

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第11期

Vol.36 No.11

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

北京市大气气溶胶中糖类化合物的组成及来源	梁林林, Guenter Engling, 段凤魁, 马永亮, 程远, 杜祯宇, 贺克斌 (3935)
北京大气 PM _{2.5} 与惰性 SiO ₂ 的生物毒性比较	刘梦娇, 黄艺, 文航, 邱国玉 (3943)
APEC 期间北京及周边城市 AQI 区域特征及天气背景分析	高庆先, 刘俊蓉, 王宁, 李文涛, 高文康, 苏布达 (3952)
2000~2014 年北京市 SO ₂ 时空分布及一次污染过程分析	程念亮, 张大伟, 李云婷, 陈添, 李金香, 董欣, 孙瑞雯, 孟凡 (3961)
利用 SPAMS 研究石家庄市冬季连续灰霾天气的污染特征及成因	周静博, 任毅斌, 洪纲, 路娜, 李治国, 李雷, 李会来, 靳伟 (3972)
长江三角洲夏季一次典型臭氧污染过程的模拟	张亮, 朱彬, 高晋徽, 康汉青, 杨鹏, 王红磊, 李月娥, 邵平 (3981)
珠江三角洲区域污染分布及其垂直风场特征	刘建, 吴兑, 范绍佳 (3989)
春季黄渤海海水中尿素分布特征及溶解态氮的组成	李志林, 石晓勇, 张传松 (3999)
洱海流域农业用地与入湖河流水质的关系研究	庞燕, 项颂, 储昭升, 薛力强, 叶碧碧 (4005)
大辽河主要污染源营养盐输入特征	马迎群, 张雷, 赵艳民, 秦延文, 潘晓雪, 曹伟, 刘志超, 杨晨晨 (4013)
三峡库区大宁河沉积物营养盐时空分布及其与叶绿素的相关性分析	张永生, 李海英, 任家盈, 卢佳 (4021)
不同地质背景水库区夏季水-气界面温室气体交换通量研究	李建鸿, 蒲俊兵, 孙平安, 袁道先, 刘文, 张陶, 莫雪 (4032)
周丛生物存在下不同水层氧化还原带的分布及其与微生物的关联	王逢武, 刘玮, 万娟娟, 杨嘉利, 刘雪梅, 向速林, 吴永红 (4043)
华北低平原区地下水中氟分布特征及形成原因: 以南皮县为例	孔晓乐, 王仕琴, 赵焕, 袁瑞强 (4051)
某市典型地段地表水及地下水中氟喹诺酮类抗生素分布特征	崔亚丰, 何江涛, 苏思慧, 杨蕾, 乔肖刚 (4060)
乳山湾邻近海域沉积物中好氧氨氧化微生物分布特征	贺惠, 甄毓, 米铁柱, 张玉, 付璐璐, 于志刚 (4068)
青木关地下河中溶解态甾醇来源及迁移、转化特征	梁作兵, 沈立成, 孙玉川, 王尊波, 江泽利, 张媚, 廖昱, 谢正兰, 张远瞩 (4074)
多环芳烃在岩溶地下表层沉积物-水相的分配	蓝家程, 孙玉川, 肖时珍 (4081)
降雨期间岩溶地下河溶解态多环芳烃变化特征及来源解析	江泽利, 孙玉川, 王尊波, 梁作兵, 任坤, 谢正兰, 张媚, 廖昱 (4088)
重庆南山老龙洞地下河系统重金属分布、迁移及自净能力	任坤, 梁作兵, 于正良, 张宇, 王蓉, 袁道先 (4095)
三峡水库消落带植物汞的分布特征	梁丽, 王永敏, 李先源, 唐振亚, 张翔, 张成, 王定勇 (4103)
物理和生物组合扰动对底泥微界面过程的影响	王忍, 李大鹏, 黄勇, 刘焱见, 陈俊 (4112)
超声、过硫酸钾协同去除水中诺氟沙星的效果	魏红, 史京转, 李佳霖, 李克斌, 赵琳, 韩凯 (4121)
载银活性炭活化过硫酸钠降解酸性橙 7	王忠明, 黄天寅, 陈家斌, 李文卫, 张黎明 (4127)
TiO ₂ 降解迪美唑的动力学及活性物质分析	陈冬梅, 喻泽斌, 孙蕾, 黄俊, 高丽红, 李明洁 (4135)
单宁酸铁吸附去除水中无机氮的性能与机制研究	张瑞娜, 李琳, 刘俊新 (4141)
间歇曝气式膜生物反应器对养猪沼液中兽用抗生素的去除特性	丁佳丽, 刘锐, 郑炜, 宋小燕, 余卫娟, 叶朝霞, 陈吕军, 张永明 (4148)
单级和两级串联臭氧-生物活性炭深度处理垃圾渗滤液比较研究	杜安静, 范举红, 刘锐, 邱松凯, 文晓刚, 陈吕军 (4154)
水力停留时间和溶解氧对陶粒 CANON 反应器的影响	王会芳, 付昆明, 左早荣, 仇付国 (4161)
氨氮对 AOB 抑制的形态及规律	崔剑虹, 李祥, 黄勇, 朱亮, 杨朋兵 (4168)
厌氧氨氧化与反硝化协同脱氮处理城市污水	张诗颖, 吴鹏, 宋吟玲, 沈耀良, 张婷 (4174)
同步硝化反硝化耦合除磷工艺的快速启动及其运行特征	冷璐, 信欣, 鲁航, 唐雅男, 万利华, 郭俊元, 程庆锋 (4180)
HCO ₃ ⁻ 对部分亚硝化-厌氧氨氧化联合工艺脱氮效能的影响	李祥, 陈宗姮, 黄勇, 袁怡, 刘忻, 张大林 (4189)
ABR 耦合 CSTR 一体化工艺好氧颗粒污泥亚硝化性能调控及稳态研究	巫恺澄, 吴鹏, 沈耀良, 李月寒, 王建芳, 徐乐中 (4195)
活化过硫酸盐对市政污泥调理效果的影响	徐鑫, 濮文虹, 时亚飞, 虞文波, 张诗楠, 宋健, 张昊, 何姝, 杨昌柱, 杨家宽 (4202)
温度分化对 APBR 反应器性能及产甲烷菌群落的影响	谢海迎, 汪鑫, 李牧原, 阎叙西, 五十岚泰夫, 罗锋 (4208)
污染场地修复技术筛选方法及应用	白利平, 罗云, 刘俐, 周友亚, 颜增光, 李发生 (4218)
基于 Monte Carlo 模拟的土壤重金属综合风险评价与案例分析	杨阳, 代丹, 蔡怡敏, 陈卫平, 侯瑜, 杨锋 (4225)
大港工业区土壤重金属污染及生态风险评价	张倩, 陈宗娟, 彭昌盛, 李发生, 谷庆宝 (4232)
缙云山不同土地利用方式对土壤团聚体微生物量碳氮的影响	李增全, 江长胜, 郝庆菊 (4241)
不同秸秆翻埋还田对旱地和水田土壤微生物群落结构的影响	兰木岭, 高明 (4252)
生草果园土壤微生物群落的碳源利用特征	杜毅飞, 方凯凯, 王志康, 李会科, 毛鹏娟, 张向旭, 王婧 (4260)
不同有机物料对东南景天修复重金属污染土壤效率的影响	姚桂华, 徐海舟, 朱林刚, 马嘉伟, 柳丹, 叶正钱 (4268)
组配改良剂对土壤-蔬菜系统铅镉转运调控的场地研究	朱维, 刘丽, 吴燕明, 周航, 邓贵友, 杨文骏, 彭佩钦, 曾敏, 廖柏寒 (4277)
水稻品种及典型土壤改良措施对稻米吸收镉的影响	王美娥, 彭驰, 陈卫平 (4283)
大庆湖泊群水体和淡水鱼中多环芳烃污染特征及生态风险评估	王晓迪, 臧淑英, 张玉红, 王凡, 杨兴, 左一龙 (4291)
覆盖层甲烷氧化动力学和甲烷氧化菌群落结构	邢志林, 赵天涛, 高艳辉, 何芝, 杨旭, 彭绪亚 (4302)
阳极内添加阳离子交换树脂提升铝压“三合一”膜电极 MFC 性能	梅卓, 张哲, 王鑫 (4311)
应用基于单克隆抗体的免疫传感器检测环境中的茚和苯并茚	李鑫, 乔琰, 钟国祯 (4319)
《环境科学》征订启事 (4224) 《环境科学》征稿简则 (4318) 信息 (4080, 4173, 4290, 4301)	

2000~2014年北京市SO₂时空分布及一次污染过程分析

程念亮^{1,2,4}, 张大伟^{1*}, 李云婷¹, 陈添³, 李金香¹, 董欣¹, 孙瑞雯¹, 孟凡^{2,4}

(1. 北京市环境保护监测中心, 北京 100048; 2. 北京师范大学水科学研究院, 北京 100875; 3. 北京市环境保护局, 北京 100048; 4. 中国环境科学研究院环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012)

摘要: 根据2000~2014年北京市SO₂监测数据, 系统分析了SO₂时空分布特征并采用数值模式(CAM_x)模拟分析了一次重污染过程中北京市SO₂来源. 结果表明, 2014年与2000年相比北京市SO₂年均浓度累计约降低69%, SO₂年均浓度的变化率为 $-3.5 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$; 北京市SO₂的月均浓度呈U型分布, 季节分布上整体呈现出冬季>春季>秋季>夏季的特征, 采暖季SO₂浓度明显高于非采暖季; 空间分布上北部及西部山区SO₂浓度水平明显低于中心城区及西南、东南部地区, 受减排措施影响较大的石景山、东四、通州监测点的SO₂浓度降低明显; 在2014年1月14~18日一次重污染过程中北京SO₂存在明显的区域输送, PAST源示踪技术初步计算显示外来源对北京SO₂浓度的贡献率为83%, 其中北京周边高架点源电厂贡献占21%, 北京4家主要燃煤电厂对全市SO₂浓度贡献率约为3.5%.

关键词: SO₂; 时空分布; 北京; CAM_x; 污染事件

中图分类号: X511 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)11-3961-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.2015.11.004

Analysis About Spatial and Temporal Distribution of SO₂ and An Ambient SO₂ Pollution Process in Beijing During 2000-2014

CHENG Nian-liang^{1,2,4}, ZHANG Da-wei^{1*}, LI Yun-ting¹, CHEN Tian³, LI Jin-xiang¹, DONG Xin¹, SUN Rui-wen¹, MENG Fan^{2,4}

(1. Beijing Municipal Environmental Monitoring Center, Beijing 100048, China; 2. College of Water Sciences, Beijing Normal University, Beijing 100875, China; 3. Beijing Environmental Protection Bureau, Beijing 100048, China; 4. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: Spatial and temporal distribution of SO₂ during 2000-2014 was all analyzed based on the SO₂ monitoring data that Beijing Municipal Environmental Monitoring Center released and the formation mechanism of a typical air pollution episode in January 2014 was also investigated by combining numerical model CAM_x. Analysis results showed that mass concentration of $\rho(\text{SO}_2)$ in Beijing in 2014 decreased 69% compared to that in 2000 with an annual gradient from 2000 to 2014 of $-3.5 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$. Monthly average concentration of SO₂ changed in a U shape curve and from the lowest to the highest, and seasonal variations of SO₂ concentrations were as follows: winter > spring > autumn > summer; concentration of SO₂ in heating season was significantly higher than that in non heating season. Annual average concentration of SO₂ was lower in northern and western regions while higher in six city area and southern area. Concentrations of SO₂ at Shijingshan, Dongsì, Tongzhou monitoring sites were significantly decreased related to SO₂ emission reduction measures. During a heavy air pollution process in January 14-18th 2014 there was obviously SO₂ regional transportation and model simulation analysis based on PAST showed that the contribution of SO₂ regional transport to Beijing was 83% with elevated power plants surrounding Beijing accounting for 21% and the four major Beijing power plants contributing about 3.5% to the SO₂ concentration during this heavy air pollution process.

Key words: SO₂; spatial and temporal distribution; Beijing; CAM_x; serious pollution incident

SO₂是大气中重要的污染物之一, 主要来源于火山爆发和化石燃料燃烧^[1]; 高浓度的SO₂一方面污染环境, 通过气粒转化氧化形成硫酸盐气溶胶, 降低大气能见度, 通过其直接和间接辐射强迫作用影响全球和区域的气候和环境变化^[2]; 另一方面SO₂也会造成大面积酸雨, 降低农作物产量和破坏生态系统.

作为我国的首都, 北京市空气质量不仅关系到居民的生活质量和身体健康, 而且影响到国家形象和社会的可持续发展. 目前北京市对SO₂的控制已

取得一定的成效, 其年均浓度逐渐降低, 但高浓度SO₂污染事件还时有发生. 近年来, 北京市大气污染呈现明显的复合型、区域型特征, 周边高浓度污染物在大气环流的作用下极易发生向北京输送的现

收稿日期: 2015-04-28; 修订日期: 2015-06-03

基金项目: 北京市科技计划项目(Z131100006113009); 环境保护公益性行业科研专项(201409005); 国家科技支撑计划项目(2014BAC23B03); 北京市空气质量达标规划项目(Z131100005613046)

作者简介: 程念亮(1987~), 男, 博士研究生, 工程师, 主要研究方向为大气环境预警预报及数值模拟, E-mail: 15001195306@163.com

* 通讯联系人, E-mail: zhangdawei@bjmeme.com.cn

象^[3];北京及周边电厂源具有排放量大、排放口高等特点,在主导风输送作用下对下风向地区特别是北京地区空气质量造成较大影响^[4]。

国内外对北京市 SO₂ 浓度现状、影响因素及不同排放源的影响做了大量研究。Kanada 等^[5]分析了北京市 SO₂ 浓度、排放及减排效益;Quan 等^[6]分析了 2012~2013 年冬季重污染过程中 SO₂ 浓度及二次转化机制;刘洁等^[7]利用 2006 年北京上甸子大气本底站和城区宝联环境观测站观测数据分析了 SO₂、NO_x、O₃ 和 PM_{2.5} 的浓度变化,发现采暖季 NO_x、SO₂ 浓度城郊差异最大,城区是本底的 4~6 倍;吉东生等^[8]对比分析了北京与伦敦 2004 年 8 月~2005 年 12 月 SO₂ 体积分数发现北京市 SO₂ 体积分数明显高于伦敦,平均值为 $(19.5 \pm 21.8) \times 10^{-9}$;孙扬等^[9]指出北京市大气 SO₂ 浓度随天气形势而变化,海平面气压与 SO₂ 浓度变化密切相关;孟晓艳等^[10]利用 HYSPLIT 后向轨迹数值模拟结果和 OMI 卫星反演分析了北京及其周边地区的 SO₂ 浓度的变化过程及输送特征,发现周边地区 SO₂ 长距离输送对北京站点的贡献不能忽视;黄青等^[11]模拟研究了 2005 年采暖期间近北京地区电厂源排放对北京市空气质量的影响,发现影响北京城区 SO₂ 浓度的电厂排放源主要来自张家口、唐山、天津、石家庄、廊坊和衡水等地区,这些地区占 SO₂ 浓度总贡献值的 83.2%;颜鹏等^[12]发现每年北京受周边显著影响(外来输送率 30% 以上)的日数接近或超过 1 个月;陈义珍等^[13]利用 ATMOS 长距离传输模型研究了 2000 年现有电厂源对北京市 SO₂ 年均质量浓度影响,发现京外电厂源对年均质量浓度影响的平均值为 $5.95 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,占 58.3%;薛文博等^[14]应用 CMAQ 空气质量模型定量分析了电力行业多污染物协同控制与区域复合型大气污染之间的定量关系发现平均每减排 1 t SO₂ 可减少 0.2~0.3 t 硫沉降;Hao 等^[15]运用 CALPUFF 模型研究了北京市 2008 年电厂源排放对周边区域大气环境的年均贡献发现北京电厂对附近区域 SO₂ 浓度影响较大且对全市年均浓度贡献约 5.3%;伯鑫等^[16]采用 CALPUFF 模式模拟了 2011 年京津冀火电行业减排后污染物对北京空气质量的影响发现,减排后火电行业对各城市 SO₂ 年均贡献浓度最大值降低 46.34%。

这些研究多基于单个站点或某个研究时段,且所使用的研究数据时空分辨率较粗,对北京市长时

间序列的 SO₂ 时空分布及近期高浓度 SO₂ 污染事件研究较少,本研究利用北京市环境保护监测中心 2000~2014 年多个站点 SO₂ 逐时浓度监测数据系统分析了北京市 SO₂ 时空分布特征及一次重污染过程中 SO₂ 的来源及成因,以期管理部门提供准确、及时、全面的信息。

1 材料与方法

1.1 站点分布

京津冀地区位于东经 113°27'~119°50',北纬 36°05'~42°40'之间,东临渤海、西为太行山地,北为燕山山地,地势西北高、东南低,总面积 21.54 万 km²,属温带大陆性季风气候,四季分明,夏季高温多雨,冬季寒冷干燥。北京市则位于东经 115.7°E~117.4°E,北纬 39.4°N~41.6°N,地处华北平原西北端,地形为簸箕型,三面环山,平均海拔 43.5 m,总面积 16 410.54 km²,国土面积 62% 为山区,全市森林覆盖率为 37.6%,近 10 年年降水量平均不足 450 mm,年均降水的 80% 集中在夏季 6、7、8 这 3 个月^[17]。

天津、河北地区监测数据为中国环境监测总站发布的逐时浓度数据(<http://113.108.142.147:20035/emcpublish/>),天津市监测站点共计 15 个,河北省监测站点共计 53 个,北京市监测数据来自北京市的空气质量地面自动监测网络,监测站点共计 35 个(见图 1),包括 1 个城市清洁对照点,23 个城市环境评价点,6 个区域背景传输点,5 个交通污染监控点;35 个站点分布在城六区(东城、西城、朝阳、海淀、丰台、石景山);西北部(昌平、延庆);东北部(怀柔、密云、平谷、顺义);东南部(通州、大兴、亦庄);西南部(房山、门头沟),覆盖所有区县,包括区域背景、郊区、城镇、交通干道、居住区等不同的环境类型,所有站点全部经过 GPS 定位^[18,19]。

1.2 监测仪器

大气自动监测网络采用 Thermo Fisher 42C 化学发光 NO-NO₂-NO_x 分析仪监测 NO 和 NO₂ 浓度,该分析仪最低检测限 0.05×10^{-9} (体积分数),零漂小于 $0.025 \times 10^{-9}/24 \text{ h}$,跨漂: $\pm 1\%/24 \text{ h}$ 。采用基于气体滤波红外吸收法 Thermo Fisher 48C 分析仪测量 CO 浓度,仪器最低检测限为 40×10^{-9} (体积分数),零漂小于 $100 \times 10^{-9}/24 \text{ h}$,跨漂为 $\pm 1\%/24 \text{ h}$ 。SO₂ 分析仪为美国 TE-43C 型分析仪,仪器的标定系统由 111 型零空气发生器 (TEI 111) 和 146 型多点

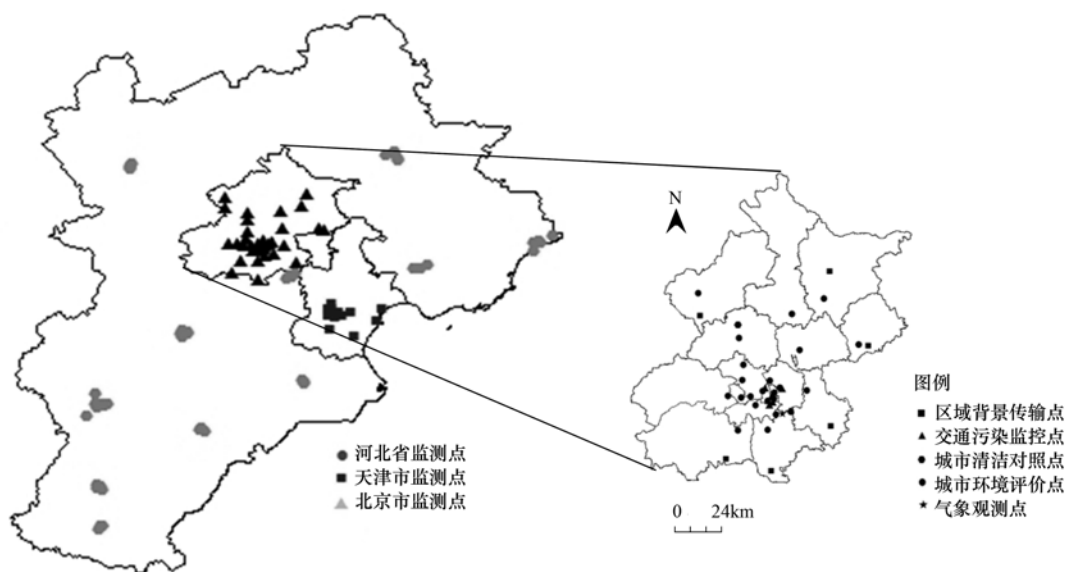


图1 监测站分布和分类

Fig. 1 Distribution and classification of observation sites

校准仪 (TEI, 146C) 组成。仪器是基于 SO₂ 分子吸收紫外线, 并能被一定波长的紫外线激发, 当被激发的 SO₂ 分子返回到基态时释放出波峰为 330 nm 的特征荧光, 光的强度与 SO₂ 的浓度呈线性正相关, 检测其光强即可对 SO₂ 定量测定。该型仪器最低检测限 (体积分数) 0.06×10^{-9} , 零漂小于 0.2×10^{-9} (24 h), 跨漂 $\pm 1\% / 7$ d。采用基于微量振荡天平法的 Thermo 1405F 系列仪器监测 PM_{2.5} 浓度, 24 h 连续采样, 设备定期检查并及时维护保养。标准气体由国家计量科学研究院提供, 操作流程严格按照文献 [20] 进行, 每天 24 h 连续进行采样, 设备由技术人员定期检查并及时维护保养, 在 1 a 的监测时间内有效数据捕获率超过 95%。气象资料为北京市气象台地面观测数据 (<http://cdc.cma.gov.cn/>), 仪器为荷兰 WAISALA 公司的 WXT520 气象观测仪。

1.3 模式设置与验证

综合空气质量模式 CAM_x^[21] 中心网格点坐标为 35°N、110°E, 受计算资源等条件制约, 采用单层网格, 水平分辨率为 12 km, 总网格数为 400 × 320 个, 模拟区域覆盖京津冀及周边地区; 使用兰博托地图投影, 标准纬线为 24°N 和 46°N。在垂直方向上设置为 20 层粗网格, 其中 8 层分布于 1 km 以下, 其中近地面层高度约 35 m, 以便更好地分析大气边界层结构。模式第一次运行时模拟预测 5 d 的初始场, 模式的后续初始场采用前一时次的预测输出结果。CAM_x 模式水平平流方案采用 PPM 数值计算方法, 垂直对流计算采用隐式欧拉方案, 运用 K 理论计算水平扩

散, 气相化学机制为 SAPRC99 机制, 采用 EBI 计算方法^[22]。运用 CAM_x 中的 PSAT 技术对 SO₂ 进行源-受体关系分析, PSAT 示踪技术避免了源关闭忽略非线性化学过程所造成的浓度偏差, 已经在很多研究结果中得到应用^[23]。为建立污染源与环境受体间空间传输矩阵, 将模拟区域分为 3 个分区 (即北京市为 1 个区域, 天津、河北为 1 个区域, 其它一个区域), 将污染源分为 2 个行业 (电厂及其他), 利用 SO₂ 贡献来源识别技术模拟分析不同区域及电厂污染源排放对北京市一次 SO₂ 污染过程的贡献。

采用 ARW-WRF3.2^[24] 模拟 2014 年京津冀及周边地区气象场, WRF 模式的中心点坐标设为 35°N、110°E, 水平网格距为 12 km, 与 CAM_x 模式对应; 垂直层次均为 35 层; 气象背景场和边界资料为 NCAR (National Center for Atmospheric Research) 和 NCEP (National Centers for Environmental Prediction) 的再分析逐日资料 FNL, 分辨率为 1° × 1°, 时间分辨率是 6 h; 地形和下垫面输入资料分别来自 USGS 30 s 全球地形和 MODIS 下垫面分类资料; 使用气象前处理模块 WRF2CAM_x 将 WRF 的输出结果插值到 CAM_x 模型区域和网格上并转为 CAM_x 可识别接收的格式。

目前全国没有一套官方的排放源清单, 研究运用陆地生态系统估算模型 MEGAN^[25] 处理天然源, 人为源 (BC、OC) 等排放数据则采用 2010 年清华大学 MEIC^[26] 排放清单, 而 SO₂、NO_x、PM₁₀、PM_{2.5} 排放数据则为 2013 年北京市污染源普查数据, NH₃ 排

放数据取自 2010 年日本国立环境研究所开发的亚洲地区 REAS 排放清单;整合、处理后的天然源、人为源排放清单共同输入到排放源处理模型 SMOKE,形成系统的排放源文件.本研究计算的 2013 年北京市总 SO₂ 排放量约为 8.7 × 10⁴ t,电厂排放量约为 9 900 t,以 4 个燃煤热电厂为主,包括大唐高井热电厂、京能石景山热电厂、国华热电厂、华能热电厂.天津、河北总 SO₂ 排放量约为 150 × 10⁴ t,电厂排放量约为 36.3 × 10⁴ t,全国 SO₂ 排放量约为 2 044 × 10⁴ t,电厂排放量约为 262 × 10⁴ t.图 2 显示了京津冀地区电厂的位置.



图 2 2013 年京津冀燃煤电厂分布
Fig. 2 Location of thermal power plants
in Beijing-Tianjin-Hebei region

为验证 CAM_x 模型的模拟效果,选取北京 2014 年 1 ~ 12 月 SO₂、PM_{2.5} 观测数据与 CAM_x 输出结果进行比对,图 3 为预报值与观测值的时间序列,可以看出模拟值与观测值的时间序列变化较为一致,模拟值均在观测值的 0.5 ~ 2 倍的范围内,模拟结果略微低估,这可能与排放源的不确定性、模型物理化学过程的不确定性有关^[27].

在时间序列图分析的基础上,进一步统计了观测值与模拟值的标准平均偏差(NMB)、标准平均误差(NME)、平均相对偏差(MFB)、平均相对误差

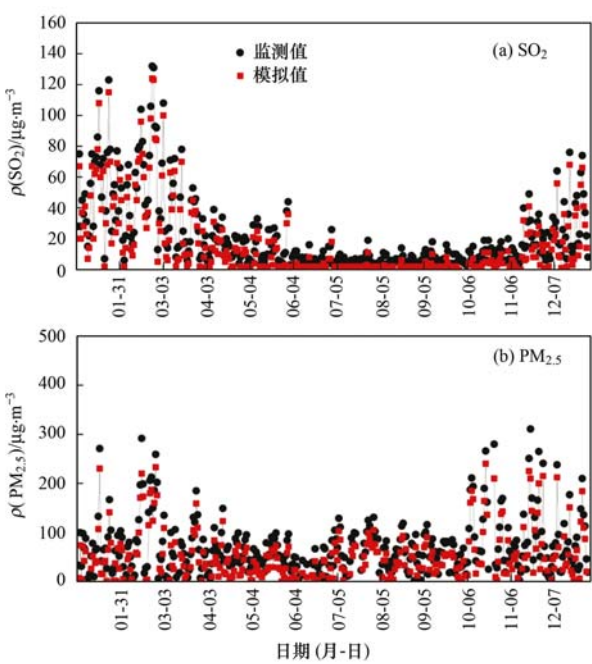


图 3 2014 年北京市 SO₂、PM_{2.5} 模拟值与实测值对比
Fig. 3 Comparison between measured and simulated
data of SO₂ and PM_{2.5} in Beijing in 2014

(MFE) 和相关系数 *R*, 结果见表 1. 经计算 $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 、 $\rho(\text{SO}_2)$ 模拟值与监测值的相关系数分别为 0.74、0.82, NMB 在 -16% ~ -8% 之间, NME 在 17% ~ 20% 之间, MFB 在 -18% ~ -11% 之间, MFE 在 13% ~ 15% 之间. Lu 等^[28]应用 CMAQ 对中国地区的模拟结果显示 SO₂ 的 NMB 和 NME 分别为 -51.85% ~ -12.7% 和 68.1% ~ 77.3%; 李莉等^[29]用 CMAQ 模拟了长三角近地面二次污染物 O₃ 及 PM₁₀ 的浓度,验证结果显示 O₃ 及 PM₁₀ 的模拟值与监测值的相关系数分别为 0.77 和 0.52,模型对 PM₁₀ 小时平均浓度的估算偏低 10%,标准偏差为 46%; 王茜^[30]用 CMAQ 对上海市秋季典型 PM_{2.5} 污染过程数值模拟验证分析表明 PM_{2.5} 的 NMB 在 -45.9% ~ 10% 之间, NME 在 20% ~ 65.5% 之间; 本研究验证结果与 Boylan 等^[31]设定的模拟颗粒物结果较好的标准 (MFB ≤ ± 60% 和 MFE ≤ 75%) 较一致,同时与 EPA 推荐的评价标准^[32]较一致,模拟结果的误差在可接受范围内,保证了 PM_{2.5} 污染特征与形成过程分析结果的可靠性.

表 1 观测值与模拟值的统计参数

Table 1 Statistical parameters of measured and simulated data							
项目	监测值/μg·m ⁻³	模拟值/μg·m ⁻³	<i>R</i>	NMB/%	NME/%	MFB/%	MFE/%
PM _{2.5}	85.90	71.32	0.74	-16	20	-18	15
SO ₂	21.83	15.56	0.82	-8	17	-11	13

2 结果与讨论

2.1 时间分布

2.1.1 SO₂ 年际变化

图 4 为 2000~2014 年北京市 SO₂ 浓度、SO₂ 排放量、燃煤总量的逐年变化,数据来自北京环境统计年鉴^[33]. 从中可知,自 2000 年以来,北京市年均 SO₂ 浓度呈下降趋势,其中 2000~2006 年 SO₂ 浓度呈波动式下降,从 71 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 下降至 53 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 2007 年起下降趋势明显,2008 年年均浓度首次小于 40 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,2014 年达到最低值 22 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 2014 年与 2000 年年均浓度相比累计降低 69% 左右,SO₂ 年均浓度的变化率为 $-3.5 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$. 受国民经济发展和能源改造的综合影响,北京市燃煤总量从 2000 年的 $2\,109 \times 10^4 \text{ t}$ 上升至 2005 年的 $2\,848 \times 10^4 \text{ t}$,2006~2014 年逐年下降,2014 年燃煤总量首次降至 $2\,000 \times 10^4 \text{ t}$ 以下,为 $1\,832 \times 10^4 \text{ t}$. SO₂ 排放量受燃煤总量和脱硫设施的综合影响,2000~2005 年维持在 $18.28 \sim 22.39 \times 10^4 \text{ t}$ 之间,下降趋势并不明显; 2006 年以来,北京市 SO₂ 排放量呈明显下降趋势,从 2006 年的 $17.55 \times 10^4 \text{ t}$ 下降至 2014 年的 $8.1 \times 10^4 \text{ t}$,SO₂ 排放量变化率为 $-1.05 \times 10^4 \text{ t}\cdot\text{a}^{-1}$. 北京市 SO₂ 浓度与全市 SO₂ 排放量有明显的正相关性,相关系数 R 为 0.97; 而与燃煤总量相关性仅为 0.42. 北京市 SO₂ 排放量大幅降低与国家北京市减排措施有关,2000 年国家出台了《中华人民共和国大气污染防治法》,在国民经济和社会发展“十五”、“十一五”、“十二五”规划纲要中均提出了污染物排放总量减少的约束性指标; 北京市政府也陆续采取了 16 阶段控制大气污染物排放紧急措施,通过锅炉(炉型)改造、提高煤炭质量、散煤整治、集中供热、能源结构调整等措施,北京市空气质量有了明显好转. 截至到 2013 年首钢、焦化厂等 1 000 多家高污染企业退出,完成 4.4 万台燃煤茶炉大灶、1.7 万多台燃煤锅炉以及城市核心区 27 万户平房小煤炉清洁能源改造,对燃煤电厂全部实施了高效脱硫、脱硝和除尘治理; 率先执行新车排放标准(国Ⅰ至国Ⅴ),已淘汰黄标车 15.6 万辆,老旧机动车近 140 万辆; 扩大山区植树造林面积,城市绿化覆盖率提高到 2013 年的 46.8%. 2013 年国家积极出台了《大气污染防治行动计划》,北京市政府相应制定发布了《北京市 2013-2017 年清洁空气行动计划》,可以说产业结构调整、高耗能产业的治理、清洁能源改造等措施直接导致了 SO₂ 年均浓度的下降.

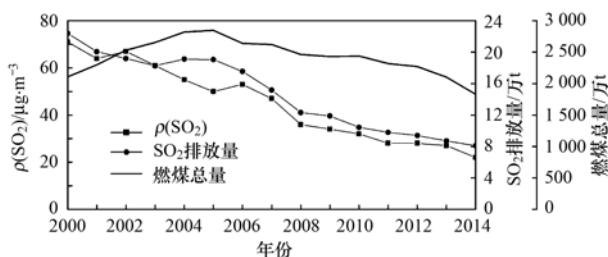


图 4 SO₂ 年际变化曲线

Fig. 4 Annual variation of SO₂ concentration

2.1.2 SO₂ 月变化

图 5 为 2008~2014 年北京市 SO₂ 浓度的逐月分布,从中可知,北京市 SO₂ 的月均浓度整体呈 U 型分布,其中 12、1、2 月的浓度最高,7 年均值浓度分别为 69.34、62.28、51.36 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,主要受采暖季燃煤的影响^[34],冬季燃煤量较大,逆温较强,不利气象条件导致 SO₂ 容易积累; 6、7、8 月的浓度最低,7 年均值浓度分别为 14.43、9.16、8.92 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,主要由于这些月份排放量较低,加之大气垂直运动活跃,降水较多,扩散条件较好. 2011 年 1 月浓度明显低于其他年份同期,可能与当时典型气象条件有关; 气象观测结果^[35]显示 2011 年 1 月北京气温较常年偏低,华北大气冷空气活动频繁,污染物扩散条件较好. 分季节来看,2008~2014 年春季(3~5 月)、夏季(6~8 月)、秋季(9~11 月)、冬季(12、1、2 月)平均浓度分别为 26.73、10.84、20.47、51.89 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,整体呈现出冬季 > 春季 > 秋季 > 夏季(冬季较高,春秋相当,夏季较低)的特征,这与数值模拟、卫星反演^[36]对北京市 SO₂ 浓度监测及反演的结果基本一致.

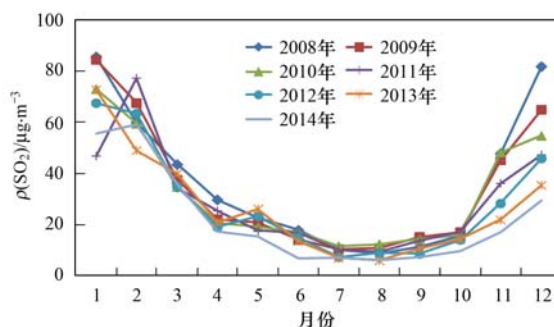


图 5 SO₂ 月变化曲线

Fig. 5 Monthly average concentration of SO₂

2.2 SO₂ 空间分布

图 6 为运用 Kriging 插值法^[37]得出的 2008~2014 年北京市 SO₂ 空间分布,从区域分布上看,SO₂ 年均浓度的空间分布结构具有鲜明的特征,北部及

西部山区 SO₂ 浓度水平明显低于中心城区及西南、东南部地区,这与北京的工业布局及产业结构有关,在北京重点污染源主要集中在城市的东部、南部等地区,这些地区 SO₂ 排放量较高有关. 从时间变化上看,SO₂ 年均浓度在 40 μg·m⁻³对应的国土面积逐渐减少,中心城区和通州区等地 SO₂ 年均浓度降低明显,经计算 SO₂ 浓度在 40 μg·m⁻³对应的国土面积比例从 2008 年的 10.62% 降至 2014 年的 0%. 从不同站点监测浓度上看,受减排措施影响较大的

石景山(首钢等企业搬迁)、东四(煤改气、散煤整治)、通州(产业调整、清洁能源利用等)等 SO₂ 年均浓度从 2008 年的 36.77、34.51、35.79 μg·m⁻³ 分别下降至 20.47、24.21、28.79 μg·m⁻³,分别降低了 44.32%、29.84%、19.57%. 由于北部及门头沟等地区监测站点相对较少,站点较集中分布在城六区,浓度插值受采样点范围、采样点密度、插值方法、地形等参数影响,插值的浓度分布结果具有一定的不确定性,需要进一步研究.

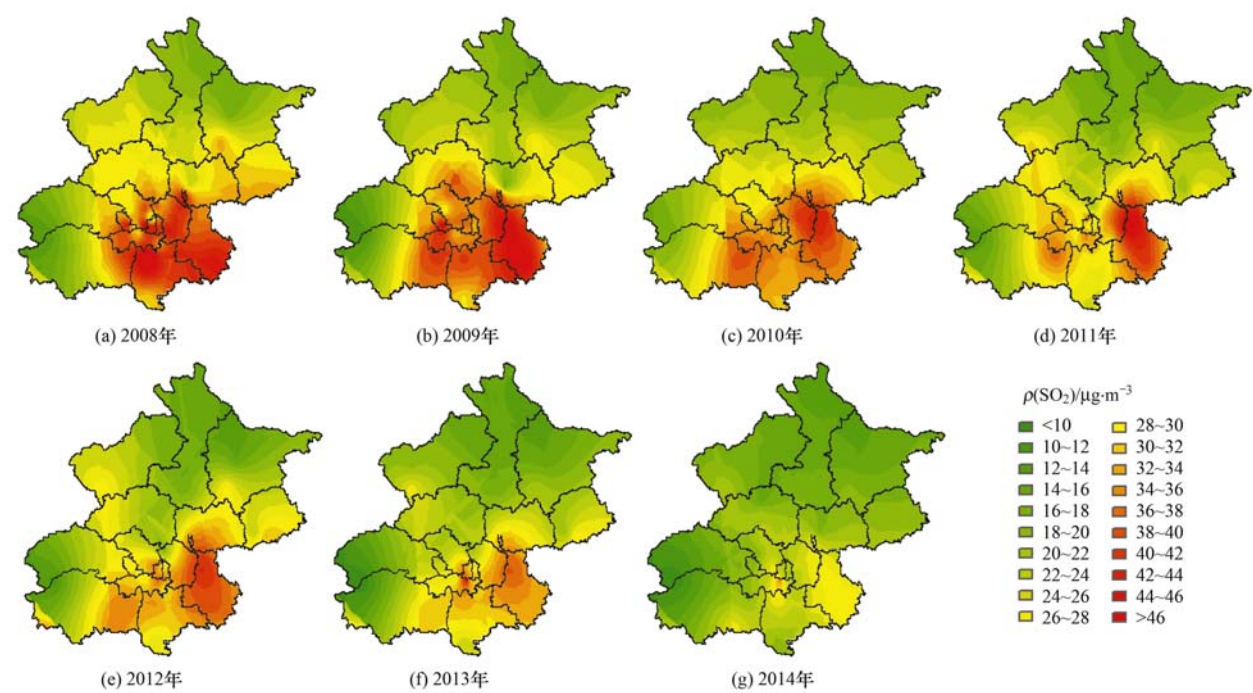


图 6 2008 ~ 2014 年北京市 SO₂ 空间分布
Fig. 6 Spatial distribution of SO₂ in Beijing from 2008 to 2014

2.3 采暖季 SO₂ 浓度

从 2008 ~ 2014 年采暖季与非采暖季 SO₂ 浓度分布上看(图 7),2008 ~ 2014 年采暖季 SO₂ 浓度在 28.95 ~ 71.54 μg·m⁻³之间,2014 年浓度最低,2008 年浓度最高;采暖季 SO₂ 浓度均高于全年年均浓度及夏季平均浓度;经计算 2008 ~ 2014 年采暖季 SO₂ 浓度是年均浓度的 1.22 ~ 1.59 倍,是夏季平均浓度的 3.23 ~ 5.84 倍. 在采暖期,遍布全市的采暖用小煤炉及锅炉等排放出大量的 SO₂,使得 SO₂ 源的排放量处于较高水平.

从不同年份 SO₂ 浓度与 CO、NO₂、PM₁₀、PM_{2.5}的相关系数(表 2)上看,SO₂ 浓度与 CO、NO₂、PM₁₀、PM_{2.5}为正相关性,SO₂ 浓度与 CO 的相关系数普遍高于其他污染物;采暖季与全年相

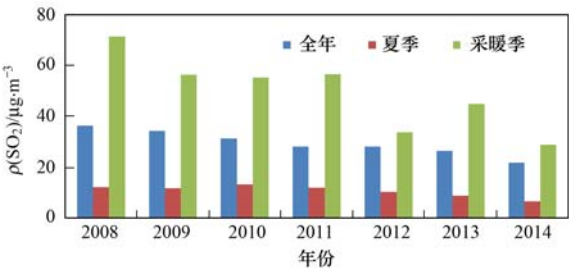


图 7 不同年份采暖季 SO₂ 浓度分布
Fig. 7 Distribution of SO₂ concentration during heating season in different years in Beijing

关系系数相比,SO₂ 浓度与 CO、NO₂、PM_{2.5}的相关系数略有上升,与 PM₁₀的相关系数有所下降. 由于 CO 在大气中的生命时间约为 1 ~ 2 个月,在污染严重的情况下,通常大气处于稳定状态,从各个排

放源排放出的 CO 易在城市上空积累,在偏南风作用下易输送,能较好示踪污染物传输及分布^[38];而清洁日 CO 在大气中一般处于不稳定状态,对流旺盛,浓度接近背景浓度水平且起伏变化较小.采暖期区域燃煤排放大气污染物是区域大气污染的主导性影响因素,周边高浓度污染物区域传输对

北京污染物浓度作用明显,故采暖期间 SO₂ 与 CO、NO₂、PM_{2.5}相互之间呈现较强的相关关系,有着很强的同源性;而 PM₁₀来源较为广泛,燃煤、冶金、化工、扬尘等多种污染源均会产生 PM₁₀,一定程度上使得 SO₂ 浓度与 PM₁₀的相关系数低于其它污染物^[39].

表 2 SO₂ 与 CO、NO₂、PM₁₀、PM_{2.5}的相关系数¹⁾
Table 2 Correlation coefficients between SO₂ and CO, NO₂, PM₁₀, PM_{2.5}

项目	2008		2009		2010		2011		2012		2013		2014	
	全年	采暖季	全年	采暖季	全年	采暖季	全年	采暖季	全年	采暖季	全年	采暖季	全年	采暖季
CO	0.83	0.92	0.78	0.88	0.84	0.89	0.72	0.77	0.78	0.62	0.83	0.89	0.82	0.82
NO ₂	0.72	0.89	0.71	0.88	0.73	0.88	0.73	0.79	0.70	0.94	0.77	0.88	0.64	0.80
PM ₁₀	0.43	0.73	0.45	0.54	0.35	0.65	0.46	0.79	0.48	0.85	0.66	0.56	0.56	0.55
PM _{2.5}	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.65	0.87	0.58	0.64

1) 置信水平平均为 $\alpha=0.01$

2.4 案例分析

根据文献[40], $0 < AQI \leq 50$ 空气质量为优, $50 < AQI \leq 100$ 为良, $100 < AQI \leq 150$ 为轻度污染, $150 < AQI \leq 200$ 为中度污染, $200 < AQI \leq 300$ 为重度污染, $300 < AQI \leq 500$ 为严重污染. 2014 年 1 月 14 ~ 18 日北京发生一次空气重污染过程,其中 1 月 14 日空气质量为轻度污染; 1 月 15 日上升至重度污染; 1 月 16 日跃升为严重污染, $\rho(\text{PM}_{2.5})$ 日均值达 $355 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, $\rho(\text{SO}_2)$ 日均值达 $116 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 1 月 17 日空气质量持续重度污染; 1 月 18 日空气质量降至轻度污染; 重污染过程结束(表 3). 经计算 1 月 15 ~ 17 日这 3 d 平均风速为 $1.17 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, 相对湿

度较大,平均为 60.76%; 地面气压变化较为平稳,平均为 -0.62 hPa ,负变压导致周边污染物的汇聚; 24 h 变温平均为 0.13°C ,为弱正变温. 低风速、负变压不利于污染物扩散; 高相对湿度有利于气态污染物向颗粒物的二次转化,污染会进一步加重; 正变温有利于重污染的维持; 边界层高度较低,是正常状况下的 20% ~ 50%^[41], 污染物被压缩在近地面层,浓度较高. 重污染期间 500 hPa 以偏南、偏西气流为主,地面天气形势以均压、低压、弱高压为主,少云无明显降水,整体不利于污染物扩散,为大气污染的形成及维持提供了稳定的大气环境背景^[42].

表 3 1 月 14 ~ 18 日 AQI 与逐日天气状况
Table 3 Variation of AQI and day-by-day weather condition during January 14th-18th in 2014

时间 (月-日)	AQI	$\rho(\text{SO}_2)$ $/\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	$\rho(\text{PM}_{2.5})$ $/\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	地面 气压场	500 hPa 高度场	地面平 均风速 $/\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	地面风速 极大值 $/\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	PBL $/\text{m}$	平均相 对湿度 $/\%$	24 h 降雨量 $/\text{mm}$
01-14	120	73	91	弱高压	槽后	0.96	2.10	460	50.61	0
01-15	224	86	173	弱高压转均压	浅槽前	0.71	2.03	443	46.73	0
01-16	404	116	355	均压、低压	槽区	1.25	3.09	447	69.80	0
01-17	219	68	168	低压转弱高压	弱西北气流	1.54	3.53	470	65.76	0
01-18	119	47	90	弱高压转均压	偏西北气流	1.38	3.24	1 036	55.61	0
01-15 ~ 01-17	282	90	232	—	—	1.17	3.53	571	60.76	0

重污染过程 1 月 14 ~ 18 日北京市实测污染物及相应时间段的气象要素的变化见图 8. 从峰值浓度上看,CO、PM_{2.5}在 1 月 15 日夜间至 1 月 16 日凌晨浓度达到峰值,峰值浓度分别为 $6.68 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $510.19 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, SO₂ 在 16 日 12:00 浓度达到峰值,

峰值浓度为 $156.99 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 与地面风速、风向对比发现 CO、PM_{2.5}峰值浓度发生在“西南风转东北风”,而 SO₂ 峰值浓度发生在“东北风转东南风”,其它高值也正好发生在风向转换的时候,与其他研究结果一致^[43,44]. 从日变化上看,SO₂、CO、PM_{2.5}在入

夜后浓度逐渐上升,清晨受小股偏北风影响,浓度缓慢下降,中午前后浓度最低;入夜后在偏南风作用下污染物浓度快速上升很可能与区域污染传输有关.从 $\rho(\text{SO}_2)/\rho(\text{CO})$ 、 $\rho(\text{PM}_{2.5})/\rho(\text{CO})$ 比值时间变化上看,重污染期间1月15~17日 $\rho(\text{SO}_2)/\rho(\text{CO})$ 、 $\rho(\text{PM}_{2.5})/\rho(\text{CO})$ 比值分别在0.013~0.061、0.025~0.091之间,平均值分别为0.029、0.075,高于全年0.015、0.065的水平; $\rho(\text{PM}_{2.5})/\rho(\text{CO})$ 比值变化较为平缓,而 $\rho(\text{SO}_2)/\rho(\text{CO})$ 比值取决于 $\rho(\text{SO}_2)$ 、 $\rho(\text{CO})$ 浓度相对变化,呈现出一定的时间波动特征.

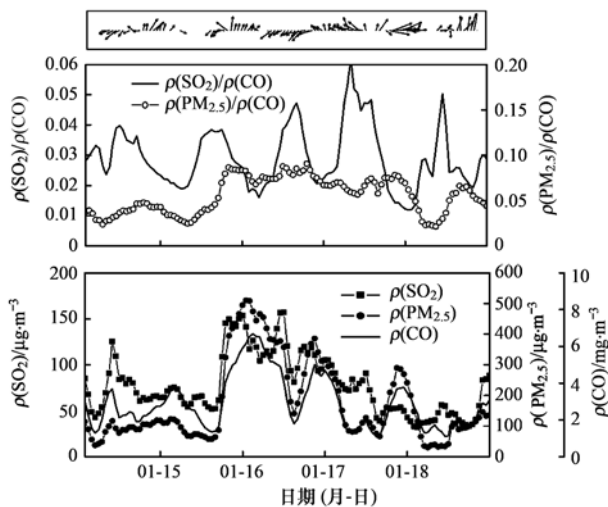


图8 SO_2 、 CO 、 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度与 $\rho(\text{SO}_2)/\rho(\text{CO})$ 、 $\rho(\text{PM}_{2.5})/\rho(\text{CO})$ 比值及地面风速的变化

Fig. 8 Variation of SO_2 , CO , $\text{PM}_{2.5}$ concentrations, rates of $\rho(\text{SO}_2)/\rho(\text{CO})$, $\rho(\text{PM}_{2.5})/\rho(\text{CO})$ and meteorological conditions

图9为2014年1月14~18日08:00、20:00时次京津冀 $\text{PM}_{2.5}$ 、 SO_2 空间分布,从时间演变上看,重污染过程前的1月14日京津冀地区较高浓度 $[\rho(\text{PM}_{2.5}) > 150 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $\rho(\text{SO}_2) > 80 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}]$ 的污染物主要分布在河北中南部;1月15~16日较高浓度污染物覆盖了京津冀大部分地区;1月17日京津冀西北地区浓度明显下降;1月18日京津冀大部分地区浓度维持较低水平,河北中南部浓度又有所积累.从不同物种时空变化上看, SO_2 浓度高值区主要集中在河北中南部、天津、唐山等地,这些地区工业企业、电厂较为集中, SO_2 排放量较大,北京 SO_2 浓度1月15日20:00、16日20:00、17日20:00受天津、唐山影响较大;而 $\text{PM}_{2.5}$ 高值区主要集中在河北中南部,西南及东南两个方向区域高浓度 $\text{PM}_{2.5}$ 传输及二次生成浓度累积速度较快,高浓度区域迅速扩大.从20:00与08:00高值区

面积上看,对照图8可知,傍晚、入夜后在地面偏南风左右下,污染物浓度明显上升,高值范围明显扩大.由此可见区域输送对于各地区污染物浓度有着十分重要的影响,此次重污染案例属于典型的区域污染传输型案例.重污染过程中边界层高度及其他气象要素造成的污染物大气环境容量及浓度的变化也是此次重污染形成的一个重要原因,还需进一步研究;总的来说,在此次污染过程中气象条件对重污染的形成和破坏起到了关键性的作用,今后要加强对重污染的研究,以有效预防和控制空气重污染.

为精确、定量计算不同地区污染物区域输送对北京 SO_2 浓度的影响,采用PAST源示踪技术初步计算了重污染过程(1月15~17日)中北京及周边地区电厂、所有外来源对 SO_2 浓度的影响,结果显示空间分布(图10,网格 SO_2 浓度进行了Kriging插值)上, SO_2 较高浓度区域出现在保定、邯郸、石家庄一线,而北京本地的4家燃煤电厂主要影响的是电厂所在区域的局部地区,对北部及西部山区 SO_2 浓度影响较小.经计算外来源对北京市(所占网格的平均) SO_2 浓度的贡献率为83%,其中北京周边高架点源电厂贡献约占21%,唐山、天津、保定、石家庄、张家口电厂所占比例较大;电厂贡献率远小于周边非电厂总源的贡献率,虽然高架点源输送距离更长,影响范围更大,但散煤、小锅炉等其它污染源燃煤总量更大,北京4家主要燃煤电厂对全市 SO_2 浓度贡献率仅为3.5%,可见重污染过程中区域输送对北京 SO_2 起着更为重要的作用.此次重污染过程外来源及电厂对北京 SO_2 贡献率统计结果与其他研究结果(表4)具有一定的可比性,由于缺乏不同地域、长时间序列 SO_2 跨区域输送规律研究,且模式的空间分辨率、 SO_2 排放总量、工业布局及产业结构变化、模型参数的设置及计算方法的不同都会导致模拟结果的差异,这些差异是造成该研究中北京 SO_2 源贡献率与其他研究中存在差异的主要原因.

根据《北京市2013~2017年加快压减燃煤和清洁能源建设工作方案的通知》,2014年北京市完成首钢原厂区热力和生活区电力替代并关停高井燃煤热电厂;2015年3月关停石景山燃煤热电厂和国华燃煤热电厂;2016年关停华能燃煤热电厂.随着北京本地燃煤电厂的关闭及本市其它压减燃煤措施的实施,本地 SO_2 排放量将逐步下降,区域输送型重污染案例过程中本地源贡献率将进一步减小.

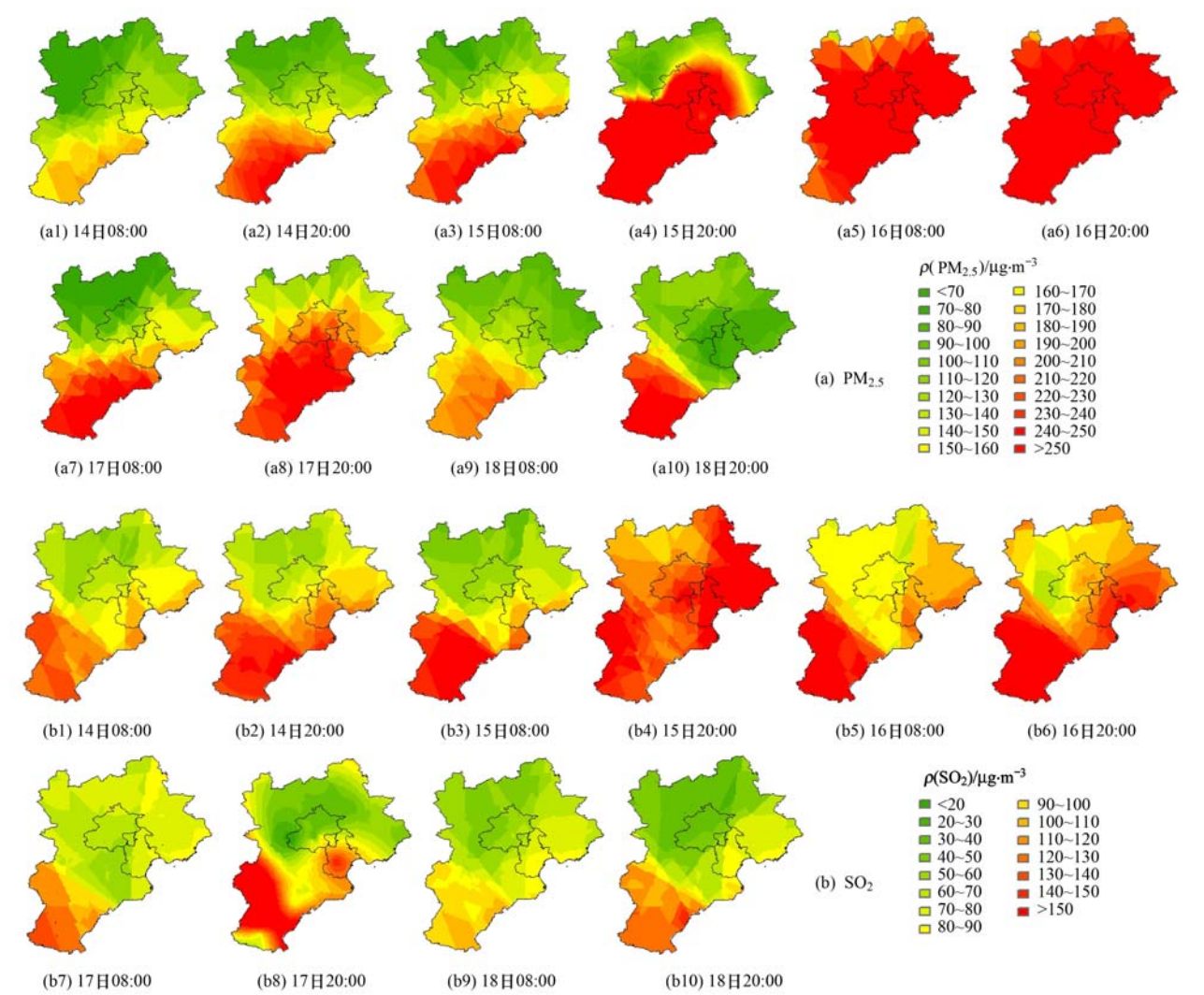


图 9 PM_{2.5}, SO₂ 空间分布

Fig. 9 Spatial distribution of PM_{2.5} and SO₂ in Beijing-Tianjin-Hebei region

表 4 不同地区 SO₂ 贡献率比较

Table 4 Contributions of SO₂ in different districts

模拟时间	模型	污染源及影响地区	贡献浓度或贡献率	文献
2000 年 1 月	Lagrangian	北京工业点源对北京	7.50%	[12]
2000 年全年	ATMOS	周边源对北京	5.95 μg·m ⁻³	[13]
2002 年 11 月 26 ~ 29 日	CAM _x	周边地区对北京	19.09%	[11]
2002 年全年	ISC3	高井发电厂对石景山区	8 μg·m ⁻³	[14]
2005 年采暖期	CAM _x	天津、河北电厂源对北京	6.40 μg·m ⁻³	[45]
2008 年全年	Calpuff	北京电厂源对北京	5.3%	[15]
2011 年全年	Calpuff	京津冀电厂源对北京	7.3 μg·m ⁻³	[16]
2012 年全年	CMAQ	周边源对北京	77%	[46]
2004 年 1 月	Calpuff	外部源对镇江、嘉兴和绍兴	56%	[47]
2004 年全年	Calpuff	周边源对深圳	25%	[48]
2004 年全年	CMAQ	外部源对上海	7% ~ 17%	[49]
2005 年 1 月 1 ~ 3 日	Calpuff	周边点源对阳泉	3.2%	[50]
2007 年全年	Calpuff	周边源对西安	23%	[51]
2011 年 3 月	NAQPMS	周边源对郑州	15% ~ 20%	[52]
2014 年 1 月 15 ~ 17 日	CAM _x	周边源对北京	83%	本研究
2014 年 1 月 15 ~ 17 日	CAM _x	天津、河北电厂对北京	17.4%	本研究
2014 年 1 月 15 ~ 17 日	CAM _x	北京电厂对北京	3.5%	本研究

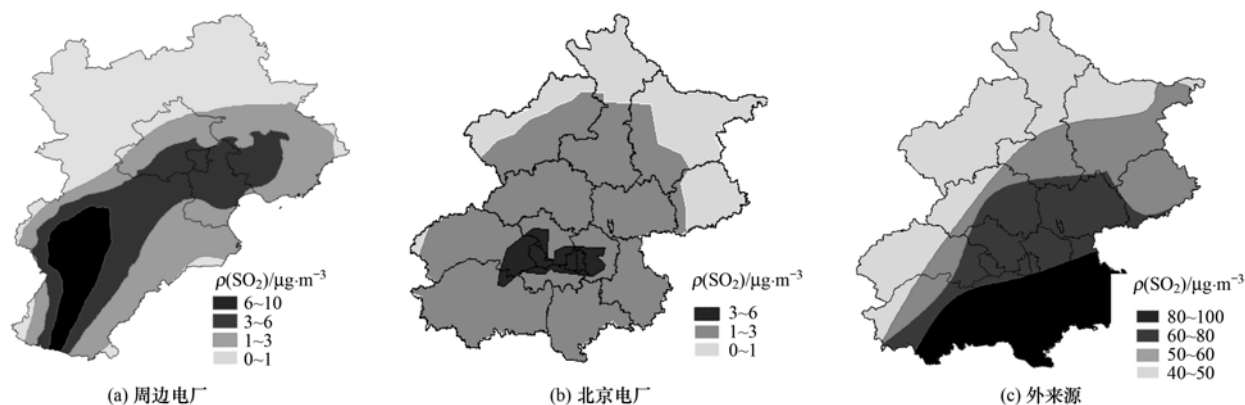
图 10 SO_2 浓度贡献的空间分布

Fig. 10 Spatial distribution of SO_2 contribution from thermal power industry and external sources

3 结论

(1) 2014 年与 2000 年相比北京市 SO_2 年均浓度累计降低 69% 左右, SO_2 年均浓度的变化率为 $-3.5 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$, 北京市 SO_2 的月均浓度呈 U 型分布, 季节分布上整体呈现出冬季 > 春季 > 秋季 > 夏季的特征, 采暖季 SO_2 浓度明显高于非采暖季。

(2) 空间分布上北部及西部山区 SO_2 浓度水平明显低于中心城区及西南、东南部地区, 受减排措施影响较大的石景山、东四、通州监测点的 SO_2 浓度降低明显。

(3) 在 2014 年 1 月 14 ~ 18 日一次重污染过程中北京 SO_2 存在明显的区域输送, PAST 源示踪技术初步计算显示外来源对北京 SO_2 浓度的贡献率为 83%, 其中北京周边高架点源电厂贡献占 21%, 北京 4 家主要电厂对全市 SO_2 浓度贡献率约为 3.5%。

参考文献:

- [1] 任阵海, 万本太, 苏福庆, 等. 当前我国大气环境质量的几个特征[J]. 环境科学研究, 2004, **17**(1): 1-6.
- [2] Kajino M, Ueda H, Sato K, *et al.* Spatial distribution of the source-receptor relationship of sulfur in Northeast Asia [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(13): 6475-6491.
- [3] Che H Z, Zhang X Y, Li Y, *et al.* Haze trends over the capital cities of 31 provinces in China, 1981-2005 [J]. *Theoretical and Applied Climatology*, 2009, **97**(3-4): 235-242.
- [4] 薛志钢, 柴发合, 段宁, 等. 运用 ISC3 模型模拟电厂脱硫后的大气环境影响[J]. 环境科学研究, 2003, **16**(5): 62-64.
- [5] Kanada M, Dong L, Fujita T, *et al.* Regional disparity and cost-effective SO_2 pollution control in China: A case study in 5 mega-cities [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **61**: 1322-1331.
- [6] Quan J Na, Tie X X, Zhang Q, *et al.* Characteristics of heavy aerosol pollution during the 2012-2013 winter in Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, **88**: 83-89.
- [7] 刘洁, 张小玲, 徐晓峰, 等. 北京地区 SO_2 、 NO_x 、 O_3 和 $\text{PM}_{2.5}$ 变化特征的城郊对比分析 [J]. 环境科学, 2008, **29**(4): 1059-1065.
- [8] 吉东生, 王跃思, 孙扬, 等. 北京与伦敦空气中气态污染物的对比研究 [J]. 环境工程学报, 2008, **2**(9): 1199-1206.
- [9] 孙扬, 王跃思, 刘广仁, 等. 北京地区一次大气环境持续严重污染过程中 SO_2 的垂直分布分析 [J]. 环境科学, 2006, **26**(3): 408-414.
- [10] 孟晓艳, 王普才, 王庚辰, 等. 北京及其周边地区冬季 SO_2 的变化与输送特征 [J]. 气候与环境研究, 2009, **14**(3): 309-317.
- [11] 黄青, 程水源, 陈东升, 等. 近周边电厂源对北京市采暖期间 SO_2 的贡献分析 [J]. 环境科学研究, 2009, **22**(5): 567-573.
- [12] 颜鹏, 黄健, Draxler R. 北京地区 SO_2 污染的长期模拟及不同类型排放源影响的计算与评估 [J]. 中国科学 D 辑: 地球科学, 2005, **35**(增刊 I): 167-176.
- [13] 陈义珍, 柴发合, 段宁, 等. “西电东送”火电规划对北京空气质量的影响 [J]. 环境科学研究, 2003, **16**(6): 46-52.
- [14] 薛文博, 王金南, 杨金田, 等. 电力行业多污染物协同控制的环境效益模拟 [J]. 环境科学研究, 2012, **25**(11): 1304-1310.
- [15] Hao J M, Wang L T, Shen M J, *et al.* Air quality impacts of power plant emissions in Beijing [J]. *Environmental Pollution*, 2007, **147**(2): 401-408.
- [16] 伯鑫, 王刚, 温柔, 等. 京津冀地区火电企业的大气污染影响 [J]. 中国环境科学, 2015, **35**(2): 364-373.
- [17] 中国环境年鉴编辑委员会. 中国环境年鉴 [M]. 北京: 中国环境年鉴社, 2001-2013.
- [18] 潘本锋, 郑皓皓, 李莉娜, 等. 空气自动监测中 $\text{PM}_{2.5}$ 与 PM_{10} “倒挂”现象特征及原因 [J]. 中国环境监测, 2014, **30**(5): 90-97.
- [19] 谢淑艳, 王晓彦, 吴冠名, 等. 环境空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 自动监测方法比较及应用 [J]. 中国环境监测, 2013, **29**(2): 150-155.
- [20] HJ/T 193-2005 环境空气质量自动监测技术规范 [S].
- [21] Wagstrom K M, Pandis S N. Contribution of long range transport to local fine particulate matter concerns [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(16): 2730-2735.

- [22] Pandis S N, Harley R A, Cass G R, *et al.* Secondary organic aerosol formation and transport [J]. *Atmospheric Environment*, Part A. General Topics, 1992, **26**(13): 2269-2282.
- [23] Kajino M, Deushil M, Maki T, *et al.* Modeling wet deposition and concentration of inorganics over Northeast Asia with MRI-PM/C [J]. *Geoscientific Model Development*, 2012, **5**(6): 1363-1375.
- [24] MMMD, NCAR. Weather research and forecast ARW version 3 modeling systems user's guide [EB/OL]. <http://www.mmm.ucar.edu/wrf/users/docs/user-guide-V3/ARWUsers-GuideV3.pdf>, 2014-09-01.
- [25] 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]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2006, **6**(11): 3181-3210.
- [26] Multi-resolution emission inventory for China [EB/OL]. 2013, Beijing: Tsinghua University, 2013. <http://www.meicmodel.org>, 2013-01-02.
- [27] Xing J, Zhang Y, Wang S X, *et al.* Modeling study on the air quality impacts from emission reductions and atypical meteorological conditions during the 2008 Beijing Olympics [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(10): 1786-1798.
- [28] Lu Z, Streets D G, Zhang Q, *et al.* Sulfur dioxide emissions in China and sulfur trends in East Asia since 2000 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(13): 6311-6331.
- [29] 李莉, 陈长虹, 黄成, 等. 长江三角洲地区大气 O₃ 和 PM₁₀ 的区域污染特征模拟 [J]. *环境科学*, 2008, **29**(1): 237-245.
- [30] 王茜. 上海市秋季典型 PM_{2.5} 污染过程数值预报分析 [J]. *中国环境监测*, 2014, **30**(2): 7-13.
- [31] Boylan J W, Russell A G. PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(26): 4946-4959.
- [32] US EPA. Guidance on the use of models and other analyses in attainment demonstrations for the 8-hour ozone NAAQS [EB/OL]. <http://www.epa.gov/scram001/guidance/guide/8-hour-o3-guidance-final-version.pdf>, 2014-09-01.
- [33] 北京市环境保护局. 北京市大气污染现状及来源解析研究 [R]. 北京: 2013.
- [34] 王丛梅, 杨永胜, 李永占, 等. 2013 年 1 月河北省中南部严重污染的气象条件及成因分析 [J]. *环境科学研究*, 2013, **26**(7): 695-700.
- [35] 韦青. 2011 年 1 月大气环流和天气分析 [J]. *气象*, 2011, **37**(4): 508-512.
- [36] Zhang Q, Geng G N, Wang S W, *et al.* Satellite remote sensing of changes in NO_x emissions over China during 1996-2010 [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2012, **57**(22): 2857-2864.
- [37] Davis J C. Statistics and data analysis in geology (3rd ed.) [M]. New York: John Wiley & Sons, 2002. 57-61.
- [38] 葛萃, 张美根. 东亚地区春季一氧化碳的输送特征研究 [J]. *中国海洋大学学报*, 2010, **39**(2): 187-192.
- [39] Gupta P, Christopher S A, Wang J, *et al.* Satellite remote sensing of particulate matter and air quality assessment over global cities [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(30): 5880-5892.
- [40] HJ 633-2012 环境空气质量指数 (AQI) 技术规定 [S].
- [41] 孟燕军, 程丛兰. 影响北京大气污染物变化的地面天气形势分析 [J]. *气象*, 2002, **28**(4): 42-47.
- [42] Yao X H, Chan C K, Fang M, *et al.* The water-soluble ionic composition of PM_{2.5} in Shanghai and Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(26): 4223-4234.
- [43] Zhao P S, Zhang X L, Xu X F, *et al.* Long-term visibility trends and characteristics in the region of Beijing, Tianjin, and Hebei, China [J]. *Atmospheric Research*, 2011, **101**(3): 711-718.
- [44] 曲晓黎, 付桂琴, 贾俊妹, 等. 2005—2009 年石家庄市空气质量分布特征及其与气象条件的关系 [J]. *气象与环境学报*, 2011, **27**(3): 29-33.
- [45] 黄青, 程水源, 陈东升. 北京市一次 SO₂ 污染过程来源分析 [J]. *环境科学与技术*, 2010, **33**(1): 89-93.
- [46] 姜杰. 基于 OMI 卫星数据和数值模拟的中国大气 SO₂ 浓度监测与排放量估算 [D]. 南京: 南京师范大学, 2012.
- [47] 程真, 陈长虹, 黄成, 等. 长三角区域城市间一次污染跨界影响 [J]. *环境科学学报*, 2011, **31**(4): 686-694.
- [48] 王淑兰, 柴发合, 夏广锋, 等. 深圳市 SO₂ 污染来源及其特征分析 [J]. *环境科学研究*, 2009, **22**(10): 1128-1133.
- [49] 张艳, 余琦, 伏晴艳, 等. 长江三角洲区域输送对上海市空气质量影响的特征分析 [J]. *中国环境科学* 2010, **30**(7): 914-923.
- [50] 任永建. 基于情景分析的区域大气环境数值模拟 [D]. 南京: 南京信息工程大学, 2008.
- [51] 刘大为. 区域大气污染联防联控研究——以关中地区为例 [D]. 西安: 西北大学, 2011.
- [52] 张稳定. 郑州市大气污染的数值模拟及其区域输送影响研究 [D]. 郑州: 郑州大学, 2013.

CONTENTS

Composition and Source Apportionments of Saccharides in Atmospheric Particulate Matter in Beijing	LIANG Lin-lin, Guenter Engling, DUAN Feng-kui, <i>et al.</i> (3935)
Comparing Cell Toxicity of <i>Schizosaccharomyces pombe</i> Exposure to Airborne PM _{2.5} from Beijing and Inert Particle SiO ₂	LIU Meng-jiao, HUANG Yi, WEN Hang, <i>et al.</i> (3943)
Analysis on Regional Characteristics of Air Quality Index and Weather Situation in Beijing and Its Surrounding Cities During the APEC ...	GAO Qing-xian, LIU Jun-rong, WANG Ning, <i>et al.</i> (3952)
Analysis About Spatial and Temporal Distribution of SO ₂ and An Ambient SO ₂ Pollution Process in Beijing During 2000-2014	CHENG Nian-liang, ZHANG Da-wei, LI Yun-ting, <i>et al.</i> (3961)
Characteristics and Formation Mechanism of a Multi-Day Haze in the Winter of Shijiazhuang Using a Single Particle Aerosol Mass Spectrometer(SPAMS)	 ZHOU Jing-bo, REN Yi-bin, HONG Gang, <i>et al.</i> (3972)
Modeling Study of A Typical Summer Ozone Pollution Event over Yangtze River Delta	ZHANG Liang, ZHU Bin, GAO Jin-hui, <i>et al.</i> (3981)
Distribution of Regional Pollution and the Characteristics of Vertical Wind Field in the Pearl River Delta	LIU Jian, WU Dui, FAN Shao-jia (3989)
Distribution Characteristics of Urea and Constitution of Dissolved Nitrogen in the Bohai Sea and the Huanghai Sea in Spring	LI Zhi-lin, SHI Xiao-yong, ZHANG Chuang-song (3999)
Relationship Between Agricultural Land and Water Quality of Inflow River in Erhai Lake Basin	PANG Yan, XIANG Song, CHU Zhao-sheng, <i>et al.</i> (4005)
Input Characteristics and Pollution Assessment of Nutrients Pollution in the Primary Pollution Source of the Daliao River	MA Ying-qun, ZHANG Lei, ZHAO Yan-min, <i>et al.</i> (4013)
Temporal and Spatial Distribution of Nutrients in Daning River Sediments and Their Correlations with Chlorophyll in the Three Gorges Reservoir Area	 ZHANG Yong-sheng, LI Hai-ying, REN Jia-ying, <i>et al.</i> (4021)
Summer Greenhouse Gases Exchange Flux across Water-air Interface in Three Water Reservoirs Located in Different Geologic Setting in Guangxi, China	 LI Jian-hong, PU Jun-bing, SUN Ping-an, <i>et al.</i> (4032)
Distribution of Redox Zone at Different Water Layers in the Presence of Periphyton and the Responsible Microorganisms	WANG Feng-wu, LIU Wei, WAN Juan-juan, <i>et al.</i> (4043)
Distribution Characteristics and Source of Fluoride in Groundwater in Lower Plain Area of North China Plain: A Case Study in Nanpi County	 KONG Xiao-le, WANG Shi-qin, ZHAO Huan, <i>et al.</i> (4051)
Distribution Characteristics of Fluoroquinolones Antibiotics in Surface Water and Groundwater from Typical Areas in A City	CUI Ya-feng, HE Jiang-tao, SU Shi-hui, <i>et al.</i> (4060)
Distribution of Aerobic Ammonia-Oxidizing Microorganisms in Sediments from Adjacent Waters of Rushan Bay	HE Hui, ZHEN Yu, MI Tie-zhu, <i>et al.</i> (4068)
Sources, Migration and Conversion of Dissolved Sterols in Qingmuguan Underground River	LIANG Zuo-bing, SHEN Li-cheng, SUN Yu-chuan, <i>et al.</i> (4074)
Water-Sediment Partition of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Karst Underground River	LAN Jia-cheng, SUN Yu-chuan, XIAO Shi-zhen (4081)
Variation Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Karst Subterranean River During Rainfall Events	JIANG Ze-li, SUN Yu-chuan, WANG Zun-bo, <i>et al.</i> (4088)
Distribution and Transportation Characteristics of Heavy Metals in Nanshan Laolongdong Subterranean River System and Its Capacity of Self-Purification in Chongqing	 REN Kun, LIANG Zuo-bing, YU Zheng-liang, <i>et al.</i> (4095)
Distribution of Mercury in Plants at Water-Level-Fluctuating Zone in the Three Gorges Reservoir	LIANG Li, WANG Yong-min, LI Xian-yuan, <i>et al.</i> (4103)
Development of Sediment Micro-Interface Under Physical and <i>Chironomus plumosus</i> Combination Disturbance	WANG Ren, LI Da-peng, HUANG Yong, <i>et al.</i> (4112)
Norfloxacin Solution Degradation Under Ultrasound, Potassium Persulfate Collaborative System	WEI Hong, SHI Jing-zhuan, LI Jia-lin, <i>et al.</i> (4121)
Degradation of Acid Orange 7 with Persulfate Activated by Silver Loaded Granular Activated Carbon	WANG Zhong-ming, HUANG Tian-yin, CHEN Jia-bin, <i>et al.</i> (4127)
Kinetics and Reactive Species Analysis of Dimetridazole Degradation by TiO ₂	CHEN Dong-mei, YU Ze-bin, SUN Lei, <i>et al.</i> (4135)
Performance and Mechanism of Ferric Tannate in the Removal of Inorganic Nitrogen from Wastewater	ZHANG Rui-na, LI Lin, LIU Jun-xin (4141)
Performance of an Intermittent Aeration Membrane Bioreactor for Removal of Veterinary Antibiotics from Piggery Wastewater	DING Jia-li, LIU Rui, ZHENG Wei, <i>et al.</i> (4148)
Advanced Treatment of Incineration Leachate with O ₃ -BAC and Double O ₃ -BAC	DU An-jing, FAN Ju-hong, LIU Rui, <i>et al.</i> (4154)
Effects of Hydraulic Retention Time and Dissolved Oxygen on a CANON Reactor with Haydite as Carrier	WANG Hui-fang, FU Kun-ming, ZUO Zao-rong, <i>et al.</i> (4161)
Inhibiting Form of Ammonium to AOB and Inhibiting Rule	CUI Jian-hong, LI Xiang, HUANG Yong, <i>et al.</i> (4168)
Nitrogen Removal Using ANAMMOX and Denitrification for Treatment of Municipal Sewage	ZHANG Shi-ying, WU Peng, SONG Yin-ling, <i>et al.</i> (4174)
Rapid Start-up of Simultaneous Nitrification and Denitrification Coupled Phosphorus Removal Process and Its Performing Characteristics	LENG Lu, XIN Xin, LU Hang, <i>et al.</i> (4180)
Effect of HCO ₃ ⁻ on Nitrogen Removal Efficiency in Partial Nitritation-ANAMMOX Process	LI Xiang, CHENG Zong-heng, HUANG Yong, <i>et al.</i> (4189)
Research on Cultivation and Stability of Nitritation Granular Sludge in Integrated ABR-CSTR Reactor	WU Kai-cheng, WU Peng, SHEN Yao-liang, <i>et al.</i> (4195)
Influence of the Application of Activated Persulfate on Municipal Sludge Conditioning	XU Xin, PU Wen-hong, SHI Ya-fei, <i>et al.</i> (4202)
Influence of Temperature on the Anaerobic Packed Bed Reactor Performance and Methanogenic Community	XIE Hai-ying, WANG Xin, LI Mu-yuan, <i>et al.</i> (4208)
Research on the Screening Method of Soil Remediation Technology at Contaminated Sites and Its Application	BAI Li-ping, LUO Yun, LIU Li, <i>et al.</i> (4218)
Comprehensive Risk Assessment of Soil Heavy Metals Based on Monte Carlo Simulation and Case Study	YANG Yang, DAI Dan, CAI Yi-min, <i>et al.</i> (4225)
Heavy Metals Pollution in Topsoil from Dagang Industry Area and Its Ecological Risk Assessment	ZHANG Qian, CHEN Zong-juan, PENG Chang-sheng, <i>et al.</i> (4232)
Effects of Land Use Type on Soil Microbial Biomass Carbon and Nitrogen in Water-Stable Aggregates in Jinyun Mountain	LI Zeng-quan, JIANG Chang-sheng, HAO Qing-ju (4241)
Influence of Different Straws Returning with Landfill on Soil Microbial Community Structure Under Dry and Water Farming	LAN Mu-ling, GAO Ming (4252)
Carbon Source Utilization Characteristics of Soil Microbial Community for Apple Orchard with Interplanting Herbage	DU Yi-fei, FANG Kai-kai, WANG Zhi-kang, <i>et al.</i> (4260)
Effects of Different Kinds of Organic Materials on Soil Heavy Metal Phytoremediation Efficiency by <i>Sedum alfredii</i> Hance	YAO Gui-hua, XU Hai-zhou, ZHU Lin-gang, <i>et al.</i> (4268)
<i>In-situ</i> Study on Effects of Combined Amendment on Translocation Control of Pb and Cd in Soil-Vegetable System	ZHU Wei, LIU Li, WU Yan-ming, <i>et al.</i> (4277)
Effects of Rice Cultivar and Typical Soil Improvement Measures on the Uptake of Cd in Rice Grains	WANG Mei-e, PENG Chi, CHEN Wei-ping (4283)
Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of PAHs in Water and Fishes from Daqing Lakes	WANG Xiao-di, ZANG Shu-ying, ZHANG Yu-hong, <i>et al.</i> (4291)
Depth Profiles of Methane Oxidation Kinetics and the Related Methanotrophic Community in a Simulated Landfill Cover	XING Zhi-lin, ZHAO Tian-tao, GAO Yan-hui, <i>et al.</i> (4302)
Enhanced Performance of Rolled Membrane Electrode Assembly by Adding Cation Exchange Resin to Anode in Microbial Fuel Cells	MEI Zhuo, ZHANG Zhe, WANG Xin (4311)
Development of a Monoclonal Antibody-Based Sensor for Environmental Pyrene and Benzo(a)pyrene Detection	LI Xin, QIAO Yan, ZHONG Guo-zhen (4319)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2015年11月15日 第36卷 第11期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 11 Nov. 15, 2015

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科学出版社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印刷装订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科学出版社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行