中国大陆地区大气环境容量及城市大气环境荷载

徐大海^{1*}, 王郁¹, 朱蓉²

1. 灾害天气国家重点实验室和中国气象局大气化学重点开放实验室, 中国气象科学研究院, 北京 100081;

2. 国家气候中心, 北京 100081

* E-mail: xudh2013@qq.com

责任编辑: 王体健

收稿日期: 2017-04-19; 接受日期: 2017-08-18; 网络版发表日期: 2017-11-02

国家自然科学基金项目(批准号: 41405136)资助

摘要 根据中国大陆378个气象站1975~2014年共40年的逐日有效的小时观测数据, 计算出了逐日、逐年平均的大气环境容量系数 A 值序列, 并使用Pearson III型曲线, 拟合出了不同重现期的 A 值. 利用 A 值序列和源、汇平衡原理, 给出了在平衡浓度为 $100\mu\text{g m}^{-3}$ 时的中国大陆和各省级行政区的相应重现期的大气环境容量参照值, 其中中国大陆气候平均的参照值为 $2169\times 10^4\text{t a}^{-1}$. 此外, 定义了城市大气环境荷载指数, 以此分析中国大陆人口密集程度对大气环境所产生的负荷, 该指数亦可用于分辨空气质量变化的气象或人为排放成因的贡献. 同时还提出了城镇建成区面积扩张和增加城市人口密度时, 为保持空气质量不恶化, 而对城市面源排放率和排放率密度进行限制的计算公式.

关键词 大气环境容量, Pearson III曲线, 重现期, 城市大气环境荷载指数, 排放率密度

1 引言

在区域环境大气质量管理中, 确定较大尺度的大气环境容量和局地尺度上各污染源的允许排放量是重要的, 前者的限制以避免污染物在区域内累积, 后者的限制以避免监测点浓度超出标准限值(徐大海和王郁, 2013). 本文的研究目标集中于确定大气环境容量及其统计特征量, 这对区域大气污染源管理和城市群规划工作显然是很有裨益的, 然而如何确定它却是一个挑战性的工作.

目前很多研究(孙维等, 2015; 薛文博等, 2014; 钱跃东和王勤耕, 2011; 李莉等, 2010; 徐鹤等, 2010; 肖杨等, 2008; 安兴琴等, 2004)确定大气环境容量的方法是使用排放源清单, 通过多源模型模拟, 以检测点位的目标污染物浓度达到国家标准为约束, 再用最优排放率确定大气环境容量. 该方法的优点是将大气环境容量与环境质量标准直接对应, 便于控制排放. 用模拟法确定随机性的大气环境容量除了考虑气象条件的随机特征量, 还涉及排放源的随机特征. 然而不同时期的排放源的统计特征量母体是不同的, 工作中常用参

中文引用格式: 徐大海, 王郁, 朱蓉. 2018. 中国大陆地区大气环境容量及城市大气环境荷载. 中国科学: 地球科学, 48: 924-937, doi: 10.1360/N072017-00131
英文引用格式: Xu D H, Wang Y, Zhu R. 2018. Atmospheric environmental capacity and urban atmospheric load in mainland China. Science China Earth Sciences, 61: 33-46, <https://doi.org/10.1007/s11430-017-9099-0>

照气象条件和排放源情景设置来替代, 因而对计算出的大气环境容量统计特征的可信程度不明. 事实上这种仅考虑排放源而不直接考虑区域内清除和累积过程的模拟法, 确定的是在给定情景下的允许排放总量.

大气环境容量应该是排放源的排放率和大气汇的清除率在给定浓度水平上的平衡表达, 因此定义大气环境容量为: 在给定空气体积中和给定时段内, 当某种污染物在给定平均浓度水平上, 其产生量(源)和大气清除量(汇)达到平衡状态时, 就称该平衡量为在此平均浓度阈值下的大气环境容量(徐大海和王郁, 2013; 徐大海等, 2016). 由此, 大气环境容量的确定就转化为在给定阈值浓度时大气对污染物的清除量的确定. 其优点在于: 该方法确定的大气环境容量取决于自然条件, 与污染源的特性无关, 采用样本的母体相对单一, 统计参数稳定, 其频率曲线易于用理论曲线拟合. 其缺点在于理论上不能与给定检测点位的浓度一一对应, 还需要进一步使用多源模型确定允许排放量. 但是在限制允许排放总量小于大气环境容量的条件下, 根据平衡原理不会出现污染物累积效应, 用这种原理确定大气环境容量的方法就是《制定地方大气污染排放标准的技术方法GB/T 3840-91》(1991)中给出的A值法.

但是, 要进一步指出的是, 大气污染物的自然清除过程主要为平流通风、湍流扩散、干湿沉积等物理

过程以及化学转化两大类过程, 而A值法目前尚不能处理化学过程, 由此求得的容量只是一种理想的物理容量, 必然不大于考虑化学转化过程的大气环境“真”容量. 由于大气中的二次污染物, 化学过程出现在生成项中, 在大气清除项中只有物理迁移过程, 因此由A值法求得的二次污染的物理容量应更接近于“真”容量, 除非存在进一步的化学清除过程.

本文在大气污染物边界层内均匀分布的参照浓度 C_r 为 $100\mu\text{g m}^{-3}$ 的条件下, 使用A值法探讨了中国大陆地区大气对污染物的参照年物理清除量(以下简称为清除率). 同时也给出了大陆各省级行政区的气候平均及不同重现期下的清除率等, 并以此作为参照值估算了中国大陆一些具体污染物种的大气环境理想容量(以下简称大气环境容量). 此外还分析了城市尺度对城市大气污染物清除率的影响, 并讨论了城市扩张和人口集聚对环境大气产生的荷载.

2 数据和方法

2.1 数据

本文所用资料为中国气象局国家气象信息中心提供的地面观测定时值数据, 选取1975~2014年共40年的历史数据, 考虑到所需观测资料的一致性和完备性, 经过筛选使用了378站的资料, 站点分布见图1.

图1 所用气象站点分布

2.2 方法

大气污染物自然清除过程中的化学转化常常将部分一次排放污染物转变为二次细颗粒物, 其间还可能产生臭氧, 因此在污染物总体上不具有完整的清除意义. 就物理过程而言, 徐大海等(2016)在理论上提供了在排放和自清除过程, 也就是源和汇的相互作用下, 区域内大气污染物浓度的时变公式为

$$\bar{c} = \frac{q}{A \times \sqrt{S}} \times \left(1 - e^{-\frac{A}{H \times \sqrt{S}} \times t}\right) + \bar{c}_0 e^{-\frac{A}{H \times \sqrt{S}} \times t}, \quad (1)$$

式中, t 为时间变量, 而

$$A = 0.0031536 \times \frac{\sqrt{\pi} \times U \times H}{2} \times \left(1 + \frac{2 \times \sqrt{S} \times (v_d + w_r \times R)}{\sqrt{\pi} \times U \times H} \times 10^3\right), \quad (2)$$

式中, A 为大气环境容量系数, $10^4 \text{ km}^2 \text{ a}^{-1}$, 表达了大气的物理自清除能力; q 为体积块内的污染物的排放率, 10^4 t a^{-1} ; $\bar{c}$ 为污染物平均浓度, mg m^{-3} ; S 为区域面积, km^2 ; U 为平流+伪扩散速度, m s^{-1} ; H 为大气边界层厚度(徐大海, 1987; Zilitinkevich, 1972), m , 其计算公式及系数取值, 见标准 GB/T3804-91 的附录 E-E1; v_d 为干沉积速度(Chamberlain, 1953), 是干沉积通量对浓度的比值, 取值范围见(李宗恺等, 1985), m s^{-1} ; w_r 为清洗比(徐大海和朱蓉, 1989), 无量纲数, 当降水单位为 mm a^{-1} 时为 1.9×10^{-5} ; R 为年降水量, mm a^{-1} . 降水的清洗作用可用湿沉积速度 v_w 表示: $v_w = w_r \times R$. 在城市尺度上确定容量系数 A 值时, 通风项的贡献值起主导作用.

在无源的条件下, $q=0$, 式(1)即为

$$\bar{c} = \bar{c}_0 e^{-\frac{A}{H \times \sqrt{S}} \times t} = \bar{c}_0 e^{-\frac{t}{T}}, \quad (3)$$

式中, T 为浓度衰减时间尺度.

当 S 的单位使用 m^2 , 相应 A 的单位为 $\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$, q 的单位为 mg s^{-1} 时, 式(2)可写为如下形式:

$$A = \frac{\sqrt{\pi} \times U \times H}{2} + (v_d + v_w) \sqrt{S}, \quad (4)$$

再由式(3)的后一个等式得到

$$\frac{\sqrt{\pi} \times U}{2 \sqrt{S}} + \frac{v_d + v_w}{H} = \frac{1}{T}. \quad (5)$$

如设区域的特征尺度 L 是面积 S 的等效直径, 即 $L = 2 \sqrt{S/\pi}$, 那么式(5)的左方第一项可写为 $1/T_L = U/L$, T_L 就是平流扩散速度 U 穿越区域尺度 L

的特征时间. 再设 $T_h = H/(v_d + v_w)$, 这里 T_h 就是干湿沉积速度穿越边界层厚度的特征时间. 那么(5)式即为

$$\frac{1}{T} = \frac{1}{T_L} + \frac{1}{T_h}. \quad (6)$$

由于在城市尺度上 T_L 决定着 T , 因此当城市区域的最小尺寸沿着盛行风向时, 可得到最短的衰减时间尺度, 因为污染物能尽快地平流出城区以外. 此外, 城市面积增大会导致有效直径增加, 而大气污染物浓度的衰减特征时间与有效直径成正比比例.

当大气的清除率和污染物的排放率达到平衡时, 其排放率即为大气对污染物的清除率. 故在式(1)中取 $\bar{C} = C_r$, $t \rightarrow \infty$, 此时平衡, 便得到

$$q = C_r \times A \times \sqrt{S}. \quad (7)$$

这时 q 就是 S 面积上的清除率. 此外, 在论述中还需用到清除率密度的概念, 实际上就是面源(汇)的强度定义, 清除率对面积的比值 $Q_d = q/S$, 将式(7)两端除以面积 S , 得到清除率密度:

$$Q_d = \frac{A \times C_r}{\sqrt{S}}. \quad (8)$$

如果在给定 A 值的控制区面积 S 内, 存在 $i = 1 \dots n$ 个子区 S_i , 而每个子区内浓度标准限值为 c_i , 那么 S_i 内的 q_i , 按国标 GB/T3840-91 应为 $q_i = A \times c_i \times S_i / \sqrt{S}$. 如果在各子区内 A 值不同, 而浓度限值取同一个参照浓度 C_r , 那么根据同样的推导原理(徐大海等, 1990), 也可得到

$$q_i = A_i \times C_r \times S_i / \sqrt{S}. \quad (9)$$

在本文中用式(9)来计算具有不同 A 值子域的控制区 S 的大气环境容量.

3 中国大陆地区大气污染物不同重现期的年均清除率

3.1 中国大陆地区年均 A 值的分布形势及其应用分析

使用中国大陆地区 378 个气象站(图1)1975~2014 年逐时记录中可用的数据, 按式(2)计算了小时、日、年平均的 A 值. 运用 Pearson III 型曲线拟合方法(徐大海等, 2016), 得到了各站点的 5、10、20、30、100 年重现期的 A 值. 重现期 A 值的定义, 是指以某一时段平均的 $\bar{A} = a$, 在以该时段为间隔的采样中出现 $\{a \leq a_p\}$ 这

一事件的概率为 $p\{a \leq a_p\}$, 那么出现该事件的时间间隔的平均值 T 称重现期, 它等于事件出现概率的倒数 $T = 1/p\{a \leq a_p\}$, T 重现期的 A 值为 a_p .

由于中国秋冬季节易发生污染天气, 尤其在11月至次年2月期间是持续时间长、污染强度大的重污染天气高发期, 因此也对这个污染高发季(11月至次年2月)的数据作了同样的计算. 限于篇幅, 这里仅给出气候平均(1975~2014年共40年平均)(图2a)和5年重现期年均图(图2b)、污染高发季的气候平均图(图2c)和相应5年重现期平均图(图2d). 从图2可以分析到以下分布特点.

(1) 中国大部分地区的气候平均 A 值分布在2~10(图2a), 大体上和1991年颁布的国标GB/T3840-91规定的数值1.4~8.4(当时所用气象记录年代为20世纪50~80年代)一致. 其差异在于: 图2a上的青海西南部出现了 A 值大于10的地区, 这是由于制定国标时未能统计到该高原地区的完整气象数据; 而由于非技术性原因, 国标规定新疆的 A 值比原来计算给出的实际值偏大; 此外, 图2a上在南岭一线以南滨海到云南大部分地区的

A 值比国标规定值要高, 是因为此次计算考虑了干、湿沉积作用, 而该地区植被好、降水量大. 但是总体而言, 图2a与国标规定值是一致的, 这说明从20世纪50年代以来表达大气自清除能力的气候状态大体上是稳定的, 也可认为 A 值作为指标, 在气候学上的统计特征是稳定的.

(2) 经过面积加权平均, 全国气候平均 A 值为6.8, 5年重现期的年均值为5.9. 如设定小于全国均值的为低值区, 高于全国均值的为高值区. 可见气候平均(图2a)和5年重现期(图2b)的低值区在中国东南部, 与中国相对湿度和人口分布的势态一致. 这是因为该地区气流交换平缓、易于保持大气中的水分和热量, 植被相对丰茂. 在污染高发季(图2c和d), 全国气候平均的 A 值为5.4, 而5年重现期的均值为4.5, 比全年的相应数据下降21%和24%, 也就是说, 要保持冬季空气质量达到年均标准, 需按同样的比例下调排放率. 污染高发季气候平均 A 值在6以下的人口密集城市为中国秋冬季大气污染超标的频发地区(图2c).

(3) 中国大气清除能力最差的地区出现在青藏高

图 2 不同重现期的 A 值分布图

(a) 气候平均; (b) 五年重现期; (c) 污染高发季气候平均; (d) 污染高发季五年重现期

原东侧的风影区(图2a),即四川东部、甘南、陕南、湘西、鄂西,此外在东南丘陵西侧和南岭北侧也是低 A 值区域,这些地区如要保持相同空气质量,其排放率应在全国平均的一半以下.高 A 值区(图2a)在青藏高原、甘北、内蒙到东北平原一线,其 A 值在8~14左右,约比全国平均高出0.5到一倍.而最有利用有价值的高 A 值区(图2a)在中国粤、桂、浙、沪沿海地带,以及山东半岛、辽东半岛,这些地区的清除率高出全国平均近一倍左右且其他可利用资源丰富,特别有利于经

济发展.

3.2 中国大陆地区不同重现期的年均清除率的估算

考虑大范围地区,各地 A 值不同,故按式(9)计算清除率.由各站点计算的 A_i 值及该站点所代表区域的面积 S_i 和参照年均浓度限值 $C_r=100\mu\text{g m}^{-3}$, S 为大陆地区总面积,计算得到的各省市自治区的参照大气清除率(表1).

表1 中国大陆地区环境大气在参照浓度为 $100\mu\text{g m}^{-3}$ 时对污染物的年参照清除率(10^4t a^{-1})

重现期(a)	气候平均	5	10	20	30	100
北京	3.44	3.11	3.04	2.93	2.77	2.69
天津	3.44	2.99	2.88	2.71	2.46	2.34
河北	38.13	34.17	33.39	31.99	29.82	28.93
山西	32.17	28.22	27.43	26.41	24.9	24.12
内蒙	302.24	276.59	271.32	263.21	251.07	245.66
辽宁	42.3	39.05	38.15	36.7	34.43	33.46
吉林	45.42	40.49	39.51	37.83	35.18	34.08
黑龙江	104.37	91.12	88.43	84.69	79.12	76.41
上海	1.71	1.51	1.47	1.42	1.35	1.31
江苏	21.42	18.75	18.94	18.15	16.75	17.39
浙江	23.26	21.58	21.26	20.53	19.33	18.98
安徽	23.74	19.97	19.3	18.08	16.21	15.51
福建	18.01	15.8	15.36	14.67	13.65	13.17
江西	20.9	17.58	16.88	15.93	14.55	13.86
山东	49.4	43.76	42.93	40.92	37.65	36.77
河南	33.44	29.45	28.62	27.39	25.52	24.67
湖北	24.48	20.85	20.07	19	17.43	16.64
湖南	27.77	24.71	24.39	23.41	21.83	21.61
广东	57.52	53.86	52.67	51.18	49	47.8
广西	57.59	52.24	50.88	49.15	46.6	45.2
海南	15.64	14.23	13.88	13.48	12.94	12.62
四川	72.24	61.37	59.15	56.2	52	49.86
重庆	9.21	7.64	7.3	6.87	6.23	5.91
贵州	36.08	30.57	29.48	27.83	25.35	24.23
云南	96.96	83.73	81.35	77.18	71.1	68.69
西藏	313.43	274.56	265.84	254.65	238.21	229.35
陕西	29.28	24.64	23.78	22.44	20.44	19.57
甘肃	89.87	80.36	78.23	75.35	71.12	68.95
青海	192.41	170.78	166.06	160	151.29	146.68
宁夏	12.85	10.28	9.73	9.09	8.19	7.69
新疆	370.6	319.58	308.76	293.71	271.51	260.79
合计	2169.32	1913.54	1860.48	1783.1	1668	1614.94

如果目标污染物为SO₂, 年均标准限值为60μg m⁻³, 那么对应的气候平均清除率为列表数量的60/100. 对气候平均而言, 全国参照清除率为2169.32×10⁴t a⁻¹, 对应SO₂的全国总清除率应为2169.32×(60/100)=1301.592×10⁴t a⁻¹. 用相应年均标准浓度折算后可得到SO₂、NO₂、NO_x、PM₁₀、PM_{2.5}、NH₃的气候平均容量、重现期容量(表2), 其中NH₃的年均浓度阈值暂按原行业标准[HJ/T 2.2-93](1993)取为一次浓度限值(200μg m⁻³)的0.12倍.

薛文博等(2014)使用2010年1、4、7、10四个月的逐时气象数据, 在全国333个地级市PM_{2.5}达标的约束条件下, 通过WRF-CAMx的多源化学过程模拟、优化削减得到全国大气容量是, SO₂为1363.26万吨, NO_x为1258.48万吨, 一次PM_{2.5}为619.04万吨, NH₃为627.71万吨. 这表明有化学过程且有二次污染物达标约束的模拟结果与表2的气候平均值相比, 除一次排放PM_{2.5}的容量略偏低外, 原生污染物的容量都略偏高, 与化学过程增加了部分前体污染物容量的概念一致. 此外还要指出的是, 不同污染物种的沉降参数是不同的, 由于数据的缺乏, 本文未能给予订正, 但是在容量的一般计算中沉降的贡献甚小于通风的贡献, 因此其结果还是可供参考的.

由于中国东、西部地区发展存在前后差异, 因此有明确东部大气环境容量的必要. 若在表1的合计量中, 直接除去西部地区(西藏、甘肃、青海、宁夏、新疆、内蒙、贵州、云南)的清除率, 中国东部参照清除率(以下简称“清除率”)为754.88×10⁴t a⁻¹. 如果完全排除上述西部地区的排放对内地的影响, 东部各省的清除率见表3, 合计清除率为全国的0.56倍, 即1210.7×10⁴t a⁻¹, 同时东部各地的局部清除率有所增加, 如河北省的清除率由38.13×10⁴t a⁻¹增加到61.2×10⁴t a⁻¹, 增加了

0.6倍.

如果都使用气候平均清除率计算出的大气环境容量来安排大气污染物的排放, 由于年均A值接近正态分布, 那么年平均浓度的超标几率大约为50%, 即全国站点有半数会出现超标现象. 表1~3中各重现期的清除率, 是按Pearson III型概率分布计算的结果. 如果各地都使用5年重现期的清除率计算大气环境容量, 那么每年均值可能出现超标的站点数为20%. 而按30年重现期的计算大气环境容量, 超标站点数仅为3.3%, 使用百年一遇的值计算大气环境容量, 超标站点数仅为1%.

图3为按式(9)计算的各地每平方公里的气候平均和5~20年重现期的清除率. 图3a上大部分地区每平方公里大约可自清除1~3吨, 沿海和西部地区每平方公里大约可自清除2~4吨或以上. 计算中总面积为全国大陆的总面积, 子面积为1km². 由于式(9)中的子面积有可叠加性, 因此在使用中, 可根据当地面积和图中当地的清除率数据相乘即可. 例如控制区在北京地区附近, 面积为2×10⁴km², 那么气候平均的清除率估计为6×10⁴t a⁻¹, 30年重现期的清除率估计为3×10⁴t a⁻¹. 这些图中表达的清除率, 可供各地对排放源进行规划时参考.

4 中国大陆地区不同重现期日均清除率的估算

使用2.1节计算年均数据的资料和同样的统计方法得到了7、10、20、30、100日重现期的日均A值, 10~100日重现期A值分布见图4. 该组数据可用于估算不同重现期的日均大气清除率和清除率密度, 安排低架源排放率, 按重现期控制稳定大气条件下的空气

表2 中国大陆地区SO₂、NO₂、NO_x、PM₁₀、PM_{2.5}、NH₃的大气环境容量(10⁴t a⁻¹)

重现期(a)	气候平均	5	10	20	30	100
SO ₂	1302	1148	1116	1070	1001	969
NO ₂	868	765	744	713	667	646
NO _x	1085	957	930	892	834	807
PM ₁₀	1519	1339	1302	1248	1168	1130
PM _{2.5}	759	670	651	624	584	565
NH ₃	521	459	447	428	400	388

表3 中国东部地区($3.74 \times 10^6 \text{ km}^2$)在不考虑西部污染源排放影响时的参照清除率(10^4 t a^{-1})

重现期(a)	气候平均	5	10	20	30	100
北京	5.52	5.00	4.87	4.70	4.45	4.31
天津	5.52	4.80	4.63	4.35	3.94	3.76
河北	61.16	54.80	53.55	51.31	47.82	46.40
山西	51.60	45.26	43.99	42.36	39.94	38.68
辽宁	67.84	62.62	61.19	58.86	55.22	53.66
吉林	72.85	64.93	63.37	60.67	56.42	54.66
黑龙江	167.39	146.14	141.83	135.83	126.9	122.54
上海	2.74	2.42	2.35	2.28	2.17	2.10
江苏	34.36	30.08	30.38	29.10	26.86	27.88
浙江	37.30	34.60	34.10	32.93	31.00	30.44
安徽	38.08	32.03	30.95	28.99	26.00	24.88
福建	28.88	25.35	24.63	23.53	21.88	21.12
江西	33.53	28.19	27.07	25.55	23.33	22.22
山东	79.22	70.19	68.86	65.63	60.38	58.97
河南	53.63	47.23	45.9	43.92	40.93	39.57
湖北	39.26	33.44	32.18	30.48	27.96	26.69
湖南	44.54	39.62	39.12	37.54	35.01	34.66
广东	92.26	86.38	84.48	82.09	78.59	76.66
广西	92.37	83.78	81.61	78.82	74.74	72.49
海南	25.08	22.82	22.26	21.63	20.76	20.24
四川	115.85	98.42	94.87	90.14	83.40	79.97
重庆	14.77	12.25	11.70	11.02	9.99	9.48
陕西	46.96	39.52	38.14	35.99	32.79	31.39
合计	1210.70	1069.9	1042.00	997.72	930.48	902.77

质量.

4.1 中国大陆各重现期日均 A 值分布形势及其应用分析

由于日均 A 值的随机分布一般是正偏态的(徐大海等, 2016), 在重现期变长时, 大陆大部分地区 A 值下降较快, 但在两广南部沿海地区下降较慢, 这是因为该地的大气环境容量的不少份额是由干湿沉积形成的, 其 A 值分布曲线的左侧斜率比北方平缓, 在这些地区同一小概率长重现期的 A 值要大于北方. 例如: 图4c中, 30天重现期的 A 值在北京是在0.5~1, 而两广南部地区在4~5, 比北京大了4倍以上, 即其大气环境容量比北京地区大4倍或以上.

就全国平均而言, 7天重现期的 A 值为气候平均值

的0.36倍, 10、20、30、100天重现期的 A 值则分别为气候平均值的0.26、0.15、0.13、0.05倍, 此结论从下面的表4也能反映出来. 从图4b~d上还可可见, 20日以上重现期的 A 值在全国范围内, 大多在1.5以下, 此时的边界层高度多数在200m上下或更低. 因此由小概率的 A 值确定的大气环境容量应该是用于管控低矮源. 当小概率低 A 值出现时, 大气环境容量一般是由稳定边界层厚度决定的, 因此只有边界层内的低矮源强度决定着空气质量. 而对高架源而言, 排放的烟流体的主要部分在稳定边界层上空, 即所谓残余层(Stull, 1988)内, 对稳定层顶以下的空气质量影响甚微. 事实上, 在国标GB/T3840-91中, 低架源允许排放量占排放总量的比例为0.15~0.25的规定就与上述重现期日均 A 值与全年总平均的比值大体一致.

图3 不同重现期下的年平均清除率

(a) 气候平均; (b) 五年重现期; (c) 十年重现期; (d) 三十年重现期. 单位: $(\text{t km}^{-2} \text{a}^{-1})$

图4 不同重现期下的日均A值分布

(a) 十日重现期; (b) 二十日重现期; (c) 三十日重现期; (d) 百日重现期

表 4 中国大陆地区环境大气污染物的不同重现期(日)的年化参照清除率^{a)}

重现期(day)	7	10	20	30	100
北京	1.03	0.74	0.41	0.35	0.10
天津	1.54	1.13	0.60	0.45	0.11
河北	12.54	9.22	5.28	4.63	1.42
山西	9.80	7.07	3.90	3.39	0.93
内蒙	131.37	95.72	50.58	35.81	9.50
辽宁	21.06	15.88	8.96	6.89	2.19
吉林	17.15	12.27	6.37	4.32	1.21
黑龙江	37.26	26.55	13.79	13.23	2.66
上海	0.81	0.66	0.46	0.41	0.20
江苏	8.51	6.56	4.12	3.60	1.39
浙江	11.56	9.05	5.50	4.44	1.45
安徽	8.02	5.91	3.38	2.86	0.94
福建	6.36	4.86	3.01	2.67	0.99
江西	5.60	4.12	2.44	1.98	0.77
山东	22.73	17.65	10.89	9.94	3.23
河南	10.92	7.92	4.38	3.83	1.06
湖北	6.86	5.08	3.05	2.49	1.00
湖南	7.50	5.46	3.14	2.57	0.89
广东	34.44	31.47	27.71	25.68	22.38
广西	29.33	26.25	22.54	20.89	17.91
海南	9.47	8.53	7.26	6.71	5.41
四川	20.98	15.36	8.67	6.25	2.19
重庆	1.97	1.39	0.77	0.61	0.19
贵州	10.83	7.87	4.39	3.34	1.07
云南	38.87	31.46	22.70	20.62	13.5
西藏	109.45	72.70	30.80	30.06	3.66
陕西	8.01	5.60	2.92	2.52	0.64
甘肃	27.01	19.25	10.35	9.07	2.26
青海	70.63	50.75	26.65	20.35	5.53
宁夏	3.73	2.59	1.33	1.15	0.26
新疆	85.16	57.77	28.68	23.25	5.94
合计	770.50	566.84	325.03	274.36	110.98
与总清除量之比	0.36	0.26	0.15	0.126	0.05

a) 年化清除率为日清除率 $\times 365$, 10^4 t a^{-1} ; “总清除量”见表1气候平均合计栏

由于小概率的低日均 A 值出现在小风或静风条件下, 跨区域的相互流动对稳定边界层内的影响不大, 其时计算较孤立的的城市或地区的清除率, 可直接使用式(7), 而不必考虑大尺度跨区域的影响, 同时用重现期日均清除率核算目标污染物的相应大气环境容量时,

应用目标污染物的日均浓度标准值.

4.2 中国大陆地区不同重现期日均清除率的估算

按式(7)和使用Pearson III型概率曲线计算的各城市不同重现期的日均 A 值以及各自所占的省内均分面

积,给出了各省市自治区的对应清除率,参照浓度 C_r ,仍然取 $100\mu\text{g m}^{-3}$,其结果见表4.

表4中的各地的不同重现期(日)的年化清除率取决于当地的 A 值分布和行政面积.如按表1或3的数据求得的大气环境容量限制各地总排放量,用表4相应数据限制各地区低架源排放量,在理论上可按一定出现几率控制大气质量的变化.例如,按重现期为7日的年化清除率,安排低架源排放,大体可达到一年有313天的达标天气,而使用100日的年化清除率可达到361天达标天气.仅用表1或3的数据控制总排放,而不按表4管理低架源排放,理论上只可改善夏、春季和全年平均的空气质量,而不会有效地改善污染高发季的空气质量.

4.3 中国大陆不同重现期日平均清除率密度的分析

清除率密度式(8)就是面源源强(汇)的定义.如果将全国低架源用一个面源来替代,那么不同重现期(日)的清除率密度见表5.然而将整个大陆作为一个面源来讨论,在这里是不恰当的.事实上只有将人口集中的城市建成区或城市群建成区看成是(低架)面源才是合理的.为此,以下将讨论不同重现期的日均清除率对城市建成区面积大小和面积变更时的一些制约关系.

为了计算城市的清除率密度,需要一个城市建成区面积的参照值.为此,用《中国城市统计年鉴2014》(2014)提供的城市面积分析了城市面积频率谱(图5),看到该谱有两个峰值分别在20和300 km^2 的区域,其间100 km^2 为两峰值间的一个整数.如果取100 km^2 作为参照面积 S_r 计算出的清除率密度限值,对绝大多数的中、小城市而言是可保证空气质量达标的,而大型城市或城市群可按公式(10)使用具体面积计算清除率.图6就是以 $S_r=100\text{km}^2$ 为城市建成区面积计算的各地不同重现期的清除率密度.根据清除率密度的定义式(8),在 A 值和浓度不变的条件下,当建成区面积为 S 时,该建成区的清除率密度 Q_{ds} 可直接用图6a~d上的数据 Q_d 按

下式换算:

$$Q_{ds} = Q_d \times \sqrt{S_r/S}. \quad (10)$$

如果城市面积在100 km^2 左右,城内低矮源排放率密度不大于10天重现期(图6a)中所对应的污染物的清除率密度,就可以预计一年内最多有37天不能达标,而不大于100天重现期(图6d)所对应的参照值,则可预计一年内至多有3~4天不能达标.如果城市建成区面积远离100 km^2 ,如以北京建成区面积 $S=1300\text{km}^2$ 为例,计算 $\text{PM}_{2.5}$ 在30天重现期的清除率密度. $\text{PM}_{2.5}$ 的日均浓度二级标准限值为 $C_s=75\mu\text{g m}^{-3}$.从图6c可见北京参照清除率密度在5~10(kg h^{-1}) km^{-2} ,可取平均值,即 $Q_d=7.5(\text{kg h}^{-1}) \text{km}^{-2}$.按式(10)得到 $\text{PM}_{2.5}$ 的清除率密度为:

$$\begin{aligned} Q_{d\text{pm}2.5} &= Q_d \times \sqrt{S_r/S} \times (C_s/C_r) \\ &= 7.5 \times \sqrt{100/1300} \times \frac{75}{100} \\ &= 1.56\text{kg h}^{-1} \text{km}^{-2}. \end{aligned}$$

计算也表明,北京建成区面积如从100 km^2 增加到1300 km^2 ,其清除率密度也就降为原来的27.7%,下降了2/3以上.该算例也说明:在建成区扩大后,如要保持空气质量不恶化,必须注意按式(10)的比例减低面源排放率密度,例如减低车辆密度、人口密度等,以适应降低了的清除率密度.如果排放率密度不降低,上例中的城市30天一遇的空气质量浓度会大幅度上升到原来的1/0.277,约3.6倍.

5 人口密度与大气环境的关系

5.1 人口密度对大气环境的荷载分析

由图2a可以看到 A 值小的地方,都是人口较密集地区,人口密集后的经济效果常产生“集聚效应”,使得这些地区的人口更多,从而对环境大气产生更大的荷载力.为了显现出中国大陆地区人口对大气环境荷载的分布,定义了城市大气环境荷载指数.

表5 中国大陆地区重现期日平均清除率密度的均值

重现期(day)	7	10	20	30	100
全国清除率(10^4t a^{-1})	770.5	566.84	325.03	274.36	110.98
清除率密度($(\text{kg h}^{-1}) \text{km}^{-2}$)	0.091526	0.067334	0.03861	0.032591	0.013183

图5 城市建成区面积频率谱

首先设城市面源排放量与人口成正比: $q_i = \alpha_i \times P_i$, 其中 P_i 为 i 地区的人口数, α_i 为 i 地区人均排放系数. 根据式(7)表达的清除率的概念, 则平衡状态下一个城市的大气污染物浓度为 $C_i = q_i / (A_i \times \sqrt{S_i}) = \alpha_i \times P_i / (A_i \times \sqrt{S_i})$. 若以一个具有研究区域内所有城市的平均人口 $\bar{P}$ 、平均面积 $\bar{S}$ 、平均 A 值 $\bar{A}$ 和平均排放系数 $\bar{\alpha}$ 的理想城市作为参照. 那么, 研究区域内某个城市的浓度与参照城市的浓度比, 即定义为城市大气环境荷载指数(以下简称“大气荷载指数”或“荷载指数”).

$$I_i = \frac{C_i}{\bar{C}} = \frac{P_i}{\bar{P}} \times \frac{\alpha_i}{\bar{\alpha}} \times \frac{\bar{A}}{A_i} \times \sqrt{\frac{\bar{S}}{S_i}}. \quad (11)$$

图7是按照2014中国城市统计年鉴的数据, 按气象站点所在城市行政区面积计算的人口密度, 人口密度全国平均值为每平方公里139人. 图8是在 α_i 为常数时计算的污染高发季荷载指数结果. 对比两图可见, 四川盆地尽管人口密度不是最大, 但是对大气环境产生的荷载指数值却是最大的, 因为这一带是大陆上最低 A 值区, 这些地区改善空气质量的难度较大, 要按式(11)根据当地的人口数和 A 值来相应降低 α_i 的值. 长江三角洲和广州地区的指数高值区确实是人口密度很大产生的, 因为按图2a, 这里的 $\bar{A} / A_i \leq 1$. 这些地区对空气质量的控制主要在于减低城市的低矮源排放率密度. 黄淮到华北平原地区的人口密度对大气的影晌强度不高于前二个区域, 如果出现高强度污染, 只能和该区域单位人口的排放率高于其他地区有关, 即 α_i 远大于 $\bar{\alpha}$. 事实上, 这些高指数区域都是污染事件易发区. 西部人口密集度不大, 大气荷载指数值大多在1以下, 只要控制人均排放量不要超出全国平均范围太多, 空气质量应该是易于改善的.

图6 不同重现期下的小时平均参照清除率密度

(a) 十天重现期; (b) 二十天重现期; (c) 三十天重现期; (d) 百天重现期. 单位: $(\text{kg h}^{-1}) \text{km}^{-2}$

图7 人口密度(ppl km⁻²)

图8 冬季城市大气环境荷载指数图

5.2 城市居住区人口的集中程度对环境大气质量的作用

在目前的人口分布下假设浓度已经达到参考值 $100\mu\text{g m}^{-3}$, 即荷载指数为1后, 在确保各地市镇总人口不变, 单位人口的排放率不变的情形下, 若想将300万以上人口城市的人口密度集中为每平方公里5000人, 那么按式(11)可求得这些城市大气环境荷载指数(图9a), 又如将人口密度增加到每平方公里10000人(吴文恒等, 2006; 董晓峰和魏彦强, 2009), 那么荷载指数的变化为图9b. 图9c和d表示凡百万人口以上的城市人口密度增至每平方公里5000~10000人时污染高发季的情景. 从这图9可见, 在原来人口密集的地方, 荷载指数值变化不很大, 而在一些原来荷载较轻的西部地区 and 云贵高原、广西湖南等交界处出现了一片比参照浓度大数倍以上的新生高浓度区. 因此在城市或城市群集中人口前还必须考虑是否有有效降低低矮源排放率的可行性措施, 使得集中前后荷载指数的比值

不大于1.

考虑单个城市在 A 值的不同重现期, 其人口、面积发生变化的荷载指数时, 从式(11)有

$$\frac{I_2}{I_1} = \frac{C_2}{C_1} = \frac{P_2}{P_1} \times \frac{\alpha_2}{\alpha_1} \times \frac{A_1}{A_2} \times \sqrt{\frac{S_1}{S_2}}, \quad (12)$$

式中, 下标1表示变更前的量, 下标2表示变更后的量.

若保持研究区域集中人口前后的荷载指数、 A 值和人口总数不变, 从式(12)则有

$$\alpha_2 = \alpha_1 \times \sqrt{S_2/S_1}, \quad (13)$$

即单位人口的排放率应该按 $\sqrt{S_2/S_1}$ 的比例减小, 其中 S_1 是集中前的人口居住区面积, S_2 是人口集中后的居住区面积.

如果想知道城市单位人口排放率 α 的变化指数 I_e , 从式(12)可得

$$I_e = \frac{\alpha_2}{\alpha_1} = \frac{P_1}{P_2} \times \frac{C_2}{C_1} \times \frac{A_2}{A_1} \times \sqrt{\frac{S_2}{S_1}}. \quad (14)$$

在城市人口、面积不变的情况下

$$I_e = \frac{C_2}{C_1} \times \frac{A_2}{A_1}, \quad (15)$$

式(15)中浓度和 A 值的取值平均时段应该相同, 这样该指数可用于判断某时段城市浓度的变化, 是由排放率还是气象原因产生的. $I_e = 1$: 浓度的变化基本上是由于空气自净率的变化导致, 排放率没变化; $I_e < 1$: 排放率下降; $I_e > 1$: 排放率增加.

6 讨论和结论

在污染物参照浓度为 $100\mu\text{g m}^{-3}$ 的条件下, 中国大陆范围内气候条件决定的大气自清除能力在 $2169.32 \times 10^4 \text{ t a}^{-1}$ 左右, 5~100年重现期的清除率在 $1913 \times 10^4 \sim 1615 \times 10^4 \text{ t a}^{-1}$ 左右. 全国大陆地区稳定边界层内一年内的10、20、30、100日重现期的参照清除率分别为总参照清除率的26%、15%、12.6%、5%, 其折算的目标污染物大气环境容量可作为低矮面源排放的控制范围.

在城市建设中, 城市的最短边顺沿着盛行风方向能有效地利用大气的自净能力. 建成区扩大, 清除率密度会降低, 如果将城市建成区面积从 S_1 扩大到 S_2 , 而

图9 不同情景下人口密度变化下的荷载指数

(a) 300万以上人口地区增为5000ppl km⁻²; (b) 300万以上人口地区增为10000ppl km⁻²; (c) 100万以上人口地区增为5000ppl km⁻²; (d) 100万以上人口地区增为10000ppl km⁻²

又要保持空气质量不变, 那么必须将低矮面的排放率密度按 $\sqrt{S_1/S_2}$ 缩小。

在城市化过程中, 增加人口密度就会增加排放率密度。如果既要增加人口密度, 又要保持空气质量, 必须按变化前后的人口和居住区面积计算大气荷载指数, 使荷载指数不大于原来值。例如, 规划居住人口不变, 居住面积从 S_1 缩小到 S_2 , 单位人口的排放率应该按 $\sqrt{S_2/S_1}$ 缩小。

从监测浓度来分析城市的大气污染物排放率的变化时, 应考虑气象因素的变化, 此时可参考使用式(15)定义的指数。

此外, 本文引用的各种参数如边界层顶高、清洗比、干沉积速率等, 其中以边界层顶高最为敏感, 依据不断深入的野外观测和实验研究尚有很大的更新、改进空间。如果对不同污染物根据其浓度监测的各地统计数据对比验证、改进各自的干湿沉降的参数化系数后, 本论文的结果的不确定性会有进一步的下降, 同时也会进一步符合当地的实际情况。

如果要得到更完善的包括大气化学过程的环境

大气清除率的评估, 可以用本方法计算得到的前体物分布作为初估源、汇场, 再作多源化学过程模拟, 使用规划计算中的最小增、减量制约, 并以二次污染物的浓度标准为限制条件来进行研究。这种研究方法或可求得二次污染前体物的实际容量。

参考文献

- 安兴琴, 陈玉春, 吕世华. 2004. 兰州市冬季SO₂大气环境容量研究. 高原气象, 23: 110-115
- 董晓峰, 魏彦强. 2009. 中国中西部河谷型城市人口容量研究——以典型河谷型城市兰州为例. 干旱区资源与环境, 23: 1-7
- 国家环境保护局. 1991. 城市大气污染总量控制方法手册. 北京: 中国环境科学出版社. 157
- 国家环境保护局科技标准司标准处. 1991. 制定地方大气污染排放标准的技术方法(GB/T3840-91). 北京: 中国标准出版社
- 国家环境保护局开发监督司. 1993. 环境影响环境影响评价技术导则 大气环境(HJ/T 2.2-93). 北京: 中国标准出版社
- 国家统计局城市社会经济调查司. 2014. 中国城市统计年鉴2014. 北京: 中国统计出版社
- 李莉, 程水源, 陈东升, 郝艷波, 付红玲. 2010. 基于CMAQ的大气环

- 境容量计算方法及控制策略. 环境科学与技术, 33: 162–166
- 李宗恺, 潘云仙, 孙润桥. 1985. 空气污染气象学及应用. 北京: 气象出版社. 377–378
- 肖杨, 毛显强, 马根慧, 李卓. 2008. 基于ADMS和线性规划的区域大气环境容量测算. 环境科学研究, 21: 13–16
- 钱跃东, 王勤耕. 2011. 针对大尺度区域的大气环境容量综合估算方法. 中国环境科学, 31: 504–509
- 孙维, 陈飞, 王晖, 程小泉, 许农. 2015. CALPUFF模型在合肥地区SO₂大气环境容量测算中的应用. 南京信息工程大学学报(自然科学版), 7: 343–350
- 吴文恒, 牛叔文, 何效祖, 曾明明. 2006. 西部河谷型城市人口容量研究——以天水市为例. 经济地理, 26: 614–618
- 徐大海. 1987. 我国一些地区大气边界层高度诊断公式中参数的统计结果. 北京气象学院学术论文集1987. 北京: 气象出版社
- 徐大海, 王郁. 2013. 确定大气环境承载力的烟云足迹法. 环境科学学报, 33: 1734–1740
- 徐大海, 王郁, 朱蓉. 2016. 大气环境容量系数A值频率曲线拟合及其应用. 中国环境科学, 36: 2913–2922
- 徐大海, 朱蓉, 潘在桃. 1990. 城市扩散模式和二氧化硫排放总量控制方法的研究. 中国环境科学, 10: 309–313
- 徐大海, 朱蓉. 1989. 我国大陆通风量和雨洗能力分布的研究. 中国环境科学, 9: 367–374
- 薛文博, 付飞, 王金南, 贺克斌, 雷宇, 杨金田, 王书肖, 韩宝平. 2014. 基于全国城市PM_{2.5}达标约束的大气环境容量模拟. 中国环境科学, 34: 2490–2496
- 徐鹤, 丁洁, 冯晓飞. 2010. 基于ADMS-Urban的城市区域大气环境容量测算与规划. 南开大学学报(自然科学版), 43: 67–72
- Chamberlain A C. 1953. Aspects of the Travel and Deposition of Aerosol Clouds and Vapours. AERE HP/R1261. HMSO, London
- Stull R B. 1988. An Introduction to Boundary Layer Meteorology. Netherlands: Kluwer Academic Publishers. 2
- Zilitinkevich S S. 1972. On the determination of the height of the Ekman boundary layer. Bound-Layer Meteorol, 3: 141–145

(责任编辑: 王体健)