

李健, 安俊岭, 陈勇, 等. 2013. 脱硝技术与天然气应用情景下京津冀地区空气质量模拟评估 [J]. 气候与环境研究, 18 (4): 472–482, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2012.11200. Li Jian, An Junling, Chen Yong, et al. 2013. Simulation of air quality over Beijing, Tianjin, and Hebei Province of China with application of catalysts for selective catalytic reduction of NO_x to diesel exhaust and natural gas boilers [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 18 (4): 472–482.

脱硝技术与天然气应用情景下京津冀地区 空气质量模拟评估

李健^{1,2} 安俊岭¹ 陈勇¹ 屈玉¹

1 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理与大气化学国家重点实验室, 北京 100029

2 中国科学院大学, 北京 100049

摘 要 针对京津冀地区主要大气污染物 NO_x (氮氧化物) 和 $\text{PM}_{2.5}$ (大气中粒径小于或等于 $2.5\ \mu\text{m}$ 的颗粒物), 应用柴油车尾气净化技术及中小锅炉烟气脱硝技术, 并根据 2015 年和 2030 年我国能源规划, 设计 3 种技术应用情景, 采用 WRF-CAMx 耦合模式, 对京津冀地区大气中 NO_x 和 $\text{PM}_{2.5}$ 进行了应用情景模拟。结果表明, 单独应用柴油车尾气净化技术后 (方案 1), 北京、天津地区大气中的 NO_x 浓度降低幅度达 20%, 河北地区降低 5%; $\text{PM}_{2.5}$ 的浓度降低幅度约 10%; 应用柴油车尾气净化技术和 2015 年能源规划情景 (方案 2), 京津冀地区大气中 NO_x 和 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的降低幅度均超过 20%; 应用柴油车尾气净化技术和 2030 年能源规划情景 (方案 3), 该地区 NO_x 浓度降低幅度与之相当, $\text{PM}_{2.5}$ 浓度降低幅度超过 30%。可见脱硝技术和清洁能源利用的有效性依赖于其应用比例。二次气粒转化的化学过程形成的硝酸盐、硫酸盐和铵盐对该地区空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的贡献很大, 冬、春、秋季硝酸盐最大贡献高达 60%, 夏、秋季硫酸盐最大贡献超过 70%, 铵盐四季最大贡献约 25%。这说明 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要前体物 NO_x 、 SO_2 、 NH_3 、VOCs (Volatile Organic Compounds)、CO 等均大幅度削减才能有效降低该地区空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度。

关键词 NO_x $\text{PM}_{2.5}$ 应用情景 化学过程 WRF-CAMx 模式

文章编号 1006-9585 (2013) 04-0472-11

中图分类号 P402

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2012.11200

Simulation of Air Quality over Beijing, Tianjin, and Hebei Province of China with Application of Catalysts for Selective Catalytic Reduction of NO_x to Diesel Exhaust and Natural Gas Boilers

LI Jian^{1,2}, AN Junling¹, CHEN Yong¹, and QU Yu¹

1 State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Science, Beijing 100029

2 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

Abstract Three scenarios were designed in which catalysts for selective catalytic reduction (SCR) of NO_x were applied to diesel exhaust (Scenario 1), catalysts for SCR were applied to both diesel exhaust and natural gas boilers according to the Chinese energy plan for 2015 (Scenario 2), and the catalysts were applied as in Scenario 2 but the Chinese energy plan for 2030 was used (Scenario 3). Simulations were performed with the WRF-CAMx model in Beijing, Tianjin, and Hebei

收稿日期 2011-12-20 收到, 2012-04-06 收到修定稿

资助项目 国家自然科学基金资助项目 40905055、41175105, 中国科学院项目 KZCX2-YW-Q02-03、KZCX1-YW-06-04

作者简介 李健, 男, 1984 年出生, 博士研究生, 主要从事大气环境研究。E-mail: lucas_lijian@mail.iap.ac.cn

通讯作者 安俊岭, E-mail: anjl@mail.iap.ac.cn

Province in China (the BTH region) for January, April, July, and October of 2007, representing winter, spring, summer, and autumn, respectively. The results indicate that Scenario 1 can reduce the surface NO_x concentrations by 20% in Beijing and Tianjin and by 5% in Hebei Province, and decrease the $\text{PM}_{2.5}$ (particulate matter with diameters less than or equal to $2.5 \mu\text{m}$) concentrations by 10% in the BTH region. Scenarios 2 and 3 lead to decreases of more than 20% and more than 30%, respectively, in the surface concentrations of NO_x and $\text{PM}_{2.5}$ over the BTH region. This suggests that decreases in the surface concentrations of NO_x and $\text{PM}_{2.5}$ depend significantly on the amount of the catalyst used for SCR in diesel exhaust and natural gas boilers over the BTH region. The chemical process plays a key role in the formation of nitrates, sulfates, and ammonium salts, which are major components of $\text{PM}_{2.5}$ over the BTH region. The surface concentrations of nitrates, sulfates, and ammonium salts contribute more than 60% in winter, spring, and autumn, more than 70% in summer and autumn, and approximately 25% in all four seasons, respectively, to the surface $\text{PM}_{2.5}$ concentration. This implies that a large reduction in the emissions of major precursors of $\text{PM}_{2.5}$, e.g., NO_x , SO_2 , NH_3 , volatile organic compounds, and CO, can effectively reduce surface concentrations of $\text{PM}_{2.5}$.

Keywords NO_x , $\text{PM}_{2.5}$, Applied scenarios, Chemical processes, WRF-CMAx model

1 引言

京津冀、长江三角洲及珠江三角洲地区被称为我国的三大经济区。京津冀地区同时也是我国政治、经济和文化中心,具有举足轻重的战略地位。当前京津冀地区的集约化农业、工业、电力以及交通运输业发展迅速,大气污染状况十分严重(田贺中等, 2001)。随着城市经济的快速发展,能源消耗的持续增加和机动车保有量的急剧增长,对京津冀地区城市大气环境造成了相当大的压力,大气污染状况呈现出明显的煤烟和机动车尾气混合型污染(郝吉明等, 2005)。

氮氧化物(NO_x)主要来源于机动车尾气、工业和火电厂排放等,交通源中 62% 的 NO_x 来自于柴油车尾气排放(国务院发展中心、中国环境科学研究院 2006 年统计数据)。 NO_x 作为一次污染物,其本身会直接对人体健康产生危害,此外还是臭氧(O_3)、细粒子($\text{PM}_{2.5}$)和酸沉降等二次污染的重要前体物(张远航, 2001)。Richter et al. (2005) 在研究中指出,1996~2004 年间中国东部地区大气中 NO_x 浓度增加了约 50%,并且年增长速率还有加快的趋势。 NO_x 排放量的剧增使得我国城市大气中 NO_x 的污染程度日趋加重,京津冀地区就是典型代表。大气颗粒物,特别是 $\text{PM}_{2.5}$ 是京津冀地区另一主要污染物, $\text{PM}_{2.5}$ 主要人为源有工业源、电厂源、交通源、民用源等(张楚莹等, 2009),因此脱硝技术的研发及应用、清洁能源的利用显得日益迫切。

清洁能源天然气具有高效和洁净的优势,大部分燃煤机组发电效率约为 30%,天然气联合循环发

生效率高达 60%,天然气燃烧时 SO_2 、粉尘排放很低, NO_x 排放比油低 50%,比煤低 75% (陆家亮, 2009)。天然气的开发利用既符合世界能源结构发展趋势,也是提高能源效率和缓解环境压力的重要途径之一。

在柴油车和大部分中小锅炉方面,我国对其 NO_x 排放没有采取任何后处理控制措施。随着我国 NO_x 排放法规的出台,柴油车尾气 NO_x 净化和中小锅炉烟气脱硝将具有广泛应用前景。在中国科学院重大项目之课题“大气污染模拟预测与源控制技术研发及示范”资助下,贺泓等(2010)开发了柴油车尾气净化技术及中小锅炉烟气脱硝技术,使国产重型柴油车整车排放控制技术的实用水平达到国 IV 排放标准,整车排放寿命达到 $16 \times 10^4 \sim 25 \times 10^4 \text{ km}$,实现 5 辆车示范运行,并建立了小型天然气锅炉脱硝技术示范工程。根据这些技术的应用前景和天然气在我国能源消耗结构中的规划比例,设计 3 种控制情景,借助空气质量模式评价脱硝技术和天然气应用情景对京津冀地区空气质量的影响。

2 技术和方法

2.1 数值模式

空气质量模式选用 CAMx (Comprehensive Air quality Model with extensions, 版本 4.4) (ENVIRON, 2002) 模式。采用三重嵌套网格,水平分辨率分别为 81 km、27 km、9 km (图 1),第三重模拟区域覆盖了京津冀地区。垂直方向从地面至对流层顶分为 17 层。模拟时段为 2007 年 1 月、4 月、7 月、10 月分别代表冬季、春季、夏季、秋季四个季节。

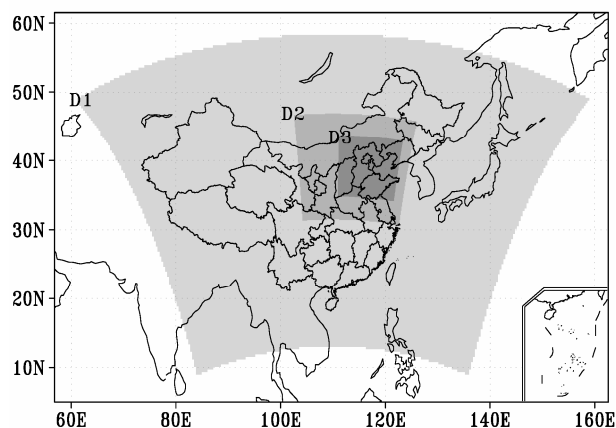


图1 本文模式嵌套网格设置

Fig. 1 Modeling domains used in this study

地形高度和下垫面类型采用美国 USGS 卫星观测资料。初始与边界浓度 6 h 更新一次, 来自全球模式 Mozart-4 6 h 一次的模拟结果。人为排放源考虑的物种有 BC (Black Carbon aerosol)、CO、NO_x、OC (Organic Carbon aerosol)、PM₁₀ (大气中粒径小于或等于 10 μm 的颗粒物)、PM_{2.5}、SO₂、VOCs (Volatile Organic Compounds)、NH₃。除 NH₃ 排放源来自 Street et al. (2003) 1.0° (纬度) × 1.0° (经度) 排放清单外, 其他物种采用 Zhang et al. (2009) 排放清单, 分辨率 0.5° (纬度) × 0.5° (经度), 并且按照电厂、工业、居民、交通排放源分为 4 类。化学模式选用 CB4 机制, 包括 52 个物种 (35 种气体, 17 种气溶胶), 117 个化学反应。气溶胶模块选用两模态 (粗、细) 方案, PM (Particulate Matter) 化学组成除考虑人为排放源中的 PM₁₀、PM_{2.5} 外, 将 BC 作为元素碳 (primary elemental carbon)、OC 作为一次有机气溶胶 (primary organic aerosol) 一并归为 PM_{2.5}。空间上, 电厂源作为点源处理, 其他源视为面源, 置于模式第一层, 均按照就近原则插值到 CAMx 网格上。时间尺度上, 人为排放源按照各种源每月的排放比例进行了调整 (Zhang et al., 2007)。

气象模式选用 WRF (Weather Research and Forecast, 版本 3.2) (Skamarock et al., 2005) 模式, 其物理参数化方案见表 1。中纬度地区中尺度气象模式多选用表 1 参数化方案, 且 An et al. (2011) 和 Li et al. (2011) 均选用表 1 方案成功模拟了京津冀地区空气质量。另外, Han et al. (2008) 建议中纬度地区陆面过程选用 5 层土壤热量扩散方案较好。

表 1 所用 WRF 模式的物理过程参数化方案

Table 1 Parameterization schemes in the WRF model used in this study

物理过程	选用参数化方案
积云对流	Kain-Fritsch
微物理过程	Kessler
长波辐射	RRTM
短波辐射	Dudhia
边界层	MRF
近地面层	Monin-Obukhov
陆面过程	5 层土壤热量扩散方案

2.2 减排技术

采用机内与机外相结合的尾气净化技术, 使国产重型柴油车达到国 IV 排放标准, 并实现重型柴油车的示范运行 (Yu et al., 2010), 为我国重型柴油车国 IV 排放标准的实施提供了技术支撑。

烟气脱硝技术, 将银/氧化铝—乙醇体系成功应用于燃气锅炉烟气脱硝示范, 该系统对 NO_x 净化效率大于 80%, 满足国家相应排放标准 (Zhang and He, 2009)。

2.3 应用情景设定

根据柴油车尾气净化技术、烟气脱硝技术以及我国天然气应用规划, 设计了 3 种应用情景模拟试验, 评估四季不同气象条件下各情景对 NO_x 浓度 (图略)、PM_{2.5} 浓度 (图 2) 的影响。

方案 1 为京津冀地区柴油车使用尾气净化技术后交通源削减比例 (以 2006 年为基准), 柴油车使用尾气净化技术后 NO_x 排放削减 87%, 柴油车 NO_x 排放比例约占交通源的 62% (国务院发展中心、中国环境科学研究院 2006 年统计数据), 故交通源削减 $87\% \times 62\% \approx 0.54$ 。方案 2 在方案 1 基础上考虑了天然气的使用及其锅炉烟气脱硝技术的应用。天然气锅炉烟气使用脱硝技术后 NO_x 排放削减约 75%。2015 年我国天然气使用占总能耗比为 8.4%, 天然气燃烧时, NO_x 排放比煤低 75%, CO 排放比煤低 35% (陆家亮, 2009)。我国总能耗中煤炭比例为 70%, 工业用煤占总能耗的 31% (张楚莹等, 2008)。为了便于问题讨论, 本文假定占总能耗 8.4% 的天然气仅应用于工业源 (实际上是工业源、电厂源、交通源、民用源等应用比例的总和, 各源按实际应用的比例分配处理, 方法类同), 则工业源中 PM、SO₂、VOCs 削减 $8.4\% / (70\% \times 31\%) \approx 0.387$; NO_x 削减 $0.387 \times 75\% \approx 0.29$; CO 削减 $0.387 \times 135\% \approx 0.25$ 。方案 3 与方案 2 相似, 但参考国际能源署

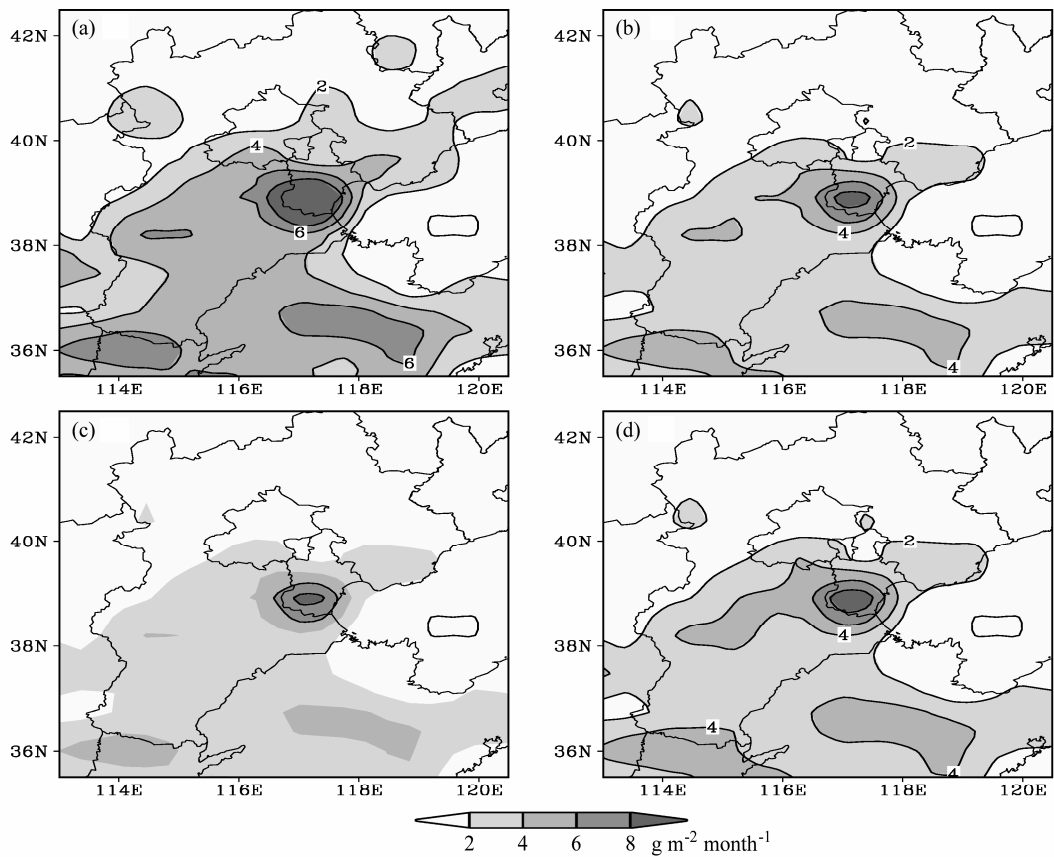


图2 京津冀地区 PM_{2.5} 源排放量的季节分布：(a) 冬季；(b) 春季；(c) 夏季；(d) 秋季
Fig. 2 Emissions of PM_{2.5} (particulate matter with diameters less than or equal to 2.5 μm) concentrations in Beijing, Tianjin, and Hebei Province of China in the four seasons: (a) Winter; (b) spring; (c) summer; (d) autumn

(International Energy Agency, IEA) 2030 年能源规划，届时我国天然气使用占总能耗比达到 16.8% (International Energy Agency, 2007)。各情景下污染物削减比例见表 2。需要指出方案 2 和 3 的削减比例均以 2006 年污染源排放量为基准，即三种方案均评价 2006 年京津冀地区污染源排放量的不同削减幅度对该地区空气质量的影响，引述 2015 和 2030 年的能源规划只是强调天然气应用比例的变化及其实现的可能性。

表 2 应用情景下污染物削减比例
Table 2 Reduction ratios of emitted pollutants under applied scenarios

减排 情景	交通源	工业源				
	NO _x	NO _x	PM	SO ₂	VOC _s	CO
方案 1	0.54	—	—	—	—	—
方案 2	0.54	0.29	0.387	0.387	0.387	0.25
方案 3	0.54	0.58	0.774	0.774	0.774	0.5

注：工业源、交通源为污染源的排放方式，表中数值为京津冀地区源排削减比例，—表示源排放量不变。

3 结果与讨论

NO_x、PM_{2.5} 浓度的观测值来自于中国科学院大气物理所（简称为大气所）325 m 气象观测塔以及由中国科学院主持的北京大气环境监测项目。NO_x 观测设备为美国热电环境设备公司生产的 42CTL 高精度分析仪，最低检测限 0.05 ppb (10⁻⁹) (安俊琳等，2007)，PM_{2.5} 观测设备为美国 Rupprecht & Patashnik 公司生产的颗粒物质量浓度在线分析仪器 rpl400，最低检测限 1.5 μg/m³ (张凯等，2006)。下文先对 NO_x、PM_{2.5} 模拟与观测浓度做比较，然后讨论京津冀地区三种应用情景下 NO_x、PM_{2.5} 减排情况，并提出合理的减排建议，最后指出各种情景下化学过程对 PM_{2.5} 的贡献。浓度改变比例 R 定义如下：

$$R = \frac{S - O}{O} \times 100\%, \quad (1)$$

其中， S 为表 2 中方案 1、2 或 3 情景下 NO_x 或 PM_{2.5} 模拟浓度， O 为未实施任何减排措施时 NO_x

或 PM_{2.5} 模拟浓度。

3.1 模拟与观测值的对比

京津冀地区是本文重点关注的区域,如图 1 所示该区域处于本文模式网格设定的第三重嵌套网格内。选取区域内的 6 个站点(禹城、阳坊、唐山、石家庄、大气所铁塔、保定),各站点有效观测数据集中在 2007 年 8 月 15 日至 9 月 10 日期间,故对比分析该期间内模拟值与观测值。

禹城、阳坊、保定站 NO_x 的日变化和天气变化特征模式反映得很好(图 3a、3b、3f),大多数情况下数值上也非常相近。唐山、石家庄、大气所铁塔站 NO_x 日变化模拟较好,但模拟值明显偏低(图 3c、3d、3e),城区交通源日变化比较明显,而模拟时污染源只有月均排放量,这样模式会低估观测峰值。另外,污染源在空间分布上极不均匀,但模式一般将源排放量均匀分摊到网格上,模式水平分辨率愈粗愈容易低估源排放量(如图 2),从而导致模拟值偏低。

除唐山站外,大多数情况下各站点 PM_{2.5} 模拟值与观测值符合的较好(图 4a、4b、4d、4e、4f),无论是演变趋势还是数值上均具有较好的一致性。唐山站日变化特征模式反映得很好(图 4c),但峰值多数情况下明显偏低,这可能与该地区源排放量

的低估有关(图 2)。

总体来说, WRF-CAMx 耦合模式合理反映了京津冀地区各站点 NO_x、PM_{2.5} 浓度日变化变化和天气变化特征。

3.2 NO_x 应用情景分析

方案 1 只考虑了交通源的削减,冬季、春季、夏季、秋季四季,北京、天津地区 NO_x 下降幅度均超过 20%(图 5),下降幅度超过 20%的范围冬、春、秋季相对较大,而北京、天津部分地区最大下降幅度甚至超过 30%(图 5)。这与北京、天津等超大型城市近年来机动车保有量的迅速增长,导致交通源贡献增大有关。交通源的削减对近地面空气中 NO_x 浓度的影响显著,说明机动车特别是柴油车对城区大气环境中 NO_x 浓度的贡献率是非常高的。单纯削减交通源,对河北省空气中 NO_x 浓度的影响较小,四季下降幅度均在 10%左右,是由于河北省 NO_x 源排放量明显小于北京和天津(图略)。

由于各省柴油品质不同,而且柴油车多为跨区域运行,因而某地区空气中的 NO_x 往往受到其他地区柴油车的影响,因而各省之间需要进行区域性协调,共同管理和控制柴油车的排放。

方案 2 情景包含交通源和工业源的削减,北京、天津地区空气中 NO_x 浓度降低幅度均超过 30%,河

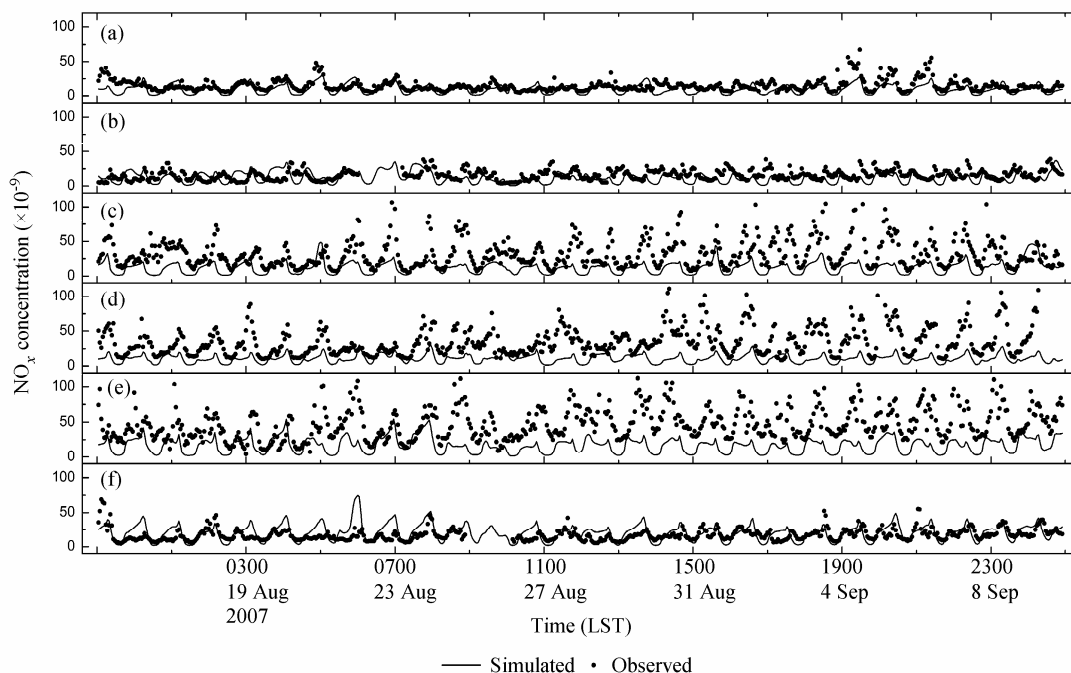


图 3 2007 年 8 月 15 日至 9 月 10 日京津冀地区 (a) 禹城、(b) 阳坊、(c) 唐山、(d) 石家庄、(e) 大气所铁塔、(f) 保定站点近地面 NO_x 浓度的模拟与观测对比

Fig. 3 Simulated and observed NO_x concentrations at sites (a) Yucheng, (b) Yangfang, (c) Tangshan, (d) Shijiazhuang, (e) the tower in the Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, and (f) Baoding in Beijing, Tianjin, and Hebei Province of China from 15 Aug to 10 Sep 2007

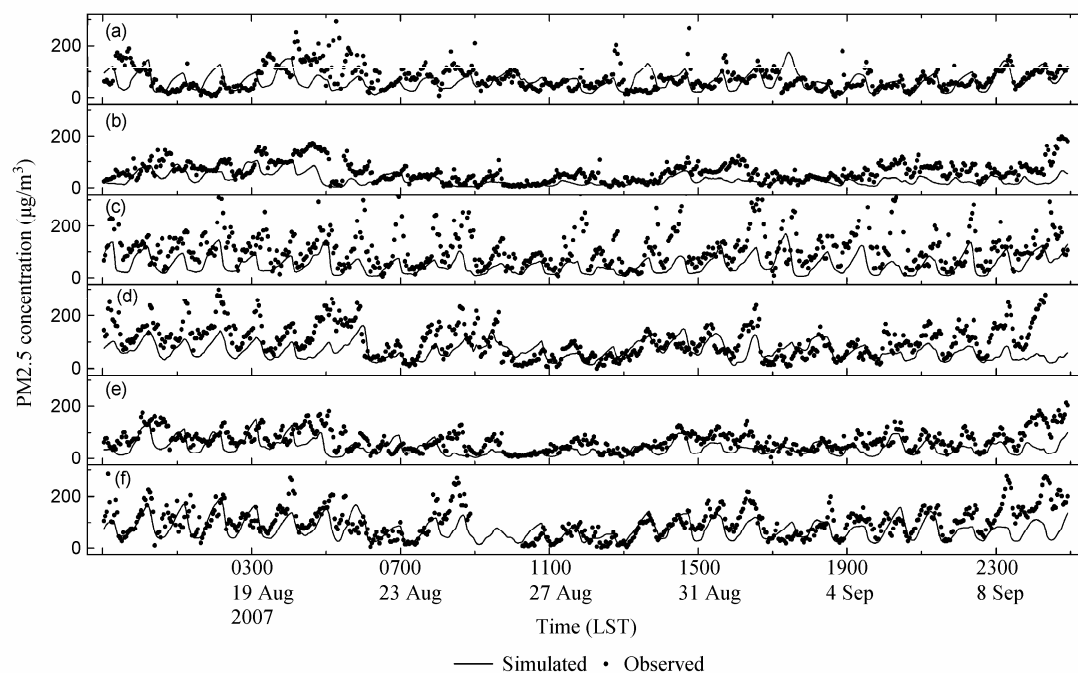


图 4 同图 3，但为 PM_{2.5} 浓度的模拟与观测对比

Fig. 4 Same as Fig. 3, but for PM_{2.5} concentrations

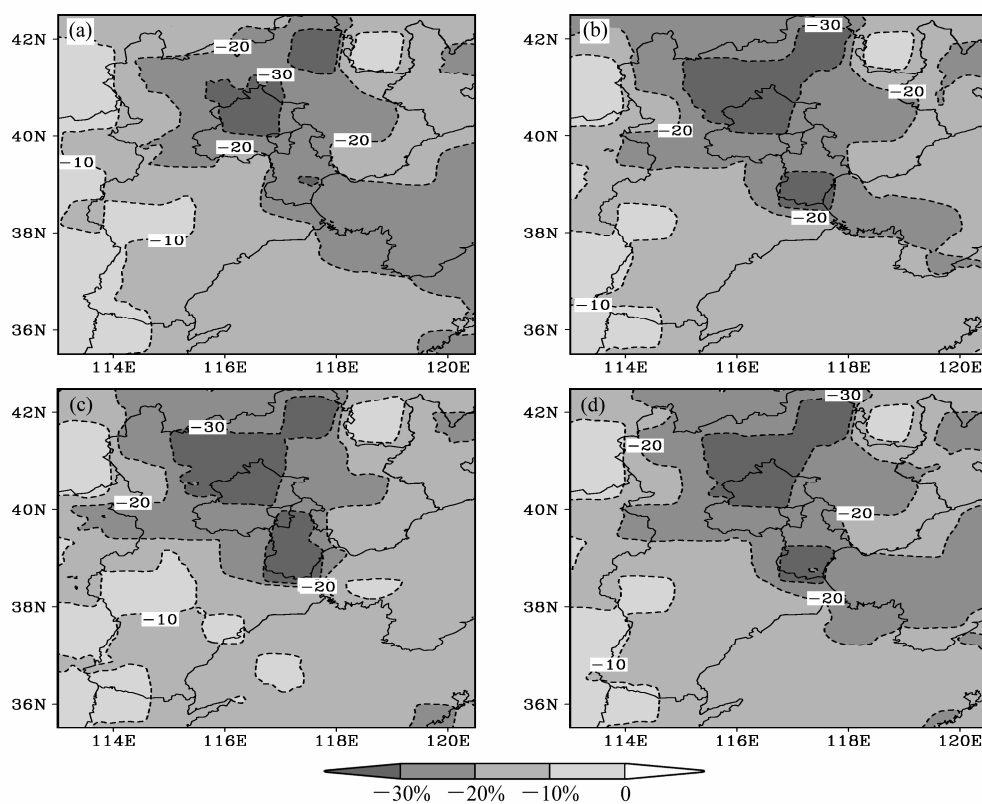


图 5 方案 1 情景下京津冀近地面 NO_x 浓度季节变化：(a) 冬季；(b) 春季；(c) 夏季；(d) 秋季

Fig. 5 Percentage changes in NO_x concentrations in Beijing, Tianjin, and Hebei Province of China in the four seasons for Scenario 1: (a) Winter; (b) spring; (c) summer; (d) autumn

北大部分地区空气中 NO_x 浓度降低幅度也超过 20%，四季均是如此（图 6）。与方案 1 相比清洁能源天然气的使用以及脱硝技术的应用，明显降低了京津冀地区空气中 NO_x 浓度。

在方案 2 基础上天然气使用比例进一步提高时（方案 3），京津冀绝大部分地区空气中 NO_x 浓度降低幅度超过 30%，可是最大降低幅度变化很小（图略），这是由于本研究只考虑了 NO_x 的两大排放源：交通源及工业源，而电厂源没有考虑在内。由此可以看出，一方面加大清洁能源如天然气的使用比例，另一方面加强交通、工业和电厂等重点 NO_x 排放源的控制，才能有效降低空气中 NO_x 浓度。

3.3 $\text{PM}_{2.5}$ 应用情景分析

2005 年，我国 $\text{PM}_{2.5}$ 排放量为 9.79 Mt，与 2000 年相比，其年增长率为 5.4%（张楚莹等，2009），近年来，随着经济的迅猛发展， $\text{PM}_{2.5}$ 源排放增长率也呈增加趋势。 $\text{PM}_{2.5}$ 来源也是十分广泛，覆盖电厂、工业、民用等领域，本研究设置的三个情景主要从交通和工业两方面来探讨 $\text{PM}_{2.5}$ 削减效应。仅削减部分交通源（方案 1），京津冀地区空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度最大降低幅度不超过 10%（图略）。

清洁能源天然气的使用和脱硝技术的应用（方案 2），京津冀地区四季空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度降低幅度均在 10% 到 20% 之间（图略），与方案 1 相比，空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度明显降低，冬季天津、河北省一些地区， $\text{PM}_{2.5}$ 浓度降低幅度超过 20%，这与这些地区 $\text{PM}_{2.5}$ 源排放量偏高有关（图 2a），说明京津冀地区，工业源是空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要来源之一。

天然气使用比例进一步增大时（方案 3），京津冀绝大部分地区四季空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度降低幅度都超过 20%，天津、河北省中部地区 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度降低幅度超过 30%（图 7，大幅度削减区与源排放高值区相一致，见图 2），其中冬季 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度降低幅度超过 30% 的区域最大，这与冬季取暖对煤炭的消耗量大有关（图 2），也说明燃煤是京津冀地区空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 的一个重要来源，提高清洁能源如天然气的使用比例对空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 的降低非常有效。

3.4 化学过程对京津冀地区空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 的影响

NO_x 是大气中主要的含氮污染物，其人为源主要是燃料的燃烧（唐孝炎等，2006）， NO_x 还是 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要前体物，即部分 NO_x 会经过二次气粒转化的化学过程形成 $\text{PM}_{2.5}$ ，为了估算源不变条件

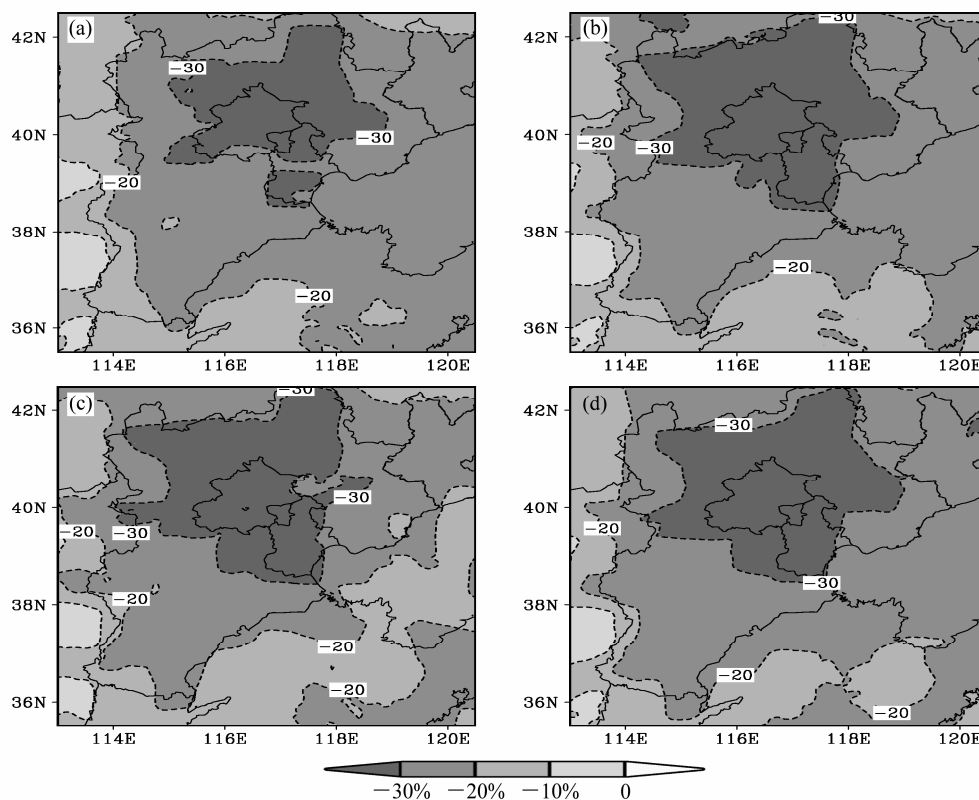


图 6 同图 5，但为方案 2

Fig. 6 Same as Fig. 5, but for Scenario 2

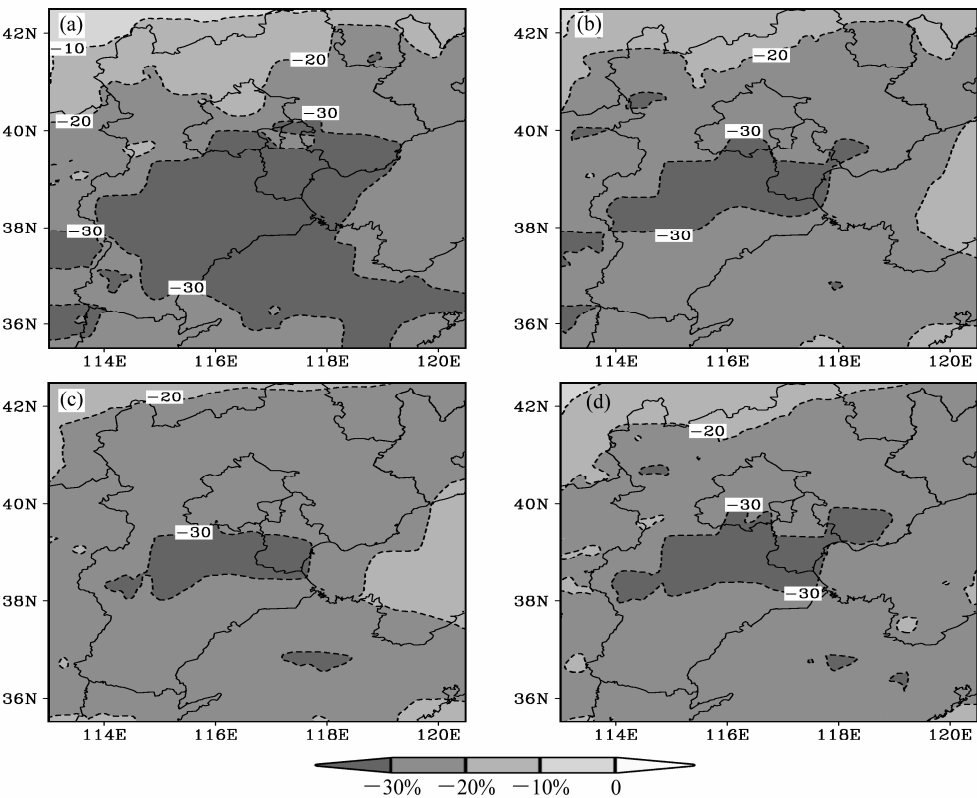


图7 同图5，但为方案3
Fig. 7 Same as Fig. 5, but for Scenario 3

表3 源不变条件下化学过程对PM2.5主要组分的贡献率
Table 3 Percentage of concentration changes of main PM2.5 components with and without chemical processes to concentrations of the corresponding main PM2.5 components with chemical processes under the condition of no changes in emissions

	硝酸盐 (NO ₃ ⁻)				硫酸盐 (SO ₄ ²⁻)				铵盐 (NH ₄ ⁺)			
	冬季	春季	夏季	秋季	冬季	春季	夏季	秋季	冬季	春季	夏季	秋季
最小值	64.9%	2.5%	2.4%	5.1%	4.1%	14.7%	35.2%	14.8%	21.7%	23.2%	23.2%	20.8%
最大值	69.6%	59.7%	38.6%	59.6%	8%	66.8%	74.6%	74.6%	23.7%	25%	26.3%	24.4%

下以及各应用情景下化学过程对京津冀地区大气中PM2.5的贡献，关闭空气质量模式中化学模块相关选项，重新计算。源不变条件下，PM2.5主要组分开关化学模块模拟结果的改变量与未作改变条件下PM2.5相应组分模拟结果的比值即为贡献率，最大和最小贡献率见表3，其它情景类同。

由模式结果可知，硝酸盐、硫酸盐、铵盐为京津冀地区空气中PM2.5的主要组分，表3为化学过程对硝酸盐、硫酸盐、铵盐的最大与最小贡献，三种应用情景下最大与最小贡献与源不变条件下相近（表略）。

源不变条件下化学过程对硝酸盐浓度的贡献冬季最大（图8），整个京津冀地区的贡献率均超过

65%；春秋两季的贡献率在50%左右，春季略高；夏季的贡献率则最小，北京南部、天津大部分地区及河北省其贡献率为30%左右，北京北部地区，其贡献率仅有20%。冬季与夏季之间的降水差异，以及硝酸盐干沉降速率在冬季与夏季之间的差异，可能是化学过程对硝酸盐贡献冬季最大而夏季最小的主要原因。化学过程对硫酸盐的影响在春、夏、秋三个季节比较显著，其最大贡献率均在70%左右。与冬季相比，春、夏、秋季光照增强。利于光化学反应的发生，致使硫酸盐浓度增升。铵盐四季的贡献基本一致，约23%（表3）。

源不变条件下化学过程对PM2.5浓度的贡献率冬季相对较小（图9），京津冀大部分地区的贡献

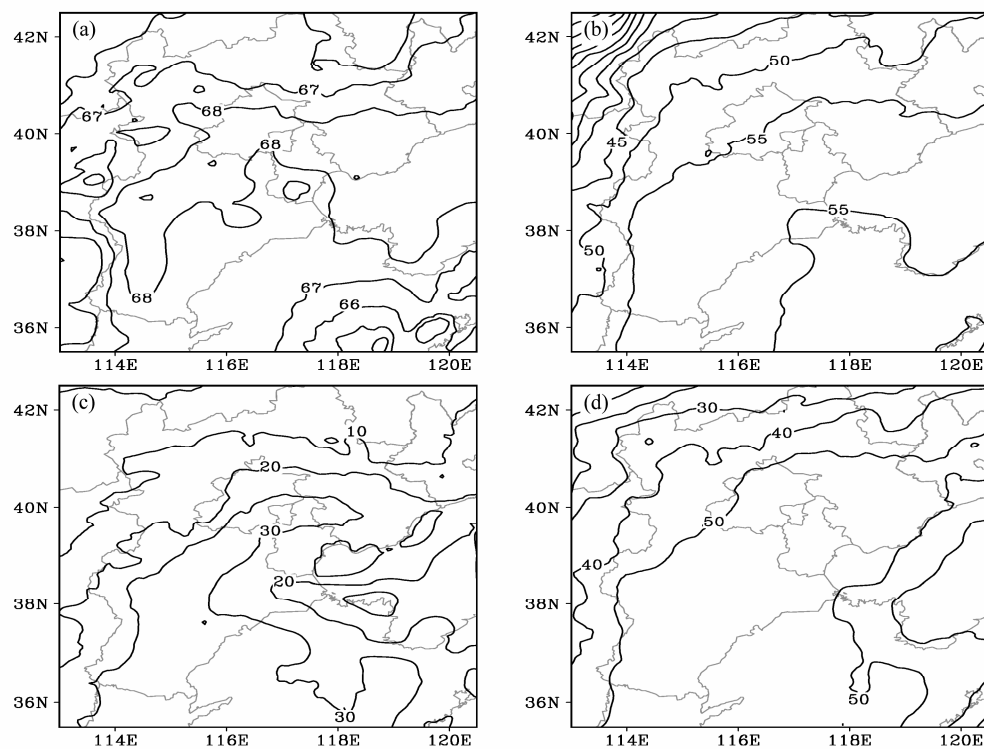


图 8 源不变条件下化学过程对京津冀地区近地面硝酸盐粒子浓度的贡献率季节变化: (a) 冬季; (b) 春季; (c) 夏季; (d) 秋季

Fig. 8 Contributions of chemical processes to nitrate concentrations in Beijing, Tianjin, and Hebei Province of China in the four seasons under the condition of no changes in emissions: (a) Winter; (b) spring; (c) summer; (d) autumn

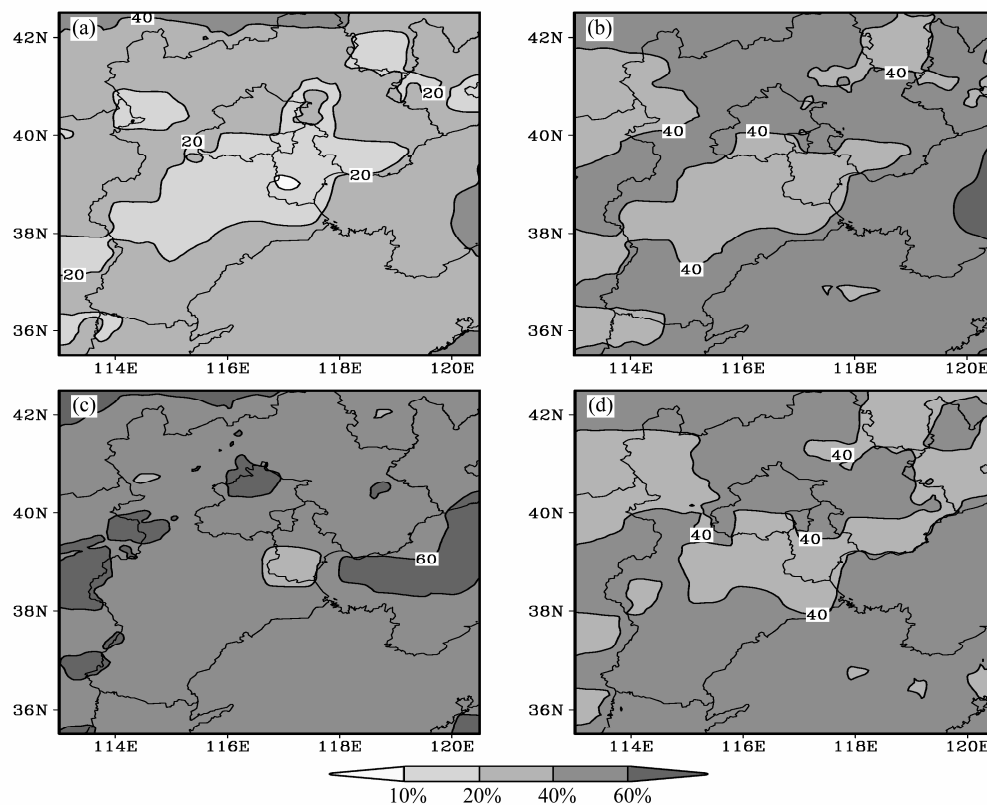


图 9 源不变条件下化学过程对京津冀地区近地面 PM_{2.5} 浓度贡献率的季节变化: (a) 冬季; (b) 春季; (c) 夏季; (d) 秋季

Fig. 9 Contributions of chemical processes to PM_{2.5} in Beijing, Tianjin, and Hebei Province of China in the four seasons under the condition of no changes in emissions: (a) Winter; (b) spring; (c) summer; (d) autumn

率仅为 20%。冬季气温低, 太阳光照弱, 不利于光化学反应的发生, 空气中 PM_{2.5} 的组分以一次气溶胶为主。随着光照增强, 气温增升, 春夏两季化学过程对 PM_{2.5} 的贡献明显增大, 最大贡献甚至超过 60%。三个应用情景中化学过程对京津冀地区空气中 PM_{2.5} 浓度贡献率的季节分布均与源不变条件下类似, 仅是最大贡献率按方案 1、2、3 依次有 5% 左右的递增, 由于应用情景中增加了清洁能源天然气的消费比例, 煤炭等传统能源的消费比例下降, 使得一次气溶胶源排放下降, 二次化学过程的贡献率随之增加。上述结果表明, 京津冀地区二次气粒转化的化学过程对空气中 PM_{2.5} 浓度的贡献率是很大的, 其贡献率等于或略高于一次气溶胶的源排放, 因此若减少空气中 PM_{2.5} 的浓度, 则其主要前体物排放的控制也应优先考虑。

4 结论

本研究利用 WRF-CAMx 耦合模式对京津冀地区脱硝技术与天然气应用情景进行模拟分析试验, 得到以下结论:

(1) 京津冀地区柴油车使用尾气净化技术后, 北京、天津地区空气中的 NO_x 浓度降低 20%, 河北地区降低 5%; 京津冀地区空气中 PM_{2.5} 的浓度降低 10% 左右。在此基础上, 应用 2015 年天然气能源使用规划情景, 京津冀地区空气中 NO_x 和 PM_{2.5} 浓度的降低幅度均超过 20%, 若应用 2030 年天然气能源规划情景, 则 NO_x 浓度降低幅度与之相当, PM_{2.5} 浓度降低幅度超过 30%。由此看出, 脱硝技术的应用以及清洁能源如天然气的使用比例增大, 会明显降低京津冀地区空气 NO_x、PM_{2.5} 浓度。

(2) 硝酸盐、硫酸盐、铵盐是京津冀地区化学过程形成 PM_{2.5} 中的主要组分, 化学过程产生的硝酸盐在冬、春、秋季最高达 60% 左右, 硫酸盐在夏、秋季最高超过 70%, 铵盐四季最大约 25%。这表明, 京津冀地区化学过程对 PM_{2.5} 浓度贡献很大, 其主要前体物 NO_x、SO₂、NH₃、VOCs、CO 等均应削减才能有效降低该地区空气中的 PM_{2.5} 浓度。

致谢 感谢中国科学院大气物理研究所王跃思研究员提供京津冀地区 6 个观测站点的 NO_x 和 PM_{2.5} 的观测资料。

参考文献 (References)

安俊琳, 王跃思, 李昕, 等. 2007. 北京大气中 NO、NO₂ 和 O₃ 浓度变化

的相关性分析 [J]. 环境科学, 28 (4): 706–711. An Junlin, Wang Yuesi, Li Xi, et al. 2007. Analysis of the relationship between NO, NO₂, and O₃ concentrations in Beijing [J]. Environmental Science (in Chinese), 28 (4): 706–711.

An J L, Li Y, Wang F, et al. 2011. Impacts of Photoexcited NO₂ Chemistry and Heterogeneous Reactions on Concentrations of O₃ and NO_y in Beijing, Tianjin and Hebei Province of China [M]. Air Quality/Book 1 (ISBN 978–953–307–1405–9): 197–210

ENVIRON. 2002. User's Guide to the Comprehensive Air Quality Model with Extensions [M]. Version 4.4. <http://www.camx.com/>.

Han Z W, Hiromasa U, An J L. 2008. Evaluation and intercomparison of meteorological predictions by five MM5-PBL parameterizations in combination with three land-surface models [J]. Atmos. Environ., 42 (2): 233–249.

郝吉明, 王丽涛, 李林, 等. 2005. 北京市能源相关大气污染源的贡献率和调控对策分析 [J]. 中国科学 D 辑 (地球科学), 35: 115–122. Hao Jiming, Wang Litao, Li Lin, et al. 2005. Energy-related air pollution in Beijing's contribution rate and control countermeasures [J]. Science in China (Series D) (in Chinese), 35: 115–122.

贺泓, 李俊华, 何洪, 等. 2010. 环境催化—原理及应用 [M]. 北京: 科学出版社, 19–46. He Hong, Li Junhua, He Hong, et al. 2010. Principle and Application of Environmental Catalysis (in Chinese) [M]. Beijing: Science Press, 19–46.

International Energy Agency. 2007. World Energy Outlook 2007 [M]. Paris: IEA Publications, 81pp.

Li Y, An J L, Min M, et al. 2011. Impacts of HONO sources on the air quality in Beijing, Tianjin, and Hebei Province of China [J]. Atmos. Environ., 45 (27): 4735–4744.

陆家亮. 2009. 中国天然气工业发展形势及发展建议 [J]. 天然气工业, 29 (1): 8–12. Lu Jialiang. 2009. China natural gas industry development situation and development proposals [J]. Natural Gas Industry (in Chinese), 29 (1): 8–12.

Richter A, Burrows J P, Hendrik N, et al. 2005. Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space [J]. Nature, 437: 129–132.

Skamarock W C, Klemp J B, Dudhia J, et al. 2005. A description of the advanced research WRF version 2 [R]. NCAR/TN-468+STR: 88pp.

Streets D G, Bond T C, Carmichael G R, et al. 2003. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000 [J]. J. Geophys. Res., 108 (D21), doi: 10.1029/2002JD003093.

唐孝炎, 张远航, 邵敏, 等. 2006. 大气环境化学 [M]. 北京: 高等教育出版社, 58–60. Tang Xiaoyan, Zhang Yuanhang, Shao Min, et al. 2006. Atmospheric Environmental Chemistry (in Chinese) [M]. Beijing: Higher Education Press, 58–60.

田贺中, 郝吉明, 陆永琪, 等. 2001. 中国氮氧化物排放清单及分布特征 [J]. 中国环境科学, 21 (6): 493–497. Tian Hezhong, Hao Jiming, Lu Yongqi, et al. 2001. Inventoris and distribution characteristics of NO_x emissions in China [J]. China Environmental Science (in Chinese), 21 (6): 493–497.

Yu Y B, Song X P, He H, et al. 2010. Remarkable influence of reductant structure on the activity of alumina-supported silver catalyst for the selective catalytic reduction of NO_x [J]. Journal of Catalysis, 271 (2):

- 343–350.
- 张楚莹, 王书肖, 邢佳, 等. 2008. 中国能源相关的氮氧化物排放现状与发展趋势分析 [J]. 环境科学学报, 28 (12): 2470–2479. Zhang Chuying, Wang Shuxiao, Xing Jia, et al. 2008. Current status and future projections of NO emissions from energy related industries in China [J]. Acta Scientiae Circumstantia (in Chinese), 28 (12): 2470–2479.
- 张楚莹, 王书肖, 赵瑜, 等. 2009. 中国人为源颗粒物排放现状与趋势分析 [J]. 环境科学, 30 (7): 1881–1887. Zhang Chuying, Wang Shuxiao, Zhao Yu, et al. 2009. Current status and future prospects of anthropogenic particulate matter emissions in China [J]. Environmental Science (in Chinese), 30 (7): 1881–1887.
- Zhang L, He H. 2009. Mechanism of selective catalytic oxidation of ammonia to nitrogen over Ag/Al₂O₃ [J]. Journal of Catalysis, 268 (1): 18–25.
- 张凯, 王跃思, 温天雪, 等. 2006. 北京大气重污染过程 PM10 中水溶性盐的研究 [J]. 中国环境科学, 26 (4): 385–389. Zhang Kai, Wang Yuesi, Wen Tianxue, et al. 2006. Studies on water soluble salts in PM10 during the heavy pollution process in Beijing [J]. China Environmental Science (in Chinese), 26 (4): 385–389.
- Zhang Q, Streets D G, He K, et al. 2007. NO_x emission trends for China, 1995–2004: The view from the ground and the view from space [J]. J. Geophys. Res., 112 (D22306), doi:10.1029/2007JD008684.
- Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, et al. 2009. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 9: 5131–5153.
- 张远航. 2001. 北京市大气颗粒物细粒子污染特征和来源分析[C]// 中国工程院编. 工程科技论坛 (第十四场): “燃烧源可吸入颗粒物的环境问题” 报告专家论文集, 13–14. Zhang Yuanhang. 2001. An analysis of the pollution characteristics and sources from atmospheric fine particles in Beijing [C]// Chinese Academy of Engineering. Symposium on Engineering Sciences (part 14): “On the Environmental Problem of Breathable Particles from Combustion Sources” (in Chinese), 13–14.