际指导的可行性与可达性更强,与精细化防控结合更为紧密.

1　数据与方法

1.1　模型设置及评估方法

本研究采用 WRF-CMAQ 模型开展数值模拟和来源解析,其中中尺度气象模型 WRF,是由美国环境预测中心(NCEP)、美国国家大气研究中心(NCAR)等机构开发,目前广泛应用于气象研究与业务中,采用版本为 WRFv3.9.1;区域尺度空气质量模型 CMAQ 是由美国环保局(US EPA)研制发布的第三代空气质量预报与评估系统,采用版本为 CMAQv5.4. WRF 和 CMAQ 模型采用三层嵌套网格(图 1),水平分辨率分别为 27,9,3km,垂直方向分为 27 层,模拟时间为 2023 年 4 月 20 日 08:00~6 月 1 日 08:00,其中前 10d 为启动时间.

WRF 模型使用 NCEP/NCAR 再分析格点数据 FNL(1°×1°)作为气象初始和边界条件,采用的物理参数化方案包括:Lin 微物理方案,Goddard 短波辐射方案,RRTM 长波辐射方案,Monin-Obukhov 近地面层方案,NOAH 陆面过程方案,YSU 边界层方案,Kain-Fritsch 积云参数化方案,其中第三重网格不采用积云参数化方案. CMAQ 模型采用的化学参数化方案包括:SAPRC07TIC 气相化学机制,AERO7I 气溶胶机制和 AQKMT2 液相化学机制.排放源包括人

为源与生物源两部分,其中人为源排放清单采用清华大学 MEIC2019 年清单并在重点研究区域内结合了本地人为源排放信息(详见 1.2 节);生物排放源由 MEGAN 模型[21]计算得到.

首先对模型的模拟效果进行评估,采用第三层网格内 138 个环境国控监测站点的污染物小时浓度数据与模拟结果进行对比验证.验证评估采用的参数包括相关系数(R),符合指数(IOA),平均偏差(MB)以及均方根误差(RMSE),其中 R 与 IOA 用于表征观测值与模拟值的相近程度,结果越接近 1,则代表模拟结果与实际观测结果越相近,拟合效果越好;MB 与 RMSE 用于表征观测值与模拟值的偏离程度,结果越接近 0,则代表模拟结果与实际观测值的偏离程度越小.

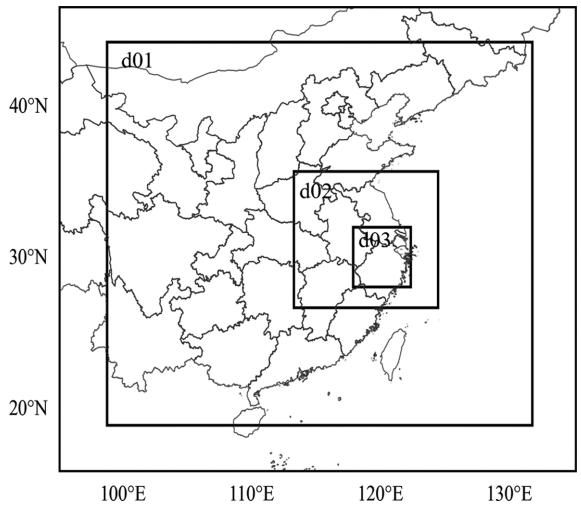


图 1 WRF-CMAQ 三层嵌套范围设置

Fig.1 Triple-nested domain setting for the WRF-CMAQ model

1.2 人为源排放清单

本研究以清华大学 MEIC2019 年清单为基础,结合我国杭州湾某地区本地的人为源排放资料进行精细化处理,排放部门划分为 10 类(表 1):化工产品源 ChemicalProducts、纺织业源 Textile、化纤制造业源 ChemicalFiber、其它工业源 OtherIndustry、电力源 Power、道路移动源 Road、非道路移动源 NonRoad、农业源 Agriculture、非工业溶剂使用源 Solvent、其它排放源 Else.本地人为排放清单基于实地污染源资料调研编制,基准年份为 2020 年,空间分辨率为 1km 并网格化嵌套至第三层网格研究区域内,清单物种采用与 CMAQ 模式一致的气相化学机制 SAPRC07TIC.需要注意的是,由于当前我国对各行业所排放的 VOCs 组分研究尚不充分,因此本研究中大类行业源的各 VOCs 物种排放比例均参考 William P.L. Carter[22]在研究中所给出的亚洲地区 VOCs 物种排放系数进行统一分配.

图 2 为该地区各污染物的本地清单贡献占比.如图 2 所示,本地清单的十类行业源中以影响臭氧污染生成最重要的两种前体物 VOCs 和 NO_x 来看:非工业溶剂使用源、纺织业源、化工产品源为 VOCs 的主要排放行业,年排放总量达到 2717.81×10^6mol、2655.83×10^6mol、1894.32×10^6mol,分别占 VOCs 排放总量的 16.7%、16.3%、11.6%.此外,其它工业源同样排放了大量 VOCs,共占比 29.3%;道路源与非道路移动源是该地区 NO_x 排放最多的两个行业,NO_x 年排放总量为 308.44×10^6mol、204.04×10^6mol,贡献占比达到 53.4%和 35.4%.

表 1 我国杭州湾某地区人为排放部门分类表

Table 1 Classification table of anthropogenic emission sectors in a region of Hangzhou Bay, China

部门类型	人为排放部门(10 类)	小类排放行业(40 类)
工业类	化工产品源	化学原料和化学制品制造业
	化纤制造业源	化学纤维制造业
	纺织业源	纺织业,纺织服装与服饰业
	其它工业源	橡胶和塑料制品业,金属制品业,汽车制造业,计算机、通信和其它电子设备制造业,造纸和纸制品业,非金属矿物制品业,医药制造业,其它行业
交通类	道路移动源	机动车,道路扬尘
	非道路移动源	飞机,船舶和港口机械,工程机械,农业机械,施工扬尘
电力类	电力源	电力、热力生产和供应业
农业类	农业源	畜禽养殖,氮肥施用,秸秆堆肥,固氮植物,土壤本底,人体粪便,露天焚烧,家用秸秆薪柴
民用类	非工业溶剂使用源	建筑涂料使用,农药使用,汽车维修,其它
	其它排放源	民用燃烧源,餐饮,堆场扬尘,土壤扬尘,加油站,油气运输,废水处理,固废处理

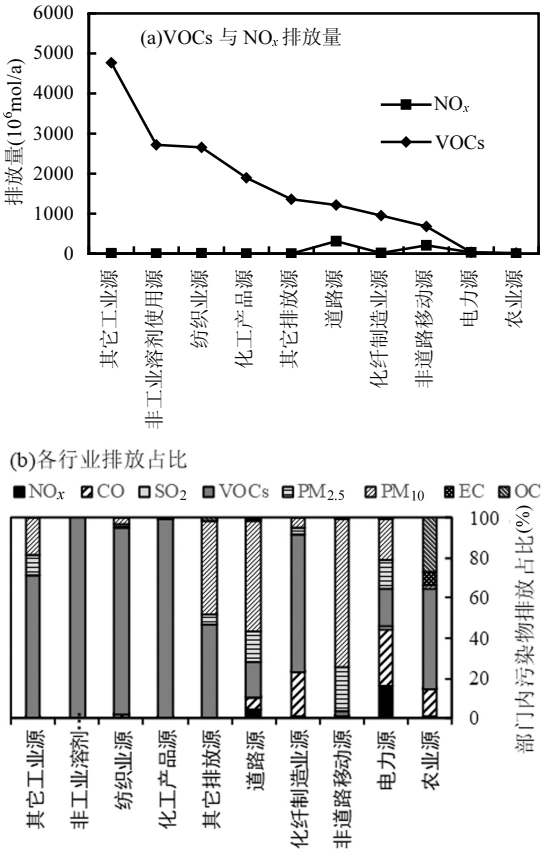


图 2　我国杭州湾某地区各行业人为排放

Fig.2　Anthropogenic emissions of VOCs and NO_x by sector in a region of Hangzhou Bay, China

1.3　来源解析(ISAM)

集成源解析方法 ISAM 是 CMAQ 模型采用标记追踪方法对研究区域的污染物生成来源进行分析的模块,本研究将 ISAM 追踪部门设置为该地区的十类行业源;追踪区域设置为该地区全范围,并将上述十类人为排放行业源贡献量之和作为该地区本地人为排放生成贡献(LOCAL),此外 ISAM 模块还包含初始场贡献(ICO)、网格边界传输贡献(BCO)以及第三层网格内该地区以外的传输贡献(OTH).

1.4　综合反应速率分析(IRR)

WRF-CMAQ 模型中的过程分析模块 PA 是一种分离和量化各个物理和化学过程对污染物浓度变化贡献的方法.包含综合过程速率 IPR 分析和综合反应速率 IRR 分析;其中 IRR 分析可以输出单个化学反应速率.本研究使用 IRR 结果中的臭氧生成速率 $O_{3P}(\mu g/m^3)$与臭氧消耗速率 $O_{3L}(\mu g/m^3)$的差值代表化学生成对臭氧浓度的贡献,如式(1.1)所示:

$$O_{3C} = O_{3P} - O_{3L} \quad (1)$$

式中:O_{3C} 为化学生成对臭氧浓度的净贡献.

1.5　精细化减排方案编制方法及减排系数区间设置

1.5.1　精细化减排方案编制方法　本研究中精细化减排方案编制方法:首先根据研究区域实际政策,设定本地人为排放部门“减排比例系数(减排总量/原排放总量)”的最大值,并以此划定减排系数区间;其次将包含 40 个小类人为行业排放信息的该地区局地 10 类部门人为排放清单嵌套至 MEIC 清单中,并对上述 10 类人为排放部门进行臭氧来源追踪,提升模型对臭氧行业来源追踪的精细度,细化本地臭氧来源贡献,并基于各行业臭氧来源贡献结果及部门排放结构在减排区间内设定相应减排系数.

1.5.2　减排系数区间设置　本次研究以该地区发布的空气质量持续提升相关行动方案为指引,以达成行动方案所设定的目标为基准,同时紧密结合当地人为排放清单中各部门主要大气污染排放物的控制技术发展态势,经过综合考虑与经验判断,科学合理地设置了减排系数区间(表 2),设置依据如下:工业类部门如纺织业源、化纤制造源及其它工业源等是 VOCs 主要排放部门,依据“开展涉 VOCs 重点行业帮扶、专项整治”等要求,最大可减排系数为 0.35 即减排系数区间为 0~0.35;化工产品源结合实际减排能力,减排区间为 0~0.15;非道路移动源包括工程机械和农业机械排放,道路移动源包括机动车和道路扬尘排放,依据方案目标淘汰车辆中:占比 40%的国四标准(CO:轻型汽车≤1.0g/km,重型柴油车≤3.5g/kWh;NO_x:轻型汽车≤0.08g/km,重型柴油车≤3.5g/kWh)及以下的柴油货车,推进新能源汽车发展,工程机械等减排区间设置为 0~0.4,机动车减排区间设置为 0~0.25,扬尘类排放减排区间设置为 0~0.2;非工业溶剂使用源是 VOCs 的重要排放行业,由汽车维修、建筑涂料、农药使用等构成,结合政策考虑到当前实际减排能力,汽车维修减排区间设置为 0~0.35,其它溶剂使用减排区间为 0~0.05,建筑涂料等减排能力有限不做减排(减排系数为 0);其它排放源减排区间设置为 0~0.2;电力源减排区间设置为 0~0.1;农业源,仅加强对露天秸秆燃烧的管控,减排区间为 0~0.3,其余不做减排.

表 2 我国杭州湾某地区人为排放部门减排系数区间

Table 2 Emission reduction coefficient ranges for anthropogenic sectors in a region of Hangzhou Bay, China

部门	小类人为排放行业	减排系数区间
纺织业源		0~0.35
化纤制造业源		0~0.35
化工产品源		0~0.15
其它工业源		0~0.35
非道路移动源	工程机械	0~0.4
道路移动源	机动车	0~0.25
非工业溶剂使用源	道路扬尘	0~0.2
	建筑涂料使用	0
	其它溶剂使用	0~0.05
	汽车维修	0~0.35
电力源		0~0.1
农业源	其它小类人为排放行业	0
	露天焚烧	0~0.3
其它排放源		0~0.2

2 结果与讨论

2.1 臭氧污染特征

2023 年研究区域所在城市的臭氧浓度年评价值(全年 MDA8O3 第 90 百分位数)从 2022 年的 168.15μg/m^3 下降至 164.73μg/m^3,同比下降 2%;然而研究区域的臭氧浓度年评价值却上升 0.2μg/m^3;同时基于 2015~2023 年该城市国控站点观测数据统计分析可以发现,如图 3 所示,该区域 2015~2023 年月平均变化趋势中 $MDA8O_3$ 浓度呈现双峰型结构,夏季与秋季为该地区臭氧污染频发的季节;其中 6~7 月受梅雨影响,臭氧浓度相对较低,而 5 月由于太阳辐射增强,温度逐渐升高,降水相对较少,高温低湿的气象条件导致 5 月该区域 $MDA8O_3$ 浓度最高,平均浓度为 138.35μg/m^3,超国家二级标准限值(GB3905—2012,160μg/m^3)的平均天数为 9.8d,超标率达到 31.87%.因此本文以 2023 年 5 月为臭氧污染典型月、以研究区域为重点臭氧污染区域展开研究.其中该月多日出现臭氧浓度超标的污染事件,$MDA8O_3$ 超国家二级标准限值(GB3905—2012,160μg/m^3)达到 9d(5 月 1、14、15、20、21、25、26、29、30 日),在下文的研究分析中以“污染日”指代 9 个臭氧浓度超标日整体.

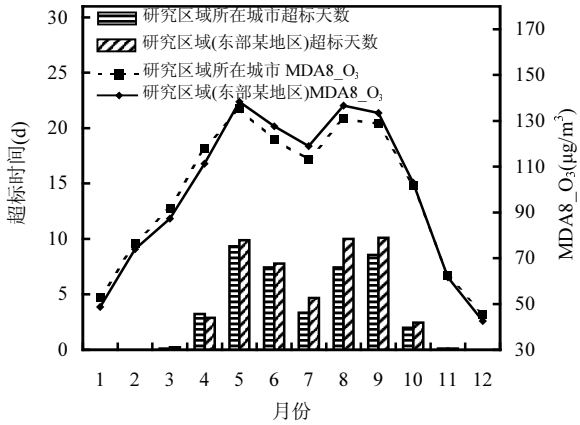


图 3 2015~2023 年研究区域及其所在城市 $MDA8O_3$ 浓度及超标天数月平均变化趋势

Fig.3 Trends of monthly average $MDA8O_3$ concentration and exceedance days in the study region and its cities from 2015 to 2023

2.2 模型验证

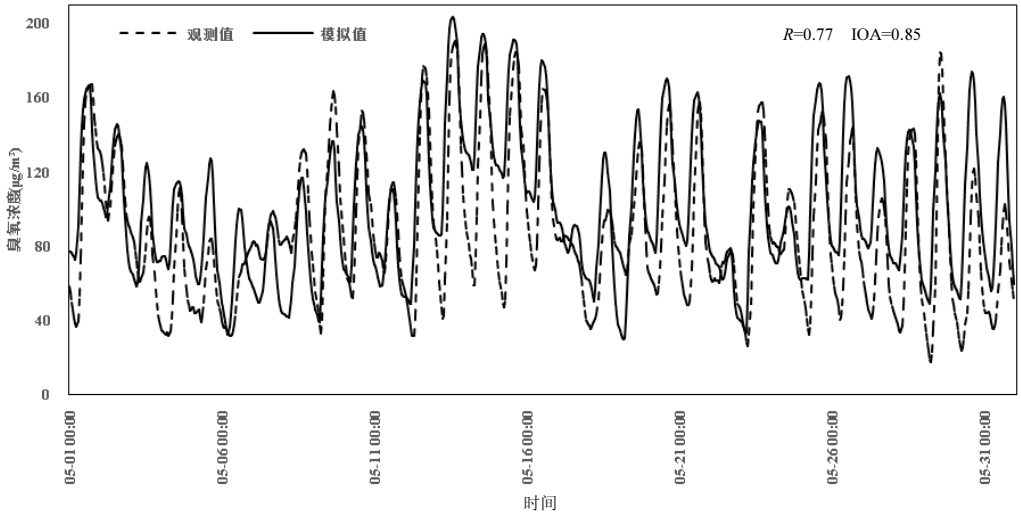


图 4 第三层网格内臭氧模拟值与观测站点平均值的时间序列

Fig.4 Time series of simulated O_3 concentrations in the third nested domain and the observed average values at monitoring stations

图 4 为本次研究过程中 CMAQ 模式所模拟的臭氧小时浓度值和第三层网格内 138 个环境国控监测站点观测平均值的比对结果.如图所示,模型对第三层网格内区域的地面臭氧浓度的模拟效果较好,模拟值与观测值的 R 达到 0.77, IOA 为 0.85,相关性较好.MB 为 13.32μg/m^3,RMSE 为 29.71μg/m^3,模拟结果相较于观测值略有所偏高,这可能是由于本次研究采用的 SAPRC07TIC 气相化学机制在模拟过程中出现的大气氧化性偏高现象,导致臭氧浓度偏高[23];具体而言,日间臭氧浓度的模拟偏差较小,而夜间臭氧浓度的模拟偏差较大.这可能是由于模拟浓度偏高引发夜间残留层向下输送的臭氧量增加,以及模型输入的人为源排放清单中对夜间 NO 排放量的低估,使得模型中的 NO 滴定效应减弱,两者共同导致夜间臭氧浓度偏高,然而从整体来看模拟结果的误差在可接受范围内[24].综上所述,模型对臭氧的实际变化有较好的捕捉,模拟结果可用于进一步的分析研究.

2.3　区域臭氧来源解析

2.3.1　区域来源解析　图 5 为臭氧的区域来源追踪结果,可以看到第三层网格边界传输(BCO)为该地区臭氧的首要来源,贡献平均占比为 44.1%;第三层网格内该地区以外地区(OTH)与该地区各人为排放行业贡献总和(LOCAL)的贡献占比,分别为 28.7%、26.7%,同样都是该地区的主要臭氧来源;初始场(ICO)的贡献较小,仅占 0.5%.可见,该地区臭氧来源中区域传输贡献占比可达 70.8%,本地排放生成的臭氧平均贡献占比约为四分之一,另外值得注意的是,由于“污染日”及“污染日”前夕的地面风速相对较小,使得来源于区域传输的臭氧贡献占比减小,而本地生成的臭氧由于扩散条件不利从而不断累积,导致本地生成的贡献占比在“污染日”显著增加,可升至 35.6%,因此减少本地排放所生成的臭氧在降低该地区臭氧超标天数、改善空气质量中同样重要.基于此,进一步对各行业臭氧生成贡献进行来源解析,探究本地行业对臭氧来源的贡献,并以此为依据设计出本地各行业的减排方案.

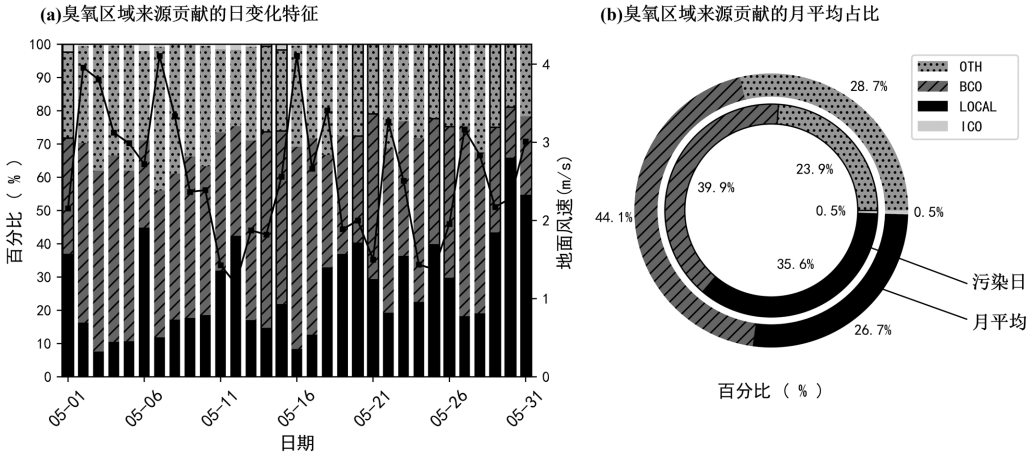


图 5　臭氧的区域来源解析

Fig.5　Regionalsource apportionment of ozone

臭氧浓度超标的“污染日”均以黑色边框标注

2.3.2　行业来源解析　图 6 展示了该地区各排放行业对本地生成的臭氧贡献占比.各行业在每日的臭氧生成贡献占比无明显的变化.工业类行业整体贡献最大,占比为 38.3%,其中,纺织业源、化工产品源、化纤制造业源是该地区主导工业,贡献占比分别为 10.2%、8.0%、7.0%;其它工业类行业共同构成的其它工业源贡献占比为 13.1%;道路移动源的贡献紧随其后,占比达到 22.2%;其次为非道路移动源,达到 13.2%;交通类行业整体贡献占比达到 35.4%.非工业溶剂使用源、其它排放源贡献占比分别为 11.6%、7.4%,同样是该地区臭氧的主要行业来源.电力源及农业源贡献较少,仅为 4.4%、2.9%,农业源贡献多来自农业机械、秸秆燃烧等农业活动人为排放的其它污染物.综上所述,工业类行业与交通类行业对该地区贡献相对较大,应加大减排力度,非工业溶剂使用以及其它行业对臭氧的贡献亦不可忽视,

同样需要尽可能地进行减排,从而减少本地的臭氧生成.

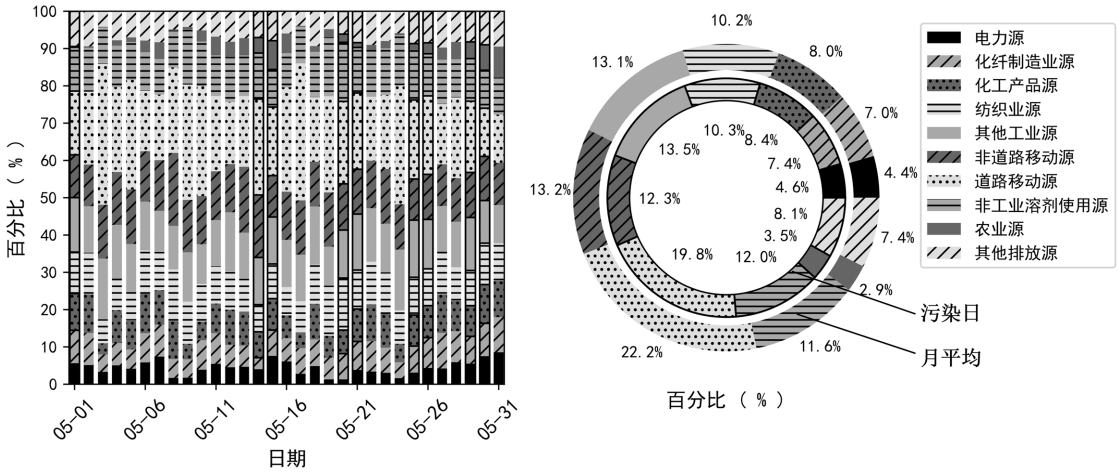


图 6 臭氧的行业来源解析

Fig.6 Sectoralsource apportionment of ozone

2.4 局地精细化减排方案

2.4.1 局地精细化减排方案设计基于臭氧区域来源解析可知,除其它区域输送以外,该地区本地生成的臭氧也有着不可忽视的贡献占比,尤其是在污染日.因此结合各行业实际减排系数区间(表 2),并基于该地区臭氧的行业来源解析结果及部门排放结构,设计出该地区局地的精细化减排方案(图 7).图 7 中为 40 个小类人为排放源在来源解析中所追踪的行业类别,以及减排比例系数(减排总量/原排放总量).

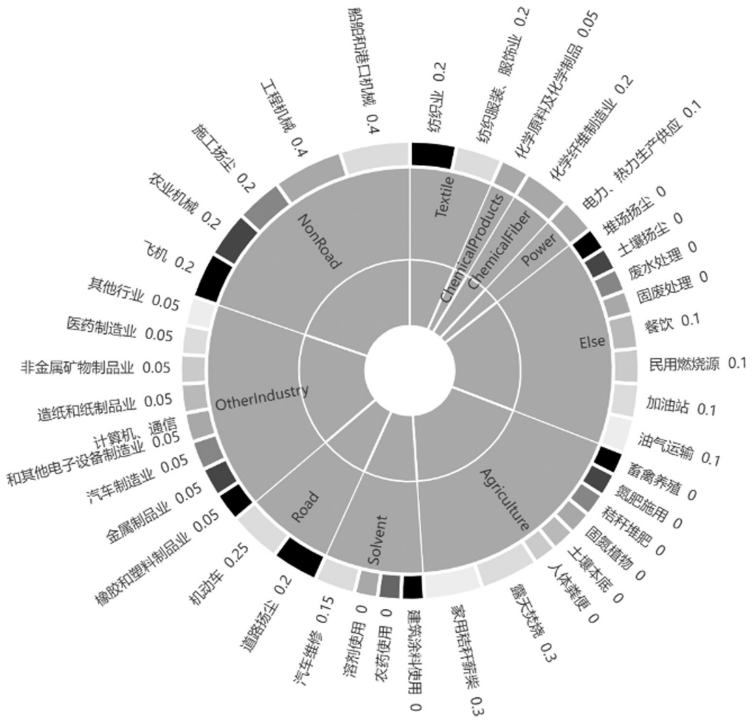


图 7 小类排放源精细化减排方案

Fig.7 Refinedemission reduction strategy for subcategories of emission sources

具体减排方案设计依据如下:工业类排放源中,纺织业源(Textile)、化纤制造业源(ChemicalFiber)、

化工产品源(ChemicalProducts)臭氧贡献占比相对一般,减排系数设置为减排区间 2/3 左右的值,分别为 0.2、0.2、0.05;其它工业源(OtherIndustry)为 VOCs 排放总量最多的部门,排放量基数较大,在戴海夏等人[25]的研究中长三角地区在 NO_x 减排占比大于 VOCs 减排占比的情景下臭氧减排量达到最大值,因此为平衡 VOCs 减排占比,将其它工业源中的小类排放行业系数设置为 0.05;道路移动源与非道路移动源 NO_x 排放贡献较大,为该地区臭氧的重要贡献来源,因此需对该部门所属行业重点减排,减排系数设置为区间最大值,将工程机械等减排系数设置为 0.4(减排 40%),机动车减排系数设置为 0.25,扬尘类排放减排系数设置为 0.2;非工业溶剂使用源(Solvent)对臭氧的生成贡献与纺织业相似,但受当前减排工艺水平所限,建筑涂料等溶剂使用行业不做减排,减排系数为 0,汽车维修减排系数为 0.15;其它排放源(Else)、电力源(Power)及农业源(Agriculture)臭氧贡献较少,减排区间较小,基本不做减排,部分行业如秸秆燃烧等减排系数设置为 0.3.

2.4.2　减排方案效果评估　根据上述的局地精细化减排方案,对该地区 40 个行业的人为排放污染物进行减排,结果如图 8 所示.该地区人为排放的各类污染物均有不同程度的削减,其中 EC、OC 减排量相较于减排前总量占比最大,达到 30%以上;其次为 CO,减排比例为 28.2%;对臭氧生成有重大影响的前体物 NO_x 及 VOCs 减排比例也分别达到了 26.8%及 10.6%,减排比例为 2.5:1;粗颗粒物的排放比例为 20%.

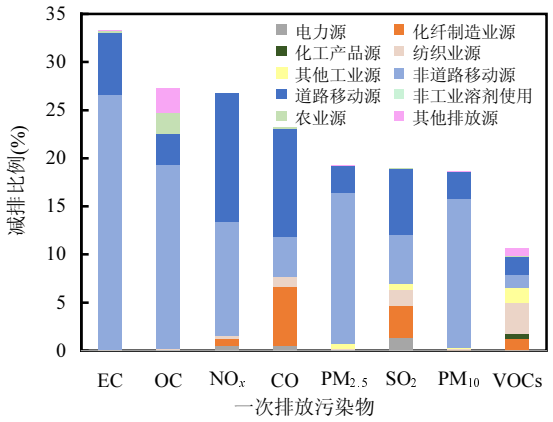


图 8　该地区人为排放污染物减排比例

Fig.8　Reduction ratio ofanthropogenic emission pollutants

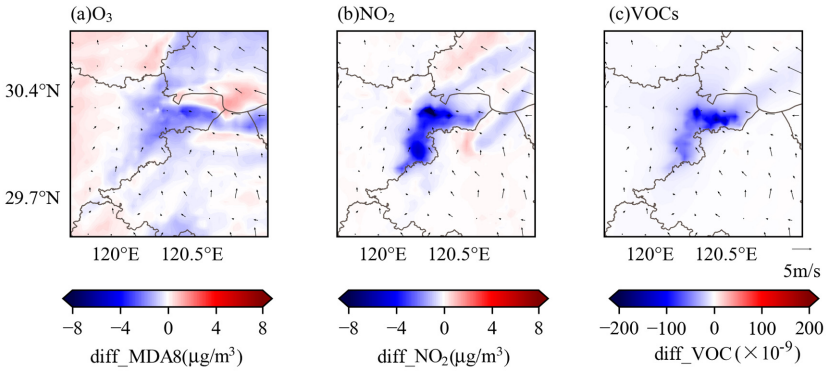


图 9　污染日 $MDA8O_3$ 及前体物 NO_2,VOCs 差值分布(减排后−减排前)

Fig.9　Difference distribution diagram of $MDA8O_3$ and precursor NO_2, VOCs on pollution day (after emission reduction − before emission reduction)

为了验证本次减排方案对臭氧的减排效果,本研究使用 WRF−CMAQ 模型在相同气象条件下利用上述减排方案的排放源对 2023 年 5 月该地区的臭氧进行数值模拟.减排后与减排前的臭氧及其前体物浓度在“污染日”的差值结果如图 9 所示,可以发现,本次精细化减排方案对于该地区的污染日有明显的改善效果,臭氧浓度及前体物 NO_x 和 VOCs 均有所下降,并具有较好的对应关系.从空间分布来看,研究区域北部为人口与工业更为密集的人为污染物排放高值区域,本次减排方案能有效地抑制该地区臭氧前体物的排放及生成(图 9(b),图 9(c)).对比减排前后的臭氧空间分布的变化可以看出:前体物下降更多的北部地区其臭氧浓度也具有显著的下降;结合传输变化,最终使得该地区的 $MDA8O_3$ 最大减少量为 3.71μg/m^3,地区平均 $MDA8O_3$ 浓度减少 1.26μg/m^3,平均减少浓度占该时段本地所贡献的臭

氧浓度的 2.6%.同时如图 10 所示,本次减排方案显著抑制了该地区臭氧的化学生成,以减排前后 O_3chem 计算差值可以得出:该地区臭氧本地生成浓度最大减少量为 26.44μg/m^3,地区平均化学生成浓度减少 3.5μg/m^3,平均减少浓度占该时段本地化学生成臭氧浓度的 7.1%.

总的来说,减排方案对于本地臭氧污染日臭氧生成具有显著的削峰作用,可以显著地减少臭氧在本地的化学生成浓度,但由于该地区臭氧主要来源于区域传输,传输贡献在污染日及非污染日均达到 65%以上,即使很好地削减了本地臭氧的化学生成也未能使得该地区臭氧浓度下降至国家二级标准以下,因此在城市尺度的臭氧防治过程中,前体物源头减排应形成区域间的联防联控,减少区域间的传输贡献.

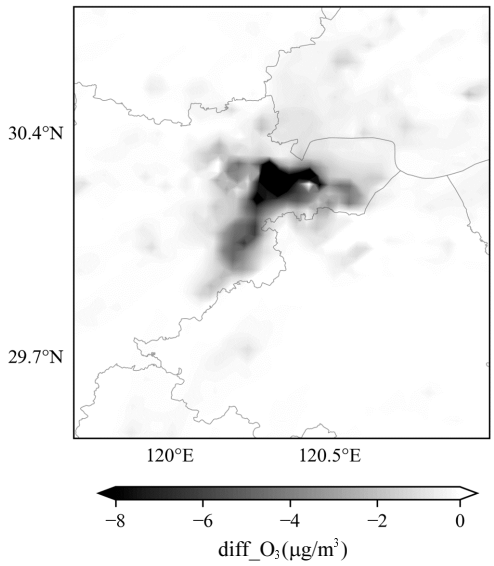


图 10 污染日臭氧化学生成浓度差值分布(减排后−减排前)

Fig.10 Spatial distribution of ozone chemical production difference on pollution days (post−reduction minus pre−reduction)

2.5 讨论

本研究提出的局地精细化减排方案编制方法能够基于臭氧污染来源解析结果结合当前的实际减排能力和未来经济发展规划,对重点污染行业实施针对性减排并评估其效果,为各地区开展精细化减排工作提供了方法参考.此外,本方法以区域人为排放清单为基础,同时结合减排地区的本地排放数据进行精细化处理,在考虑区域传输影响的同时,提升了本地行业来源解析的精细度.然而,由于不同排放清单的编制过程存在差异,在整合清单时需要结合减排地区的实际情况进行优化,以确保方法的适用性和准确性.

3 结论

3.1 区域传输是该地区臭氧的主要来源,第三层网格边界传输(BCON)及第三层网格内其它地区(OTH)对该地区的臭氧贡献占比(44.1%、28.7%)远超本地人为排放(LOCAL)的贡献占比(26.7%),这一结果强调了在臭氧污染防治过程中加强区域联防联控的重要性.然而,研究期间“污染日”的本地人为排放贡献平均增至 35.6%,表明本地人为排放对臭氧污染的加剧具有重要影响,开展局地精细化减排同样是实现臭氧污染有效防治的关键路径之一.

3.2 该地区本地人为排放源中,工业类行业整体贡献最大,占比为 38.3%,其中,纺织业源、化工产品源、化纤制造业源是该地区主导工业,贡献占比分别为 10.2%、8.0%、7.0%;其它工业类行业共同构成的其它工业源贡献占比为 13.1%;交通类行业其次,整体贡献占比达到 35.4%,其中,道路移动源、非道路移动源贡献占比分别为 22.2%、13.2%;非工业溶剂使用源、其它排放源贡献占比分别为 11.6%、7.4%,同样是该地区臭氧的主要行业来源.针对上述高贡献行业制定针对性的减排政策,将有助于有效减少本地生成的臭氧浓度,为臭氧污染防治提供精细化的策略支持.

3.3 基于臭氧来源解析结果及实际政策的减排方案对减排区域臭氧污染日的化学生成浓度具有显著的削减,最大减少量可达 26.44μg/m^3,平均减少量为 3.5μg/m^3,平均减少浓度占该时段本地化学生成臭氧浓度的 7.1%.这一结果表明,该方法能够显著减少本地臭氧的生成,有效抑制当前臭氧浓度上升趋势,为局地精细化减排工作的开展提供了科学依据和技术支持.

参考文献:

[1] Yao Z, Huo H, Zhang Q, et al. Gaseous and particulate emissions from rural vehicles in China [J/OL]. Atmospheric Environment, 2011,45(18): 3055−3061.DOI:10.1016/j.atmosenv.2011.03.012.

[2] Yao Z, Wu B, Shen X, et al. On−road emission characteristics of VOCs from rural vehicles and their ozone formation potential in

Beijing, China [J/OL]. Atmospheric Environment, 2015,105:91−96. DOI:10.1016/j.atmosenv.2015.01.054.

[3] Guo H, Zhang Q, Shi Y, et al. On−road remote sensing measurements and fuel−based motor vehicle emission inventory in Hangzhou, China [J/OL]. Atmospheric Environment, 2007,41(14):3095−3107.DOI:10.1016/j.atmosenv.2006.11.045.

[4] Bell M L. Ozone and short−term mortality in 95US urban communities, 1987~2000 [J/OL]. JAMA, 2004,292(19):2372.DOI:10.1001/jama.292.19.2372.

[5] Peng J, Shang B, Xu Y, et al. Ozone exposure− and flux−yield response relationships for maize [J/OL]. Environmental Pollution, 2019,252:1−7.DOI:10.1016/j.envpol.2019.05.088.

[6] Feng Z, Xu Y, Kobayashi K, et al. Ozone pollution threatens the production of major staple crops in East Asia [J/OL]. Nature Food, 2022,3(1):47−56.DOI:10.1038/s43016−021−00422−6.

[7] 中华人民共和国生态环境部.2023 中国生态环境状况公报 [R]. 北京:中华人民共和国生态环境部, 2024.
Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China. Bulletin on China's ecological environment in 2023 [R]. Beijing: Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, 2024.

[8] Lin X, Trainer M, Liu S C. On the nonlinearity of the tropospheric ozone production [J/OL]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1988,93(D12):15879−15888.DOI:10.1029/JD093iD12p15879.

[9] An J, Zou J, Wang J, et al. Differences in ozone photochemical characteristics between the megacity Nanjing and its suburban surroundings, Yangtze River Delta, China [J/OL]. Environmental Science and Pollution Research, 2015,22(24):19607−19617.DOI:10.1007/s11356−015−5177−0.

[10] Duan J, Tan J, Yang L, et al. Concentration, sources and ozone formation potential of volatile organic compounds (VOCs) during ozone episode in Beijing [J/OL]. Atmospheric Research, 2008,88(1):25−35.DOI:10.1016/j.atmosres.2007.09.004.

[11] Xu Y, Shen A, Jin Y, et al. A quantitative assessment and process analysis of the contribution from meteorological conditions in an O_3 pollution episode in Guangzhou, China [J/OL]. Atmospheric Environment, 2023,303:119757.DOI:10.1016/j.atmosenv.2023.119757.

[12] Liu Q, Lam K S, Jiang F, et al. A numerical study of the impact of climate and emission changes on surface ozone over South China in autumn time in 2000~2050 [J/OL]. Atmospheric Environment, 2013,76:227−237.DOI:10.1016/j.atmosenv.2013.01.030.

[13] Chen X, Zhong B, Huang F, et al. The role of natural factors in constraining long−term tropospheric ozone trends over Southern China [J/OL]. Atmospheric Environment, 2020,220:117060.DOI:10.1016/j.atmosenv.2019.117060.

[14] 张树宪,李　洋,张众志,等.基于 CMAQ/ISAM 空气质量模型的北京市夏季臭氧来源解析研究 [J/OL]. 环境科学研究, 2022,35(5):1183−1192.DOI:10.13198/j.issn.1001−6929.2021.10.11.
Zhang S X, Li Y, Zhang Z Z, et al. Source apportionment of ozone in summer in Beijing based on CMAQ/ISAM air quality model [J/OL]. Research of Environmental Sciences, 2022,35(5):1183−1192.DOI:10.13198/j.issn.1001−6929.2021.10.11.

[15] 许亦非,崔寅平,朱溢啸,等.广东省区域臭氧污染过程三维输送特征分析与定量来源解析 [J]. 中国环境科学, 2023,43(5):2119−2127.
Xu Y F, Cui Y P, Zhu Y X, et al. Assessment of three−dimensional transport processes and quantitative source analysis of regional ozone pollution in Guangdong Province [J]. China Environmental Science, 2023,43(5):2119−2127.

[16] 王伊凡,仝纪龙,陈羽翔,等.基于 WRF−CMAQ/ISAM 模型的榆林市夏季 O_3 来源解析 [J/OL]. 环境科学, 2023,44(7):3676−3684. DOI:10.13227/j.hjkx.202207003.
WangY F, Tong J L, Chen Y X, et al. Analysis of O_3 Sources in Yulin City in Summer Based on WRF−CMAQ/ISAM Model [J/OL]. Environmental Science, 2023,44(7):3676−3684. DOI:10.13227/j.hjkx.202207003.

[17] 常树诚,廖程浩,曾武涛,等.肇庆市一次典型污染天气的污染物来源解析 [J/OL]. 环境科学, 2019,40(10):4310−4318. DOI:10.13227/j.hjkx.201903237.
Chang S C, Liao C H, Zeng W T, et al. Source apportionment of air pollutants for a typical pollution event in Zhaoqing [J/OL]. Environmental Science, 2019,40(10):4310−4318.DOI:10.13227/j.hjkx.201903237.

[18] 耿雅娴,郭婧涵,葛宇轩,等.基于 CMAQ−ISAM 模型对石家庄市臭氧污染过程模拟分析 [J/OL]. 环境科学, 2024:1−16.DOI:10.13227/j.hjkx.202309132.
Geng Y X, Guo J H, Ge Y X, et al. Simulation and analysis of ozone pollution process in Shijiazhuang based on CMAQ−ISAM model [J/OL]. Environmental Science, 2024:1−16.DOI:10.13227/j.hjkx.202309132.

[19] 李　晨,张芝娟,陈　曦,等.基于 WRF−CMAQ 的晋城市 $PM_{2.5}$ 与 O_3 复合污染协同控制 [J]. 中国环境科学, 2024,44(12):6569−6577.
Li C, Zhang Z J, Chen X, et al. Coordinated control of $PM_{2.5}$ and O_3 compound pollution in Jincheng City based on the WRF-CMAQ model [J]. China Environmental Science, 2024,44(12):6569−6577.

[20] Geng G, Liu Y, Liu Y, et al. Efficacy of China's clean air actions to tackle $PM_{2.5}$ pollution between 2013 and 2020 [J/OL]. Nature Geoscience, 2024,17(10):987−994.DOI:10.1038/s41561−024−01540−z.

[21] Guenther A, Karl T, Harley P, et al. Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (model of emissions of gases and aerosols from nature) [J/OL]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2006,6(11):3181−3210.DOI:10.5194/acp−6−3181−2006.

[22] Carter W P L. Development of a database for chemical mechanism assignments for volatile organic emissions [J/OL]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2015,65(10):1171−1184.DOI:10.1080/10962247.2015.1013646.

[23] Luecken D J, Phillips S, Sarwar G, et al. Effects of using the CB05vs. SAPRC99vs. CB4chemical mechanism on model predictions: Ozone and gas−phase photochemical precursor concentrations [J/OL]. Atmospheric Environment, 2008,42(23):5805−5820.DOI:10.1016/j.atmosenv.2007.08.056.

[24] He G, He C, Wang H, et al. Nighttime ozone in the lower boundary layer: insights from 3−year tower−based measurements in South China and regional air quality modeling [J/OL]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2023,23(20):13107−13124.DOI:10.5194/acp−23−13107−2023.

[25] 戴海夏,安静宇,黄　成,等.长江三角洲区域大气 $PM_{2.5}$ 和臭氧污染协同控制路径 [J]. 科学通报, 2022,67(18):2100−2112.
Dai H X, An N Y, Huang C, et al. Roadmap of coordinated control of $PM_{2.5}$ and ozone in Yangtze River Delta [J]. Chinese Science Bulletin, 2022,67:2100−2112,doi:10.1360/TB−2021−0774.

作者简介：席欣煜(1999−),男,甘肃兰州人,中山大学硕士研究生,主要从事大气环境数值模拟研究.发表论文 1 篇.xixy3@mail2.sysu.edu.cn.