浙江农林大学学报,2019,36(4):810-817

Journal of Zhejiang A&F University

doi:10.11833/j.issn.2095-0756.2019.04.022

# 后 G20 时期杭州市挥发性有机物和可吸入 颗粒物的特征分析

丰 睿1.2、黄成臣3、高 寒4、郑慧君5、申亚梅6、罗 坤

(1. 浙江大学 能源清洁利用国家重点实验室,浙江 杭州 310027; 2. 中国建材集团 中国新型建材设计研究院,浙江 杭州 310022; 3. 杭州市环境监测中心站,浙江 杭州 310007; 4. 浙江环茂自控科技有限公司,浙江 杭州 311100; 5. 浙江大学 医学院附属邵逸夫医院,浙江 杭州 310020; 6. 浙江农林大学 风景园林与建筑学院,浙江 杭州 311300)

摘要:后 G20 时期(2016年9月至2017年12月),臭氧成为杭州夏季首要大气污染物,可吸入颗粒物(PM<sub>10</sub>)成为杭州冬季首要大气污染物。利用杭州市环境检测朝晖站和环境监测下沙站空气质量数据观测值分析 55 种挥发性有机化合物 (VOC)的臭氧形成潜力,并使用美国国家环境保护局研发的第 3 代大气质量预估模型(WRF-CMAQ)对杭州市中心 PM<sub>10</sub> 的污染数值进行模拟分析,提出了后 G20 时期 PM<sub>10</sub> 和臭氧的最佳管控方案。结果显示:在后 G20 时期杭州市中心和城郊,芳香烃所占臭氧形成潜力比例最高,其次为烯烃和烷烃,最后为乙炔。在市区和城郊,乙烯、间/对二甲苯、甲苯、丙烯和乙苯依次为生成臭氧最主要的 5 种挥发性有机化合物,因此管控这 5 种挥发性有机化合物能最大程度的减少臭氧质量浓度。2017年杭州市中心春夏秋冬四季的 PM<sub>10</sub> 中分别有 50%,32%,48%和45%源于杭州市以外污染源的长距离跨地域传输。其中,春秋冬三季通过长距离传输来到杭州市区的 PM<sub>10</sub> 主要源于市区的北方,夏季则主要源于市区的西南方。2017年,杭州市区的交通源、工业源、生活源与农业源对本地排放 PM<sub>10</sub> 的贡献率分别为 62.6%,27.8%,7.3%和 2.3%。当杭州本地的工业源和交通源在 2016年的基础上分别减排 15%和 5%时,杭州市中心的 PM<sub>10</sub> 年均质量浓度可低于 70  $\mu$ g·m³,达到二类区的标准。图 4 表 3 参 16

**关键词**:空气污染;挥发性有机化合物;臭氧形成潜力;大气质量预估模型;可吸入颗粒物;长距离传输;本地污染源贡献率

中图分类号: X511 文献标志码: A 文章编号: 2095-0756(2019)04-0810-08

## Decoding VOCs and PM<sub>10</sub> for Hangzhou in the post-G20 period

FENG Rui<sup>1,2</sup>, HUANG Chengchen<sup>3</sup>, GAO Han<sup>4</sup>, ZHENG Huijun<sup>5</sup>, SHEN Yamei<sup>6</sup>, LUO Kun<sup>1</sup>

(1. State Key Laboratory of Clean Energy Utilization, Zhejiang University, Hangzhou 310027, Zhejiang, China; 2. China New Building Materials Design and Research Institute, China National Building Materials Group Corporation, Hangzhou 310022, Zhejiang, China; 3. Hangzhou Environmental Monitoring Central Station, Hangzhou 310007, Zhejiang, China; 4. Zhejiang Huanmao Auto-control Technology CO., LTD, Hangzhou 311100, Zhejiang, China; 5. Sir Run Run Shaw Hospital, School of Medicine, Zhejiang University, Hangzhou 310020, Zhejiang, China; 6. School of Landscape Architecture, Zhejiang A&F University, Hangzhou 311300, Zhejiang, China)

Abstract: In the post-G20 period (September 2016 to December 2017), the dominant atmospheric pollutant in winter was PM<sub>10</sub> and in summer was tropospheric ozone. For the purpose of better regulating PM<sub>10</sub> and ground-level ozone, chemical reactivity of 55 kinds of volatile organic compounds (VOCs) was analyzed at Zhaohui and Xiasha Environmental Monitoring Stations using ozone formation potential (OFP). The third generation at-

收稿日期: 2018-07-31; 修回日期: 2018-10-24

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51476144)

作者简介:丰睿,工程师,博士,从事能源和环境工程研究。E-mail: 11727081@zju.edu.cn。通信作者:罗坤,教授,博士,从事能源及环境工程领域复杂多相流和反应的理论及数值模拟研究。E-mail: zjulk@zju.edu.cn

mospheric model WRF-CMAQ developed by the United States Environmental Protection Agency (USEPA) was also used to simulate time-space distributions of  $PM_{10}$  in the city center. Results showed that alkenes were the primary precursor in the downtown area, followed by aromatics, alkanes, and alkynes; whereas, aromatics were the primary precursor in the suburbs, followed by alkenes, alkanes, and alkynes. Ethylene, m/p-xylene, toluene, propylene, and ethylbenzene were ranked as the top five VOCs for OFP in both downtown and suburban areas of Hangzhou. For  $PM_{10}$  in the city center, regional transport of pollutants accounted for about 50% in spring, 32% in summer, 48% in autumn, and 45% in winter. The regional transported  $PM_{10}$  mainly came from the north in spring, autumn, and winter but from the southwest in summer. Local Hangzhou  $PM_{10}$  levels in 2017 included local industry (62.6%), traffic (27.8%), residence (7.3%), and agriculture (2.3%). Consequently, controlling the top five VOC species was the best way to alleviate ground-level ozone, and based on 2016 statistics, shutting down 15% of the local industry and reducing 5% of the local traffic would reduce the annual  $PM_{10}$  level to 70  $\mu$ g·m<sup>-3</sup> meeting the second national environmental air quality standard. [Ch, 4 fig. 3 tab. 16 ref.]

Key words: air pollution; volatile organic compounds (VOCs); ozone formation potential (OFP); WRF-CMAQ; PM<sub>10</sub>; long-range transport; local sector contribution

二十国集团(G20)领导人第十一次峰会以后,杭州市如何治理和管控大气污染存在巨大挑战。2017年全年数据显示,杭州市中心可吸入颗粒物(PM<sub>10</sub>)质量浓度年均值为 76.1 μg·m³,超过 GB 3095-2012《环境空气质量标准》国家环境二类标准 8.7%,其中 2017年 1 和 2 月 PM<sub>10</sub> 质量浓度均值达 107.2 μg·m³,12 月均值高达 124.9 μg·m³,成为年度冬季首要污染物; 夏季 8 h 最大值臭氧的平均质量浓度高达 150.2 μg·m³,成为年度夏季首要污染物。为了在 2022年亚运会前空气质量达到国家环境二级标准,本研究分析了杭州市 2016年 9 月至 2017年 12 月夏季首要大气污染物臭氧最主要前体物挥发性有机化合物(VOC)的臭氧生成潜力(OPF),并运用 WRF-CMAQ 空气质量模型拟合分析了冬季首要污染物 PM<sub>10</sub> 的时空分布、长距离跨地域传输率和本地不同污染源贡献率,旨在提出杭州市切实可行的大气污染防治方案。

#### 1 资料与方法

#### 1.1 观测数据

数据来源于杭州市环境监测站中的朝晖站和下沙站空气质量观测值。朝晖站(30.288°N,120.159°E)位于杭州市中心的朝晖五区朝晖实验小学旁,测量高度约 18 m,距离杭州市中心地标性建筑环球中心和西湖文化广场约 0.8 km,东侧 0.3 km 为杭州最主要的南北向主干道上塘高架,西侧和北侧 0.1 km 为步行街。周围污染源主要是生活源和交通源,周围 5.0 km 内无大型工业污染源,反映了杭州市中心的污染状况。下沙站(30.306°N,120.348°E)位于杭州下沙科教园区的浙江育英职业技术学院旁,距离老杭州市区约 11.6 km,测量高度约 20 m,东侧距离杭州绕城高速约 1.3 km,北侧距离德胜快速路约 1.8 km,南侧距离下沙路约 0.1 km,主要污染源为生活源和交通源,反映了杭州市城郊结合部的污染状况。观测时段为 2016 年 7 月至 2017 年 12 月,有效数据率为 98.7%。下沙站位于朝晖站正东方向约 18.3 km。由于 2017 年全年杭州市的东风频率约 12%,西风仅为 7%,所以两站之间的污染物区域传输相对较小。

环境监测数据包括每小时的臭氧 $(O_3)$ 、二氧化氮 $(NO_2)$ 、二氧化硫 $(SO_2)$ 、细颗粒物 $(PM_{25})$ 和可吸入颗粒物 $(PM_{10})$ 质量浓度以及日均共计 55 种 VOC 的体积分数。VOC 的测量仪器为荷兰 SYNSPEC 公司生产的 Syntech Spectras GC955 在线气相色谱仪。其他污染物数据由美国 Thermo Fisher Scientific 公司生产的 49i 型臭氧分析仪、42i 型氮氧化物分析仪、43i 型二氧化硫分析仪以及 PDM-3700 型 PM 检测仪测量。为确保数据的准确性,隔半个月对所有检测仪器进行 1 次维护。气象数据包括每小时的气温、相对湿度、风速、风向、降水量、气压和露点温度及每日的日照时数等,数据来源于杭州市气象观测站。

#### 1.2 基于 WRF-CMAQ 模型的 3 层嵌套网格污染物模拟

应用美国国家环境保护局研发的第3代气象模型系统的中尺度气象及区域空气质量耦合模型——

WRF-CMAQ, 研究污染物的长距离跨区域传输及杭州市区内的不同污染源贡献率。模拟过程包括 3 个步骤: (1)WRF 模型提供模拟气象数据,包括气温、相对湿度和风速风向等;(2)污染物清单提供自然源和人为源的排放信息;(3)将步骤 1 和 2 中的信息导入 CMAQ 系统中,计算出某一时间段内污染物的时空分布。WRF-CMAQ 的数值模拟计算在浙江大学清洁能源利用国家重点实验室具有 2 688 个中央处理器(CPU)和 5 376 个 GB 的随机存取存储器(RAM)的 IBM 集群计算机上进行。

1.2.1 WRF 模型 气象模拟应用 WRFv3.4 版本:诸如海拔高度、气压、气温、露点温度和风向风速等地理或气象条件源于美国环境预测中心(NCEP)发布的 WRF 输入边界层数据库(https://rda.ucar.edu/datasets/ds351.0/)以及全球地表气象观测数据库(https://rda.ucar.edu/datasets/ds351.0/)以及全球地表气象观测数据库(https://rda.ucar.edu/datasets/ds351.0/)以及全球地表气象观测数据库(https://rda.ucar.edu/datasets/ds461.0/)。所有数据库都具有 6 h 时间分辨率和 1°×1°空间分辨率。为确保边界层对污染物模拟的影响最小化,设置 WRF 模拟的空间比 MEGAN 和 CMAQ 略大。表 1 列出了气象模拟的 WRF 参数方案。

## 表 1 WRF 参数方案

|                                       |         | rabic r randineter            | 10 101 W ICI |                              |
|---------------------------------------|---------|-------------------------------|--------------|------------------------------|
| · · · · · · · · · · · · · · · · · · · | 参数      | 选择的方案                         | 参数           | 选择的方案                        |
| 微对                                    | 观物理进程   | WSM6 <sup>[1]</sup>           | 陆地表面进程       | Noah <sup>[5]</sup>          |
| 长衫                                    | 波辐射     | RRTM <sup>[2]</sup>           | 边界层          | YSU <sup>[6]</sup>           |
| 短泡                                    | 波辐射     | Goddard <sup>[3]</sup>        | 积雨云参数化进程     | Grell-Devenyi <sup>[7]</sup> |
| 表质                                    | <b></b> | MM5 similarity <sup>[4]</sup> |              |                              |

Table 1 Parameters for WRF

1.2.2 自然排放源和人为排放源清单 由陆地生态系统到大气中气体和气溶胶的自然排放清单用自然源气体及气溶胶排放模型 MEGAN<sup>[8]</sup>估算,主要包含自然源产生的氨气,PM<sub>10</sub>,VOC 和可吸入颗粒物等。MEGAN 的全球土地覆盖分布数据的空间分辨率为 1 km,区域分辨率可达 300 m。MEGAN 的代码可以免费获取,存储格式为 ARC-GIS 或 net-CDF。运用 v2.04 版本的 MEGAN 系统结合土地覆盖数据和 WRF模拟出的气象条件,进行自然界生物排放量的估算。土地覆盖数据由 3 个部分组成:(1)叶面积指数。基于 MODIS 数据库的土地面积除以叶面积的总面积估算,其空间分辨率为 30 s。(2)植物功能类型。来自MODIS3 数据库以及全国第 2 次森林普查;植物分为阔叶、针叶、草本(包括农作物和草地)以及灌木 4 类。(3)排放因子。不同季节自然源排放污染物总量的差异。

对于人为污染源清单,在长江三角洲以外地区,运用清华大学在 2016 年制定的东亚地区的清单 $^{[9-10]}$ ,包括  $SO_2$ ,CO, $PM_{25}$  和  $PM_{10}$  等 26 种主要污染物的污染源,所有污染源都被格栅化纳入  $0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$ 分辨率的数据库。长江三角洲地区的人为排放源污染物清单,运用上海环境科学院于 2016 年制定的清单 $^{[11]}$ 。运用全国范围的清单可详细计算杭州  $PM_{10}$  的长距离传输率。

1.2.3 CMAQ 模型 CMAQ 有 5 个模块: (1) 初始条件处理器,为模拟提供初始浓度场; (2) 边界条件处理器,为模拟提供边界浓度场; (3) 光解率处理器,提供区域光解速率; (4) 气象化学接口处理器,将WRF输出的气象场转换为下一步模拟所需的数据格式; (5) CMAQ 化学传输模型,CMAQ 的核心,运用大气物理化学模型计算区域传输率以及计算最终的污染物浓度。

本研究采用的 CMAQ 版本为 5.0.2,结合朗伯投影坐标系进行模拟,运用 3 层嵌套网格技术:第1层覆盖整个中国,坐标原点为 34°N,110°E,网格分辨率为 36 km,网格数为 173×136;第2 层覆盖中国东部,坐标原点为 32°N,116°E,网格分辨率为 12 km,网格数为 135×228;第3 层覆盖长江三角洲区域,坐标原点设置在杭州市所在的 30°N,120°E,网格分辨率为 4 km,网格数为 150×174。垂直方向上模拟的高度为 100 hPa,网格为 14 个,越是靠近地面网格越细。分别选择 CB05 和 AERO6 作为气相化学反应机理和气溶胶机理的模型参数化方案。

#### 2 结果和讨论

812

#### 2.1 首要污染物臭氧前体污染物 VOC

2.1.1 总挥发性有机化合物(TVOC)的全年趋势 由于杭州市臭氧质量浓度主要受其前体污染物 VOC的

控制<sup>[12]</sup>,因此通过观测值分析杭州市 VOC 体积分数的分布情况(图 1)。2016 年 7 月底至 9 月底,杭州市政府关停了市区绝大多数排放 VOC 的企业及餐饮店,所以 2016 年 8 和 9 月朝晖站的 TVOC 体积分数分别仅为 7.94 和 9.63 nL·L<sup>-1</sup>。同时间,下沙站的 TVOC 分别为 19.53 和 22.58 nL·L<sup>-1</sup>。可见杭州市中心的 TVOC 绝大多数是由工业源及生活源产生。图 1 显示:后 G20 时期,杭州市的 TVOC 体积分数呈现 9–11 月偏高,其他月份较为稳定的特点。2017 年,朝晖站和下沙站的 TVOC 年均体积分数分别为 27.62 和 29.53 nL·L<sup>-1</sup>,市中心和城郊结合部的 TVOC 质量分数差异不明显。2017 年 1–8 月,两站点 TVOC 体积分数均保持稳定;而 8–9 月,两站点的 TVOC 体积分数均呈现大幅增长态势;8–12 月波动起伏较大。根据 2017 年度杭州市气象数据,夏季 TVOC 较高是由于 7–8 月低降雨量减少了湿沉降以及城市热岛效应改变了大气环流并降低了平均风速,产生了不利于污染物扩散的条件;9–12 月的波动较大则是由于秋冬季的市政建设产生了大量的 TVOC。

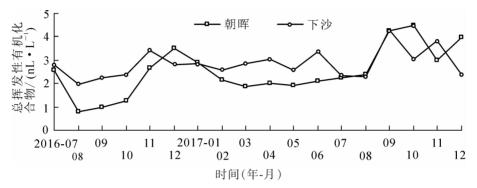


图 1 杭州市朝晖站和下沙站月均 TVOC 体积分数

Figure 1 Monthly average TVOC concentration at Zhaohui and Xiasha stations

2.1.2 VOC 种类和臭氧生成潜力 将 55 种 VOC 分成四大类,其中烷烃 29 种,烯烃 10 种,芳香烃 15 种以及乙炔。2017 年全年,朝晖站的烷烃、烯烃、芳香烃和乙炔分别占 TVOC 的 63.1%,11.2%,25.1%和 0.6%;下沙站的烷烃、烯烃、芳香烃和乙炔分别占 TVOC 的 65.6%,8.3%,24.8%和 1.3%。可见 2017 年杭州市区和城郊结合部的不同种类 VOC 在 TVOC 的占比大致相似。采用天文季节的四季等长划分方法,按照春(3-5 月),夏(6-8 月),秋(9-11 月),冬(12 月-翌年 2 月)划分四季,各季节不同种类 VOC 的占比如表 2 所示。由表 2 可见:除了春季的烷烃和烯烃之外,市区和城郊的不同属 VOC 排放占比并无太大差距。杭州市区春季烷烃质量浓度较少而烯烃偏高,城郊则正好相反。不同种类 VOC 的大气反应活性并不相同。单位体积分数的 VOC 生成臭氧的能力称为臭氧形成潜力(F)。

$$F = \sum_{i=1}^{N} V_i \times R_{\circ} \tag{1}$$

式(1)中: $V_i$ 为第i种 VOC 的体积分数占比;R为该种 VOC 的最大增量反应活性,由 CARTER<sup>[13]</sup>测量并估算。某一大类的 VOC 的总臭氧形成潜力等于所有种类 VOC 的臭氧形成潜力之和<sup>[14]</sup>。结果表明:后G20 时期朝晖站的总臭氧形成潜力比下沙站高出约 7.4%,即杭州市中心和城郊的 TVOC 对臭氧生成的贡献大致相等。朝晖站的烷烃、烯烃、芳香烃和乙炔分别占该站总臭氧形成潜力的 24.1%,41.5%,34.3%和 0.1%;下沙站的烷烃、烯烃、芳香烃和乙炔分别占该站总臭氧形成潜力的 28.1%,34.4%,37.3%和 0.2%。由此可见,在市区烯烃是生成臭氧最主要的前体物,其次为芳香烃;在城郊芳香烃是生

表 2 2017 年度各季节不同种类 VOC 排放比例

| Table 2 | Seasonal  | contribution | of different | subgroup | VOC in 20    | 17 |
|---------|-----------|--------------|--------------|----------|--------------|----|
| rabic 2 | Sugasuman | Comminument  | or uniterent | Subgroup | 1 O G III 20 | 1/ |

| 季节 | 烷烃排放比例/% |      | 烯烃排放比例/% |      | 芳香烃排放比例/% |      | 炔烃排放比例/% |     |
|----|----------|------|----------|------|-----------|------|----------|-----|
|    | 朝晖站      | 下沙站  | 朝晖站      | 下沙站  | 朝晖站       | 下沙站  | 朝晖站      | 下沙站 |
| 春  | 59.7     | 70.7 | 15.4     | 5.5  | 24.0      | 22.6 | 0.9      | 1.2 |
| 夏  | 73.1     | 69.3 | 9.6      | 8.0  | 16.6      | 21.3 | 0.7      | 1.4 |
| 秋  | 62.6     | 58.0 | 7.9      | 10.0 | 28.9      | 30.9 | 0.6      | 1.1 |
| 冬  | 60.4     | 65.2 | 10.2     | 8.8  | 28.9      | 24.4 | 0.5      | 1.6 |

成臭氧最主要的前体物,其次为烯烃。虽然烷烃在2个站点的质量浓度都是最高的,但是对于生成臭氧的贡献却比烯烃和芳香烃少。此外,后G20时期,在杭州市区和城郊间/对二甲苯、甲苯、乙烯、乙苯和丙烯依次为臭氧形成潜力值最大的单个种类VOC,所以控制这5种VOC对于降低杭州臭氧质量浓度至关重要。

#### 2.2 首要大气污染物 PM<sub>10</sub>

运用 WRF-CMAQ 大气模型,模拟了分别代表冬、春、夏、秋的 2017 年 1, 4, 7 和 10 月杭州市朝 晖站  $PM_{10}$  的质量浓度,以评估杭州市中心区域四季不同污染物跨区域传输比例以及不同本地排放源对本地排放  $PM_{10}$  的贡献率。

2.2.1 模型的验证对比和  $PM_{10}$  的时空分布 用分数偏差均值(B)和分数误差均值(E)评估 WRF-CMAQ 模拟的优劣:

$$B = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \frac{S - O}{O + S/2} \times 100\%; \tag{2}$$

$$E = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \frac{|S - O|}{O + S/2} \times 100\%_{\circ}$$
 (3)

式(2)~(3)中:n为模拟的次数;S为模拟值;O为观测值。BOYLAN等[15]定义:当模拟值  $B \le \pm 30\%$ 和 $E \le \pm 50\%$ 时,该大气模型可以被认为是精确的。对于朝晖站  $PM_{10}$ 的模拟结果显示:4个月的模拟值均为 $B \le \pm 20\%$ 和 $E \le \pm 35\%$ ,因此模拟的精度达到了国际上定量的要求。

图 2 为 2017 年 1, 4, 7, 10 月的平均  $PM_{10}$  质量浓度的时空分布,覆盖了包括杭州市在内的长江三角洲地区。由图 2 可见:杭州市的  $PM_{10}$  污染冬季最为严重,市区范围内出现了 2 个  $PM_{10}$  质量浓度大于 130  $\mu g \cdot m^{-3}$  的红色极值区域;春季  $PM_{10}$  污染开始缓解,夏季污染最轻,秋季  $PM_{10}$  质量浓度又开始回升。

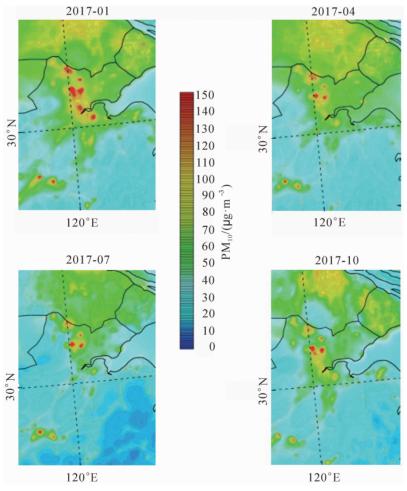


图 2 2017 年 1, 4, 7, 10 月长江三角洲 PM<sub>10</sub> 质量浓度的时空分布示意图 Figure 2 Time-spacing map of PM<sub>10</sub> over Yangtze River Delta in 2017

红色区域显示杭州市区  $PM_{10}$  质量浓度极大值区域,为市中心与位于城东的大江东工业园区和建筑工地,与实际情况相符。从长江三角洲范围来看, $PM_{10}$  质量浓度的高值区域位于工业城市上海和苏州及其附近,而位于杭州市南方的浙南山区普遍  $PM_{10}$  较低。

2.2.2 长距离传输和本地污染源对  $PM_{10}$  的贡献率 采用置零法[16],通过关闭杭州市本地总污染源清单以及分别关闭本地不同污染源清单的方式,来评估 2017 年 1, 4, 7, 10 月长距离传输和本地源对  $PM_{10}$  的贡献率。长距离传输的计算公式为:

$$P_i = \frac{C_{\text{zero}}}{C_b} \times 100\%_{\,\circ} \tag{4}$$

式(4)中: $P_i$ 为第 i个月长距离传输所占的比例; $C_b$ 为打开全国所有污染源的模拟值; $C_{zero}$ 为关闭杭州本地总污染源清单后的模拟值。结果显示:在杭州市中心区域,2017年1,4,7和10月的 $PM_{10}$ 中分别有45%,50%,32%和48%源于杭州市之外的污染源长距离跨区域传输。跨区域传输的 $PM_{10}$ 除7月外,其他3个月都接近或达50%。因此要防控 $PM_{10}$ ,仅仅控制杭州本地的污染源是不够的。图3显示:当关停杭州市本地 $PM_{10}$ 污染源之后,杭州市区的 $PM_{10}$ 污染程度有所下降,但仍较为严重。图4显示:2017年杭州市秋冬季节的主导风向为正北风,分别占总风向频率的40%和28%;夏季40%为西南风,且平均风速全年最低;春季风向较为多变,其中正北方风向占比20%。由于杭州市 $PM_{10}$ 主要排放源皆位于市区的北方,因此春秋冬三季 $PM_{10}$ 通过气团水平位移的长距离区域传输比例(45%~50%)比夏季(32%)要高,与模拟值相符:春秋冬季跨区域传输的 $PM_{10}$ 主要源于杭州市区的北方,夏季长距离传输的 $PM_{10}$ 主要源于市区的西南方。图2中 $PM_{10}$ 各月的扩散方向符合图4各季的风向。

WRF-CMAQ 清单中,把污染源分成农业源(包括秸秆燃烧)、工业源、生活源和交通源。通过置零法逐个关停本地4类污染源,分析杭州市本地污染源对PM<sub>10</sub>的贡献。计算公式为:

$$P_{j} = \frac{C_{b} - C_{j}}{C_{b} - C_{mean}} \times 100\%_{\,\circ} \tag{5}$$

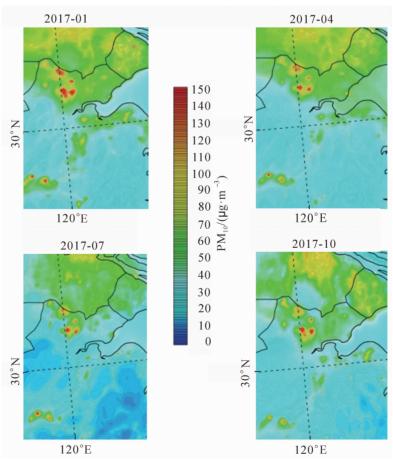


图 3 2017 年 1, 4, 7, 10 月关停杭州市本地污染源后的 PM<sub>10</sub> 时空分布示意图 Figure 3 Time-spacing map of PM<sub>10</sub> in 2017 when Hangzhou local sources are shut down

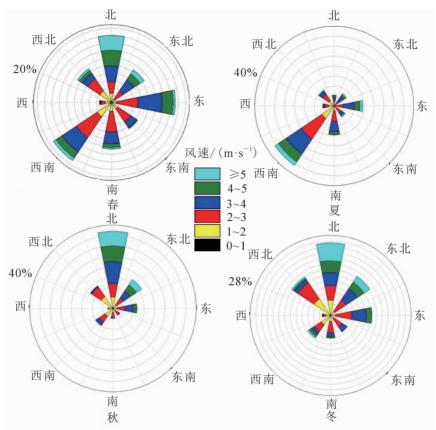


图 4 杭州市 2017 年风玫瑰图

Figure 4 Wind-rose over Hangzhou in 2017

式(5)中: $P_j$  为第j 个本地污染源对  $PM_{10}$  的贡献率; $C_j$  为关停第j 个本地污染源后的  $PM_{10}$  质量浓度。如表 3 所示:2017 年全年杭州市中心区域的 4 类污染源贡献率基本稳定。对  $PM_{10}$  贡献最大的为工业源,占 62.6%;其次是交通源,占 27.8%。因此,要控制杭州市区的  $PM_{10}$  污染,应着重控制交通源和工业源。计算显示,当杭州本地的工业源和交通源在 2016 年的基础上分别减排 15%和 5%时,杭州市中心  $PM_{10}$  的年均质量浓度可低于  $70~\mu g \cdot m^{-3}$ ,达到 GB~3095-2012 二类区标准。

表 3 杭州本地污染源对市中心 PM<sub>10</sub> 的贡献率

| Table 3 | Hangzhou  | local | sector | contribution | for | PM <sub>10</sub> at | city | center |
|---------|-----------|-------|--------|--------------|-----|---------------------|------|--------|
| Table 5 | Trangznou | 10041 | SCCIOI | Commission   | 101 | 1 111 (0 at         | City | CCITCI |

| H //\ | 贡献率/% |      |     |      |  |  |  |  |
|-------|-------|------|-----|------|--|--|--|--|
| 月份    | 农业源   | 工业源  | 生活源 | 交通源  |  |  |  |  |
| 1     | 2.6   | 61.1 | 8.4 | 27.9 |  |  |  |  |
| 4     | 2.1   | 62.6 | 6.7 | 28.6 |  |  |  |  |
| 7     | 3.0   | 60.2 | 7.2 | 29.6 |  |  |  |  |
| 10    | 1.5   | 66.4 | 6.8 | 25.3 |  |  |  |  |
| 平均    | 2.3   | 62.6 | 7.3 | 27.8 |  |  |  |  |

### 3 结论与讨论

本研究通过观测值分析,并结合 WRF-CMAQ 的数值模拟,提出了杭州市后 G20 前亚运会时期,管控市区最主要大气污染物臭氧和 PM<sub>10</sub> 的方法。结论如下:在杭州市中心,烯烃是生成臭氧的最主要的 VOC 大类,其次为芳香烃和烷烃,最后为炔烃;在城郊结合部,芳香烃是生成臭氧的最主要的 VOC 大类,其次为烯烃和烷烃,最后为炔烃。其中,乙烯、间/对二甲苯、丙烯和乙苯依次为生成臭氧最主要的 5 种 VOC。由于杭州的臭氧主要受到 VOC 的影响,管控这 5 种 VOC 是降低杭州市夏季臭氧质量浓度最有效的方法。2017 年杭州市中心春夏秋冬四季的 PM<sub>10</sub> 中分别有 50%,32%,48%和 45%源于杭州市之外污染源的长距离传输。其中,春秋冬三季通过长距离传输来到杭州市区的 PM<sub>10</sub> 主要源于市区的北

方,而夏季主要源于市区的西南方。2017 年杭州市区的工业源、交通源、生活源与农业源对杭州本地排放的  $PM_{10}$  的贡献率分别为 62.6%,27.8%,7.3%和 2.3%。当杭州本地的工业源和交通源在 2016 年的基础上分别减排 15%和 5%时,杭州市中心的  $PM_{10}$  年均质量浓度可低于 70  $\mu g \cdot m^{-3}$ ,达 GB 3095–2012 对二类区要求。

由于 TVOC 约 1 200 种,在空气污染物中常见的约 100~110 种。因此,未来的工作重点是,除了对含碳氢元素的烃类 VOC 进行测量,也应对酮类、醛类、醚类等含氧 VOC,以及卤代烃类的 VOC 进行测量,从而可以提出更完备的臭氧防控方案。此外,用于此次模拟的 PM<sub>10</sub> 清单的空间分辨率为 4 km,虽然模拟的精度达到了国际标准,但是对杭州城市内小范围的模拟还显粗糙。因此,如何通过制作分辨率更高的清单以及实时更新城市下垫面数据,计算杭州主城区内不同街道之间的区域传输率是下一步工作的难点和重心。

#### 4 参考文献

- [1] XIAO Huadong, SUN Jing, BIAN Xiaofeng, et al. GPU acceleration of the WSM6 cloud microphysics scheme in GRAPES model [J]. Comput Geosci, 2013, **59**: 156 162.
- [2] FOUNTOUKIS C, MARTÍN-POMARES L, PEREZ-ASTUDILLO D, et al. Simulating global horizontal irradiance in the Arabian Peninsula: sensitivity to explicit treatment of aerosols [J]. Sol Energ, 2018, 163: 347 355.
- [3] MOHR C, TAO Weikuo, CHERN J, et al. The NASA goddard multi-scale modeling framework-land information system: global land/atmosphere interaction with resolved convection [J]. Environ Modell Software, 2013, 39: 103 115.
- [4] DENG Tao, CHEN Yang, WAN Qilin, et al. Comparative evaluation of the impact of GRAPES and MM5 meteorology on CMAQ prediction over Pearl River Delta, China [J]. Particuology, 2018, 40: 88 – 97.
- [5] KISHNE A, YIMAN Y, MORGAN C, et al. Evaluation and improvement of the default soil hydraulic parameters for the Noah Land Surface Model [1]. Geoderma. 2017. 285: 247 259.
- [6] DONG Haotian, CAO Shuyang, TAKEMI T, et al. WRF simulation of surface wind in high latitudes [J]. J Wind Eng Ind Aerodyn, 2018, 179: 287 296.
- [7] ZEPKA G S, PINTO O, SARAIVA A C V. Lightning forecasting in southeastern Brazil using the WRF model [J]. *Atmos Res*, 2014, **135/136**: 344 362.
- [8] 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]. Atmos Chem Phys, 2006, 6(11): 3181 3210.
- [9] ZHANG Q, STREETS D G, CARMICHAEL G R, et al. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission [J]. Atmos Chem Phys, 2009, 9(14): 5131 5153.
- [10] LI Meng, ZHANG Qiang, KUROKAWA J, et al. MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP [J]. Atmos Chem Phys, 2017, 17: 935 963.
- [11] HUANG Chuangfeng, CHEN Changhong, LI L, et al. The study of emission inventory of anthropogenic air pollutants and VOC species in the Yangtze River Delta region, China [J]. Atmos Chem Phys., 2011, 11(1): 4105 4120.
- [12] LI Kangwei, CHEN Linghong, YING Fang, et al. Meteorological and chemical impacts on ozone formation: a case study in Hangzhou, China [J]. Atmos Res, 2017, 196(1): 40 52.
- [13] CARTER W P L. Development of ozone reactivity scales for volatile organic compounds [J]. Air Waste, 1994, 44 (7): 881 899.
- [14] WANG Qiaoli, LI Sujing, DING Minli, et al. VOC emission characteristics and priority control analysis based on VOC emission inventories and ozone formation potentials in Zhoushan [J]. Atmos Environ, 2018, 182: 234 241.
- [15] BOYLAN J, RUSSEL A. PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models [J]. *Atmos Environ*, 2006, **40**(26): 4946 4959.
- [16] CHO S, MORRIS R, MCEACHEM P, et al. Emission sources sensitivity study for ground-level ozone and PM<sub>25</sub> due to oil sands development using air quality modeling system: part II source apportionment modeling [J]. Atmos Environ, 2012, 55: 542 556.