

绵阳市大气污染物浓度变化特征及相关性分析

杜娟¹, 宋鹏程², 龙平², 黄强², 乔君喜²

1. 西南科技大学城市学院, 绵阳 621010

2. 绵阳市环境监测中心站, 绵阳 621010

摘要: 随着我国工业化、城市化和机动化的高速发展, 大气环境质量越来越受民众关注, 我国已建成国控—省控—市控—县控四级环境空气自动监测网络, 监测项目包括 SO₂、NO₂、CO、O₃、PM_{2.5} 和 PM₁₀。基于 2018 年绵阳市环境空气监测数据、颗粒物化学组分及气象资料分析上述 6 个监测项目年均、季度、月均、日均及每日最大小时浓度变化特征, 并进一步探讨污染物浓度与气象条件的相关性, 结合颗粒物化学组分对产生原因进行剖析。结果表明: 绵阳市冬季环境空气质量较差, 夏季相对较好。Pearson 相关性分析表明: SO₂、NO₂、CO 和颗粒物 (PM_{2.5} 和 PM₁₀) 之间存在显著相关性, 冬季 PM_{2.5} 与 SO₂、NO₂ 的相关系数分别为 0.610 和 0.635, PM₁₀ 与 SO₂、NO₂ 的相关系数分别为 0.655 和 0.655, 颗粒物主要化学组分为硫酸盐、硝酸盐、铵盐和二次有机气溶胶, 颗粒物二次转化尤为明显, 冬季需重点管控颗粒物; 春季和夏季 O₃ 与 PM_{2.5}、PM₁₀ 呈显著正相关, 需做好颗粒物和 O₃ 的协同管控。O₃ 每日最大小时浓度多集中在 13 : 00—18 : 00, 其他污染物每日最大小时浓度多集中于 08 : 00—12 : 00 和 20 : 00—24 : 00, 同时 NO₂ 在 20 : 00—24 : 00 出现每日最大小时浓度的频次占 67.1%, 控制机动车等污染源排放尤为重要。

关键词: 绵阳市; 环境空气质量; 气象条件; 相关性分析

Variation concentration characteristics and correlations of atmospheric contaminant in Mianyang

DU Juan¹, SONG Pengcheng², LONG Ping², HUANG Qiang², QIAO Junxi²

1. City College, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China

2. Mianyang Environmental Monitoring Central Station, Mianyang 621010, China

Abstract: Background, aim, and scope With the rapid development of industrialization, urbanization and motorization in our country, ambient air quality has attracted more and more attention for the public. China has established a four-level (national, provincial, municipal, and county level) automatic monitoring networks for ambient air. The primary monitoring items of this system are SO₂, NO₂, CO, O₃, PM_{2.5} and PM₁₀. Mianyang is located in the northwest of the Sichuan Basin, according to the ambient air quality standards (GB 3095—2012),

收稿日期: 2019-10-10; 录用日期: 2020-01-28; 网络出版: 2020-02-10

Received Date: 2019-10-10; Accepted Date: 2020-01-28; Online first: 2020-02-10

基金项目: 教育部产学研合作协同育人项目 (201801275004, 201901098058)

Foundation Item: University-Industry Collaborative Education Program of Ministry of Education of the People's Republic of China (201801275004, 201901098058)

通信作者: 宋鹏程, E-mail: andspc@qq.com

Corresponding Author: SONG Pengcheng, E-mail: andspc@qq.com

引用格式: 杜娟, 宋鹏程, 龙平, 等. 2021. 绵阳市大气污染物浓度变化特征及相关性分析 [J]. 地球环境学报, 12(2): 183–191, 201.

Citation: Du J, Song P C, Long P, et al. 2021. Variation concentration characteristics and correlations of atmospheric contaminant in Mianyang [J]. Journal of Earth Environment, 12(2): 183–191, 201.

the annual mean concentration of $PM_{2.5}$ exceeds the Grade II standard ($35 \mu g \cdot m^{-3}$). To fully understand ambient air quality of Mianyang City, more characteristics of air pollutants should be considered. **Materials and methods** Based on the ambient air monitoring data, chemical composition of particulate matter and meteorological data of Mianyang City in 2018, the variation characteristics of six parameters including annual average, quarterly average, monthly average, daily average and hourly maximum for daily value were investigated. Besides, the correlation between pollutant concentration and meteorological conditions was further discussed, and in combination with the chemical composition of particulate matter, the causes of air pollution were analyzed. **Results** The results showed that the SO_2 level in Mianyang City is relatively low. Compared with the autumn and summer, the level of particulate matter (PM) is on higher level in the spring and winter. Additionally, the level of O_3 is high in spring and summer, while in autumn and winter it appears low. **Discussion** After calculated the Pearson correlation coefficient, the correlation coefficients of $PM_{2.5}$ and SO_2 , NO_2 in winter are 0.610 and 0.635, respectively. The correlation coefficients of PM_{10} and SO_2 , NO_2 are 0.655 and 0.655, respectively. These data indicate that there is a significant correlation between SO_2 , NO_2 , CO and particulate matters ($PM_{2.5}$ and PM_{10}). Besides, the main chemical composition of particulate matter is sulfate, nitrate, ammonium salt and the secondary organic aerosol, indicating that it is necessary to focus on controlling the generation of particulate matter in winter. In spring and summer, there is a significant positive correlation between O_3 and $PM_{2.5}$ and PM_{10} , which indicates that PM and O_3 need to be controlled in coordination. Hourly maximum concentration in daily of O_3 is mostly concentrated at 13 : 00—18 : 00. However, other pollutants is mostly concentrated at 08 : 00—12 : 00 and 20 : 00—24 : 00. Besides, the frequency of NO_2 appearing between 20 : 00 and 24 : 00 is 67.1%. Therefore, it is especially important to control the emission of pollution sources such as motor vehicles in the later period. **Conclusions** Overall, air quality of Mianyang is good. However, the ambient air quality is poor in winter and relatively good in summer. **Recommendations and perspectives** This article mainly analyzes the ambient air quality of Mianyang City and the correlation between pollutants, and puts forward the corresponding solutions to reducing the air pollution, hoping to give public some enlightenment.

Key words: Mianyang City; ambient air quality; meteorological conditions; correlations analysis

随着我国工业化、城市化和机动化的高速发展, 大气污染事件在人口密集或经济发达地区频繁发生 (Ding et al, 2017), 大气环境质量越来越受民众关注, 为了更好地掌握环境空气质量现状, 国家已建成国控—省控—市控—县控四级环境空气质量自动监测网络, 监测项目包括 SO_2 、 NO_2 、CO、 O_3 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} , 对环境空气进行实时监测。部分地区 (市、州) 为了精细化管控也建成大气网格化微型空气站、气溶胶激光雷达站和大气颗粒物组分超级站等。

目前, 对大气环境的研究主要集中于环境质量特征分析、气象条件与大气污染物之间相互关系 (Wang et al, 2014; Chen et al, 2017)、极端天气或重污染过程污染物时空演变、颗粒物化学组成及污染源解析、模型模拟计算及预报等方面 (He et al, 2001; Cao et al, 2012; Zhang et al, 2015; Xie et al, 2019)。受污染源排放影响, 大气污染物间存在显著相关性 (Wang et al, 2014; Xie

et al, 2015), 例如: 郑州市大气污染物 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 与 CO、 NO_2 、 SO_2 均为显著正相关 (郭蒙蒙等, 2019)。另外, 大气污染物浓度也受气象条件影响, 例如: 京津冀及周边地区“2+26”城市气象条件对 $PM_{2.5}$ 年均浓度的贡献为 10% (国家大气污染防治攻关联合中心, 2019-03-21); 乌鲁木齐市 $PM_{2.5}$ 浓度与气压、相对湿度呈显著正相关, 与降水量、风速、气温和水汽压呈显著负相关 (盛永财等, 2018); 绵阳市 $PM_{2.5}$ 污染多发生在槽前型或高压控制型天气, 地面主导风向为东南或东北风, O_3 污染大部分发生在经向型天气类型中, 地面主导风向为东南风或西南风 (陈梁勋等, 2019)。环境空气质量变化受气象条件影响, 但污染源排放是其主要影响因素, 陈梁勋等 (2019) 仅从气象方面对绵阳市 $PM_{2.5}$ 污染情况进行了分析, 目前关于绵阳市大气污染物间相关性的研究还未见报道。

绵阳市位于四川盆地西北部, 是四川省第二

大城市,2018年主城区建成面积158.6 km²,常住人口140.2万人。绵阳市属于四川盆地亚热带湿润季风气候,夏半年受偏南气流控制,气候炎热、多雨、潮湿,冬半年受偏北气流控制、少雨,全年风速小、相对湿度高、季节性逆温现象明显,污染物易累积。本文基于绵阳市2018年大气污染物监测数据、气象数据及颗粒物组分数据,分析各大气污染物质量浓度变化特征(年均、季度、月均、日均和每日最大小时浓度),同时探讨大气污染物间及与气象条件之间的相关性、不同季节大气污染物间相关性,结合相关性分析及颗粒物化学组成特征,为后期污染物精准治污提供参考依据。

1 数据来源及分析

1.1 数据来源

绵阳市2018年监测数据来源于中国环境监测总站空气质量发布实时数据,其中气态污染物为参比状态(大气温度为298.15 K,大气压力为101.325 kPa)浓度,颗粒物为监测时大气温度和压力下的浓度,气象资料来自于国家自动监测站气象五参数地面观测数据。

1.2 数据统计分析

数据统计和分析采用SPSS Statistics 20.0软件,各参数之间进行Pearson积矩相关性分析,公式为:

$$r_{xy} = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}} \quad (1)$$

式中: $\bar{x}$ 、 $\bar{y}$ 分别表示 x 、 y 的均值; x_i 、 y_i 分别表示 x 、 y 的第 i 个观测值。

相关系数界定参考Xie et al (2015),其中0.500—1.000为高度正相关,0.300—0.499为中度正相关,0.000—0.299为低度正相关;−0.299—0.000为低度负相关,−0.300—−0.499为中度负相关,−0.500—−1.000为高度负相关。

1.3 CMB模型

CMB受体模型基本原理是在源和环境之间建立质量平衡关系,利用有效方差加权最小二乘法求解颗粒物来源,它表示受体颗粒物中某种化学组分的浓度等于所有污染源中该化学组分的质量分数和该污染源对受体的贡献浓度值的乘积的线性和(王彤等,2019),其数学表达式为:

$$C_i = \sum_{j=1}^J F_{ij} \cdot S_j \quad (2)$$

式中: C_i 是受体大气颗粒物中化学组分 i 的浓度测量值($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$); F_{ij} 是第 j 类源的颗粒物中化学组分 i 的含量测量值($\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$); S_j 是第 j 类源贡献的浓度计算值($\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$); J 是源类的数目($j=1, 2, \dots, J$); I 是化学组分的数目($i=1, 2, \dots, I$)。

2 结果与讨论

2.1 大气污染物质量浓度变化特征

2.1.1 年均质量浓度

2018年绵阳市SO₂、NO₂和PM₁₀的年均浓度分别为5.9 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、28.8 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和64.1 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,均低于环境空气质量标准(GB 3095—2012)二级浓度限值(分别为60 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、40 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和70 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)。CO 24 h平均第95百分位数和O₃日最大8 h滑动平均值的第90百分位数分别为1.0 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和139 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,低于环境空气质量标准(GB 3095—2012)二级浓度限值(分别为4 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和160 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)。PM_{2.5}年均浓度为40.2 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,超过环境空气质量标准(GB 3095—2012)二级浓度限值(35 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$),也高于2018年全国338个城市PM_{2.5}浓度均值(39 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)和四川省21市(州)PM_{2.5}浓度均值(38.6 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)。

2.1.2 季度质量浓度变化特征

绵阳市大气污染物浓度具有显著的季节性差异(图1),CO季度浓度表现为冬季>秋季>春季>夏季。PM_{2.5}、PM₁₀、NO₂季度浓度变化均表现为冬季>春季>秋季>夏季,北京市2002—2012年PM₁₀和西安市2013—2014年PM_{2.5}、PM₁₀季度浓度也表现为相同的变化趋势(董娅玮等,2015;杨书申和邵龙义,2015)。冬季四川盆地气象扩散条件不利,大气污染物水平扩散和垂直对流较为困难,污染物易在地面累积,形成重污染,绵阳市冬季PM_{2.5}/PM₁₀占比介于0.37—0.87,其中PM_{2.5}/PM₁₀占比大于0.60的占87.5%,说明PM_{2.5}是大气颗粒物污染的主要贡献者。由于绵阳市采取“减排、压煤、治车、抑尘、控秸”五大污染控制工程,同时开展火电、水泥行业超低排放改造,淘汰10蒸吨(1蒸吨=700 kW·h^{−1})以下燃煤小锅炉,经过多年的污染防治SO₂日均浓度较低,季度浓度(5.4—6.2 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)差异较小,不同季节变化不明显。

O₃季度浓度变化表现为春季>夏季>秋季>

冬季,近地面 O_3 主要为二次转化生成,春季和夏季温度高、太阳辐射强,一方面,氮氧化物与挥发性有机物二次反应生成 O_3 (Lu et al, 2019),使得 O_3 浓度偏高,另一方面氮氧化物极易氧化成 HNO_3 ,高温使二次颗粒物硝酸盐也分解成气态 HNO_3 ,进行干沉降 (Shen et al, 2009),使得 NO_2 质量浓度偏低,同时夏季雨水较多,颗粒物也进行湿沉降,环境空气质量整体较好。

2.1.3 月均变化特征及气象条件影响

SO_2 、 NO_2 、颗粒物 ($PM_{2.5}$ 和 PM_{10}) 月均浓度变化趋势均表现为 1—5 月浓度逐渐降低,6—9 月处于相对低值,10—12 月污染物浓度又呈升高趋势 (图 2)。8 月份由于降雨量较小、相对温度较高,各污染物月均浓度出现一个小波峰。绵阳市 SO_2 和 CO 质量浓度较低, SO_2 月均浓度值介于 $4.9—6.6 \mu g \cdot m^{-3}$, CO 月均浓度值介于 $0.7—1.2 mg \cdot m^{-3}$,均表现为“W”型变化曲线。5—9 月 NO_2 质量浓度相对较低,主要受降雨沉降影响,同时随着温度的升高,太阳辐射增强,氮氧化物为前体物与挥发性有机物进行化学反应。 O_3 月浓度与温度变化趋势相似,表现为反“U”变化曲线,相对高浓度值集中在 4—8 月, O_3 为二次污染物,高温有助于 O_3 的生成,6 月和 7 月受降雨影响,相对湿度较高,云量相对较大,太阳辐射强度减弱,二次生成降低 (张宇静等, 2019),使得 4—5 月 O_3 质量浓度高于 6—7 月。 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 与大气压强变化趋势相似,在冬季和春季易出现无风、逆温、少雨等静稳型天气现象,同时相对湿度较高,颗粒物极易进行吸湿性增长和二次转化生成 (Shen et al, 2018)。

2.1.4 日均值和每日最大小时浓度变化特征

受污染物排放和气象参数共同作用的影响, SO_2 、 NO_2 、 CO 、颗粒物 ($PM_{2.5}$ 和 PM_{10}) 日均值变化趋势基本相似 (图 3),每日 07 : 00 随着上班早高峰和工业企业复工,污染物排放量增加,各污染物浓度均呈增长趋势,10 : 00 左右达到最大值,然后随着温度升高、相对湿度降低,大气压强减小,各污染物浓度开始下降,约 16 : 00 达到最小值,18 : 00 左右受下班晚高峰机动车和居民生活源排放,各污染物浓度又呈增长趋势,颗粒物在该阶段表现为持续性非线性增长。根据现有文献,北京市、柳州市的颗粒物日均浓度变化趋势与绵阳市相似,都表现为双峰型,在 10 : 00—12 : 00 和 22 : 00—24 : 00 出现峰值 (赵晨曦

等, 2014; 曾鹏等, 2020)。近地面 O_3 由前体物二次转化生成,与温度、光辐射强度关系密切,浓度变化表现为单峰型,在 16 : 00 左右达到最大值。

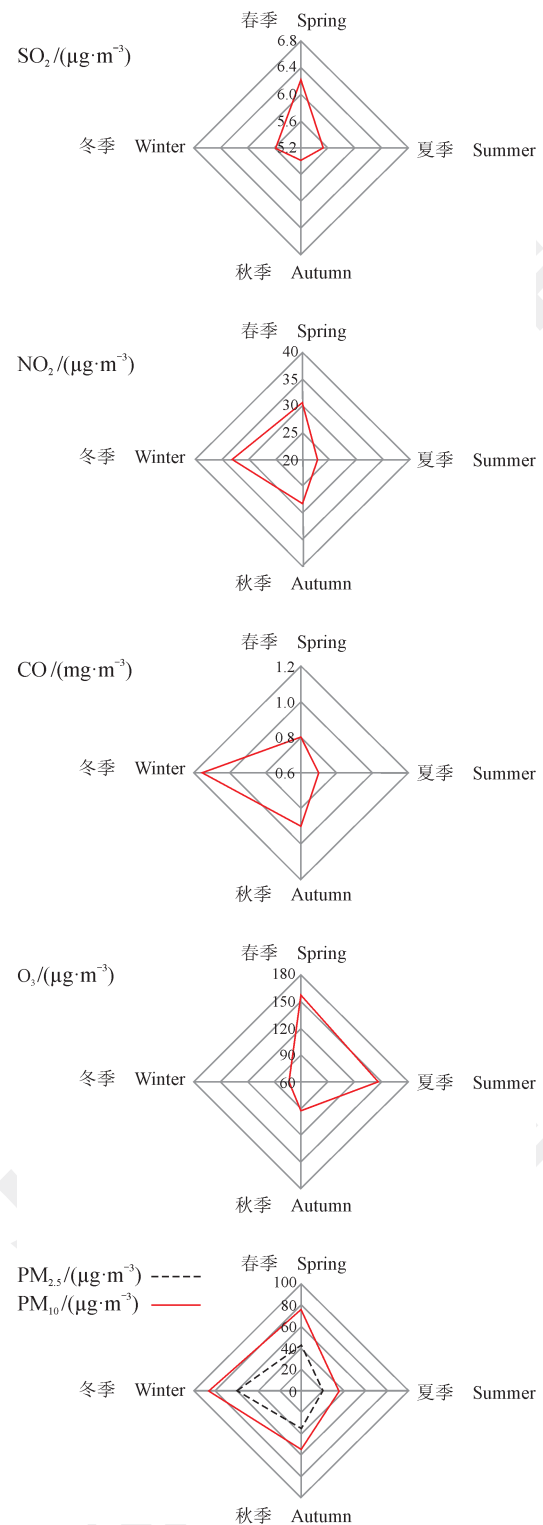
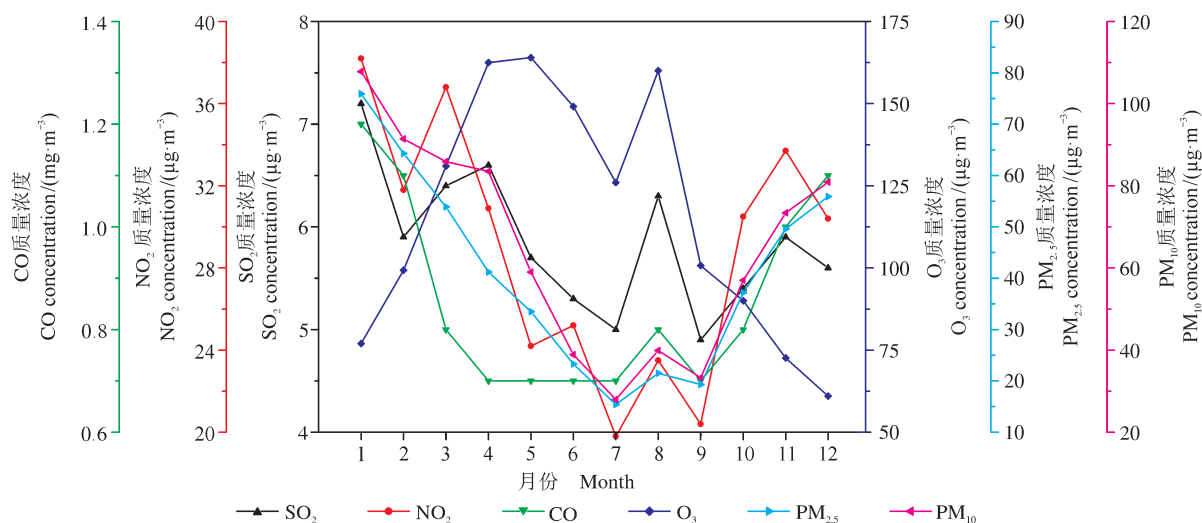


图 1 大气污染物 2018 年季度质量浓度变化图
Fig. 1 Quarterly variation of air pollutants concentrations in 2018

a 污染物月均浓度变化

Monthly variation of pollutants concentrations



b 气象参数月均变化

Monthly variation of meteorological factors

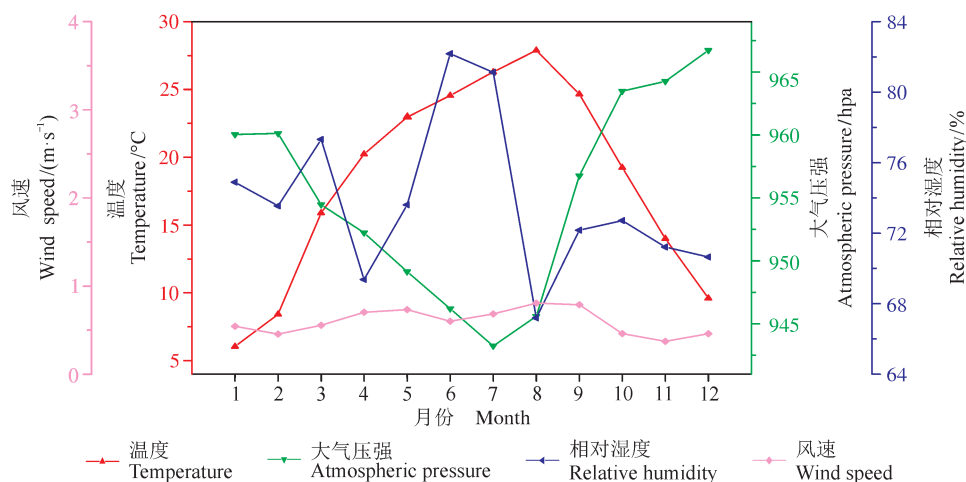


图2 大气污染物2018年月均浓度与气象参数变化图

Fig. 2 Monthly variation of air pollutants concentrations and meteorological factors in 2018

基于上述6个参数日均值变化特征,取每日最大小时浓度值,并对其在不同时间出现频次进行统计(图4),SO₂、NO₂和CO每日最大小时浓度出现频次表现为“双波峰”,频次多集中在08:00—12:00和20:00—24:00,出现频次最高的是24:00。颗粒物(PM_{2.5}和PM₁₀)每日最大小时浓度出现频次表现为“三波峰”,频次多集中在01:00—04:00、08:00—12:00和20:00—24:00,出现频次最高的是23:00。O₃每日最大小时浓度出现频次多集中在13:00—18:00,表现为“单波峰”,频次最高的是16:00。随着08:00—12:00污

染物排放浓度的增加,SO₂、NO₂和CO在近地面开始累积,极易出现小时浓度最大值,同时光照使得颗粒物成核和冷凝蒸发作用加强(Vehkamäki et al, 2004),颗粒物也极易出现小时浓度最大值。下班晚高峰(18:00—20:00)后,NO_x和CO等排放量增加,在近地面开始累积,出现小时浓度最大值的频次增加,20:00—24:00 NO₂出现日最大小时浓度值的频次占67.12%。同时此过程中颗粒物二次转化作用加强(Xu et al, 2014),颗粒物每日小时浓度最大值出现频次也在增加。另外,秋冬季在01:00—04:00温度较低,相对湿度变化趋于稳定,颗粒物易出现吸

湿性增长和二次转化 (Berglen et al, 2004; 王占山等, 2016), 也易出现每日最大小时浓度值, 表现为另一个小波峰。

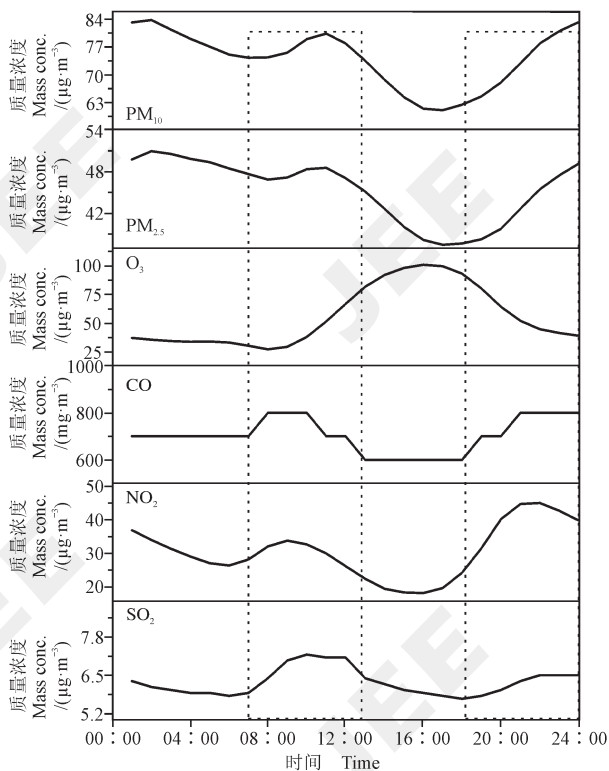


图 3 大气污染物 2018 年日均质量浓度变化图

Fig. 3 Daily variation of air pollutants concentration in 2018

对 2018 年 SO_2 、 NO_2 、 CO 、 O_3 和颗粒物 ($\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10}) 每日最大小时浓度进行 Pearson 相关性分析 (表 1), SO_2 、 NO_2 与 CO 每日最大小时浓度之间均呈显著相关, 且 CO 每日最大小时浓度与 NO_2 、 SO_2 每日最大小时浓度均为高度相关, 相关系数分别为 0.778 和 0.738, 说明 SO_2 、 NO_2 和 CO 三者变化规律和污染源相同, 显然火电厂、工业和交通运输源 (Wang et al, 2014) 对污染物浓度影响较大, 尤其是交通运输源。另外, SO_2 、 NO_2 和 CO 每日最大小时浓度与 PM_{10} 每日最大小时浓度均呈显著相关, 说明 PM_{10} 一次源排放较多, 贡献较大。每日 13:00—18:00 太阳辐射较强、温度更高, 二次转化生成更明显, O_3 每日最大小时浓度与其他污染物每日最大小时浓度均未通过显著性检验, 不具有相关性。

2.2 污染物间及与气象参数间的相关性

对 2018 年 6 个参数日均值进行相关性分析 (表 2), SO_2 与 NO_2 、 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 均为高度

正相关, 相关系数分别为 0.736、0.575 和 0.645。 NO_2 与 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 均为高度正相关, 相关系数分别为 0.782 和 0.810, 说明 SO_2 、 NO_2 与颗粒物污染源基本相同。 O_{3-8h} 与 NO_2 未通过显著性检验, O_{3-8h} 与 $\text{PM}_{2.5}$ 相关性低、与 PM_{10} 未通过显著性检验。其他学者也发现 O_3 与颗粒物相关性较差, 如: Xie et al (2015) 发现除海口市外, 其余 30 个城市的 O_3 与颗粒物均表现为弱相关或负相关。

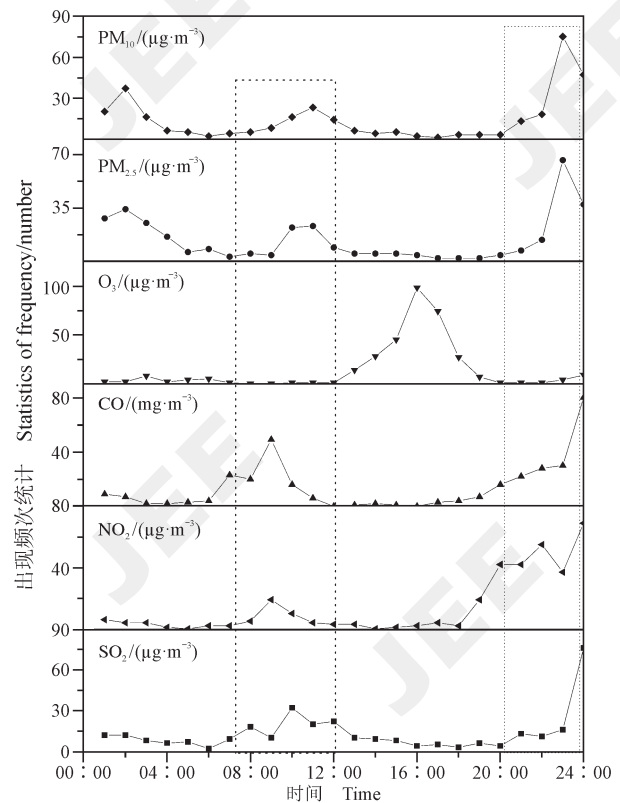


图 4 大气污染物 2018 年每日最大小时浓度出现频次统计图

Fig. 4 Statistics of hourly maximum concentrations in daily for atmospheric contaminants of 2018

表 1 大气污染物 2018 年每日最大小时浓度相关性分析
Tab. 1 Correlations between atmospheric contaminant of hourly maximum concentrations in daily of 2018

	$\text{SO}_{2-\max}$	$\text{NO}_{2-\max}$	$\text{CO}_{-\max}$	$\text{O}_{3-\max}$	$\text{PM}_{2.5-\max}$	$\text{PM}_{10-\max}$
$\text{SO}_{2-\max}$	1	0.550**	0.738**	-0.216	0.452*	0.531**
$\text{NO}_{2-\max}$		1	0.778**	-0.260	0.355	0.495*
$\text{CO}_{-\max}$			1	-0.294	0.361	0.497*
$\text{O}_{3-\max}$				1	-0.289	-0.282
$\text{PM}_{2.5-\max}$					1	0.957**
$\text{PM}_{10-\max}$						1

**：双侧在 0.01 水平显著相关，*：双侧在 0.05 水平显著相关。

**：correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed), *: correlation is significant at the 0.05 level (2-tailed).

大气污染浓度除受污染源排放影响外,气象条件也是主要影响因素之一(Jacob and Winner, 2009), O_{3-8h} 与温度呈显著正相关($r=0.566$), 与大气压强呈显著负相关($r=-0.560$), 温度升高, 大气压强降低有助于 O_3 的二次转化生成, 温度对其他污染物均表现为显著负相关。绵阳市 SO_2 年均浓度($5.9 \mu g \cdot m^{-3}$)较低, 日均浓度变化不明显, 与大气压强并未协同表现出强关联性和规律性, 因此, 相关性统计未通过显著性检验。郭蒙蒙等(2019)对郑州市的研究结果也较为相似, 根据2014—2017年数据, 郑州大气压强与 SO_2 表现为低相关或不相关(其中夏季表现为不相关)。风速与 NO_2 、 CO 和颗粒物均表现为显著负相关,

说明风有助于污染物的稀释、扩散。 O_{3-8h} 与风速表现为正相关, 在风的作用下能进行区域输送。由于绵阳市受四川盆地特殊气候和地形地貌的影响, 相对湿度较高, 除夏季相对湿度与颗粒物呈显著负相关外(表3)。春季、秋季和冬季相对湿度与 $PM_{2.5}$ 不相关, 全年与 $PM_{2.5}$ 不存在显著相关性, 与 PM_{10} 为弱负相关, 可能是夏季相对湿度过大, 空气中的水蒸气易凝结成核发生湿沉降, 有利于大气污染物的去除(郭蒙蒙等, 2019), 其余季节在高相对湿度的影响下颗粒物进行吸湿性增长和二次转化, 颗粒物会进行高效成核并持续快速增长, 使得粒径增大, 同时在外界作用下颗粒物进行沉降, 因而和 $PM_{2.5}$ 并未表现很强的规律性。

表2 大气污染物与气象参数日均值相关性分析
Tab. 2 Correlations between atmospheric contaminant and meteorological factors in daily

	SO_2	NO_2	CO	O_{3-8h}	$PM_{2.5}$	PM_{10}	T	RH	WS	P
SO_2	1	0.736**	0.481**	0.233**	0.575**	0.645**	-0.109*	-0.304**	-0.386**	0.082
NO_2		1	0.653**	0.014	0.782**	0.810**	-0.318**	-0.174**	-0.627**	0.293**
CO			1	-0.255**	0.770**	0.675**	-0.440**	0.166**	-0.589**	0.283**
O_{3-8h}				1	-0.151**	-0.021	0.566**	-0.353**	0.282**	-0.560**
$PM_{2.5}$					1	0.943**	-0.533**	-0.023	-0.504**	0.360**
PM_{10}						1	-0.459**	-0.174**	-0.451**	0.339**
T							1	-0.046	0.256**	-0.730**
RH								1	-0.055	-0.232**
WS									1	-0.270**
P										1

**：双侧在0.01水平显著相关，*：双侧在0.05水平显著相关。

**：correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed), *：correlation is significant at the 0.05 level (2-tailed).

选择温度(T)、大气压强(P)、风速(WS)对 $PM_{2.5}$ 进行相关性拟合, 多元线性回归曲线为: $[PM_{2.5}]=556.13-1.99T-0.47P-27.76WS$ ($R^2=0.41$); 选择温度(T)、大气压强(P)、相对湿度(RH)、风速(WS)对 PM_{10} 进行多元线性拟合, 回归曲线为: $[PM_{10}]=1323.65-2.89T-1.12P-1.26RH-38.89WS$ ($R^2=0.37$)。

2.3 污染物间的季度相关性分析

各污染物季节间相关性存在显著差异, 春季、冬季 SO_2 与 NO_2 、颗粒物($PM_{2.5}$ 和 PM_{10}) 浓度平均值仍为高度相关, 秋季、冬季 NO_2 与 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 也呈现为显著正相关(表3)。虽然 NO_2 与 O_{3-8h} 全年表现为不相关, 但春季、夏季二者呈显著正相关, 秋季为负相关, 冬季未通过显著性检验, Wang et al (2014) 也发现北方地区、东南地区和西部地区 NO_2 与 O_{3-8h} 在夏季均表现为正相关。绵阳市春季和夏季 O_{3-8h} 与 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 表现

为显著正相关, 张宇静等(2019)对徐州市的研究结果也较为相似(夏季风 O_3 与 $PM_{2.5}$ 表现为显著正相关, 相关系数为0.56), 显然春季和夏季太阳辐射强, 气温高, 大气氧化性较高, 在高浓度 O_3 作用下, 能促进二次颗粒物的生成, 使得颗粒物浓度升高(Ge et al, 2013), 今后春季、夏季 O_3 和颗粒物需要进行协同管控。根据 Pearson 相关性分析, 春季风速、温度, 夏季相对湿度、温度, 秋季温度、风速、大气压强和冬季风速对污染物浓度影响较大。

通过 CMB 模型对颗粒物进行来源解析, 2018 年绵阳市颗粒物主要来源为硫酸盐、硝酸盐、铵盐和二次有机气溶胶, 其次为燃煤源、机动车和扬尘源(一次源), 尤其是秋季和冬季硝酸盐、铵盐占比较高, 秋季和冬季二次硝酸盐对颗粒物的贡献分别为12%和21%。其中硫酸盐和硝酸盐主要来源于 SO_2 、 NO_2 等气态污染物通过均相

或非均相反应生成,而二次有机气溶胶主要由挥发性有机物经大气氧化气粒分配生成。另外,四季硫酸化速率($SOR=S_{SO_4^{2-}}/(S_{SO_4^{2-}}+S_{SO_2})$)均大于 0.1,且冬季最大,说明冬季 SO_2 对二次颗粒物贡

献较大(He et al, 2001),秋季和冬季硝酸盐化速率($NOR=S_{NO_3^-}/(S_{NO_3^-}+S_{NO_2})$)均大于 0.1,且冬季值更高,冬季氮氧化物更易反应生成二次硝酸盐。

表 3 大气污染物间季度相关性分析
Tab. 3 Correlations between atmospheric contaminant in quarterly

季节 Season	要素 Factor	SO ₂	NO ₂	CO	O _{3-8h}	PM _{2.5}	PM ₁₀	T	RH	WS	P
春季 Spring	SO ₂	1	0.766**	0.554**	0.535**	0.622**	0.643**	-0.313**	-0.342**	-0.477**	0.034
	NO ₂		1	0.783**	0.367**	0.757**	0.695**	-0.805**	-0.134	-0.579**	-0.011
	CO			1	0.209*	0.734**	0.517**	-0.687**	0.246*	-0.623**	-0.240*
	O _{3-8h}				1	0.312**	0.392**	-0.105**	-0.601**	-0.259**	-0.315**
	PM _{2.5}					1	0.879**	-0.562**	-0.089	-0.398**	-0.060
	PM ₁₀						1	-0.478**	-0.378**	-0.279**	0.087
夏季 Summer	SO ₂	1	0.533**	0.141	0.600**	0.482**	0.588**	0.503**	-0.712**	0.077	0.363**
	NO ₂		1	0.303**	0.492**	0.710**	0.731**	0.099	-0.444**	-0.100	0.427**
	CO			1	0.273**	0.519**	0.505**	0.262*	-0.138	-0.066	-0.139
	O _{3-8h}				1	0.651**	0.709**	0.485**	-0.760**	0.182	0.322**
	PM _{2.5}					1	0.976**	0.260*	-0.515**	0.054	0.357**
	PM ₁₀						1	0.370**	-0.632**	0.025	0.403**
秋季 Autumn	SO ₂	1	0.687**	0.566**	-0.186	0.599**	0.660**	-0.105	-0.181	-0.129	0.238*
	NO ₂		1	0.672**	-0.267*	0.813**	0.854**	-0.352**	-0.177	-0.526**	0.515**
	CO			1	-0.322**	0.783**	0.816**	-0.229**	-0.175	-0.490**	0.170
	O _{3-8h}				1	-0.294**	-0.228*	0.664**	-0.402**	0.355**	-0.397**
	PM _{2.5}					1	0.973**	-0.418**	0.132	-0.516**	0.432**
	PM ₁₀						1	-0.343**	0.013	-0.509**	0.429**
冬季 Winter	SO ₂	1	0.788**	0.621**	-0.058	0.610**	0.655**	0.080	0.020	-0.380**	0.119
	NO ₂		1	0.689**	-0.128	0.635**	0.655**	0.131	0.143	-0.551**	0.049
	CO			1	-0.295**	0.644**	0.582**	-0.237*	0.457**	-0.434**	0.185
	O _{3-8h}				1	-0.040	0.021	0.421**	-0.657**	0.309**	-0.246*
	PM _{2.5}					1	0.940**	0.242*	0.130	-0.384**	-0.193
	PM ₁₀						1	0.334**	-0.034	-0.312**	-0.204

**：双侧在 0.01 水平显著相关，*：双侧在 0.05 水平显著相关。

**：correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed), *：correlation is significant at the 0.05 level (2-tailed).

综合分析,绵阳市受四川盆地特殊地形和气候影响,冬季气温相对较低、无风或低风速(小于 $2\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$)、相对湿度较高(年平均为 74%)、辐射逆温现象明显,静稳天气下污染物在水平和垂直方向扩散弱,大气颗粒物的吸湿潮解和液态水的存在不仅能吸附气态污染物,而且会加速促进二氧化硫和氮氧化物二次转化生成硫酸盐和硝酸盐(Turšič et al, 2004; Zhang et al, 2015),使得冬季颗粒物中 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 和 OC 质量浓度偏高。因此,冬季是节能减排、减少颗粒物排放的关键时间。夏季气象条件相对较好,降雨量较多,污染物可通过干、湿沉降去除,但春季、夏季温度较高,太阳辐射强度高,也加快了光化学反应

速率,有利于近地面 O_3 的二次生成,使得 O_3 含量较高。

3 结论

(1) 绵阳市气态污染物(SO_2 、 NO_2 、CO 和 O_3)和 PM_{10} 均满足环境空气质量标准(GB 3095—2012)二级浓度限值, $PM_{2.5}$ 未满足二级浓度限值,后期冬季和春季需重点加强颗粒物管控,同时春季和夏季不能忽略 O_3 超标的风险。春季和夏季 O_3 与 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 呈显著正相关, O_3 和颗粒物需做好协同管控。

(2) 结合大气污染物间相关性分析及颗粒物化学组成,绵阳市 NO_2 与 CO、 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 呈

显著正相关, 相关系数分别为 0.653、0.782 和 0.810, 同时硝酸盐和铵盐是颗粒物主要化学组成, 后期要重点加强管控机动车等氮氧化物排放源。

(3) 对污染物浓度每日最大值出现频次及相关性分析发现, O_3 每日最大小时浓度多集中在 13:00—18:00, 其他污染物每日最大小时浓度多集中于 08:00—12:00 和 20:00—24:00, 同时 NO_2 在 20:00—24:00 出现每日小时浓度最大值的频次占比为 67.1%, 夜间为 NO_2 重点管控时段。

参考文献

- 陈梁勋, 杨军, 欧阳欣, 等. 2019. 绵阳市大气污染天气学分型及气象条件特征分析 [J]. *四川环境*, 38(4): 72–78. [Chen L X, Yang J, Ouyang X, et al. 2019. Classification of meteorological types of air pollution and analysis of meteorological conditions in Mianyang City [J]. *Sichuan Environment*, 38(4): 72–78.]
- 董娅玮, 杜新黎, 李扬扬, 等. 2015. 西安市区大气中 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 质量浓度污染特征 [J]. *中国环境监测*, 31(5): 45–49. [Dong Y W, Du X L, Li Y Y, et al. 2015. Pollution characteristics of mass concentration of $PM_{2.5}$ and PM_{10} in Xi'an City [J]. *Environmental Monitoring in China*, 31(5): 45–49.]
- 郭蒙蒙, 姜楠, 王申博, 等. 2019. 郑州市 2014—2017 年大气污染特征及气象条件影响分析 [J]. *环境科学*, 40(9): 3856–3867. [Guo M M, Jiang N, Wang S B, et al. 2019. Analysis of air pollution characteristics and meteorological conditions in Zhengzhou from 2014 to 2017 [J]. *Environmental Science*, 40(9): 3856–3867.]
- 国家大气污染防治攻关联合中心. 2019-03-21[2019-10-11]. 京津冀及周边地区大气重污染成因更清晰——蓝天保卫战, 精准施策加油干 [EB/OL]. https://www.sohu.com/a/302854284_100149447?sec=wd. [National Joint Research Center for Tackling Key Problems in Air Pollution Control. 2019-03-21[2019-10-11]. The causes of heavy air pollution in the Beijing-Tianjin-Hebei region and its surrounding areas are clearer [EB/OL]. https://www.sohu.com/a/302854284_100149447?sec=wd]
- 盛永财, 玉米提·哈力克, 阿不都拉·阿不力孜. 2018. 气象因素对乌鲁木齐市 $PM_{2.5}$ 浓度影响分析 [J]. *环境工程*, 36(11): 64–69. [Sheng Y C, Umut Halik, Abdulla Abliz. 2018. Influences of meteorological factors on $PM_{2.5}$ in Urumqi [J]. *Environmental Engineering*, 36(11): 64–69.]
- 王彤, 华阳, 许庆成, 等. 2019. 京津冀郊区站点秋冬季大气 $PM_{2.5}$ 来源解析 [J]. *环境科学*, 40(3): 1035–1042. [Wang T, Hua Y, Xu Q C, et al. 2019. Source apportionment of $PM_{2.5}$ in suburban area of Beijing-Tianjin-Hebei region in autumn and winter [J]. *Environmental Science*, 40(3): 1035–1042.]
- 王占山, 张大伟, 李云婷, 等. 2016. 北京市夏季不同 O_3 和 $PM_{2.5}$ 污染状况研究 [J]. *环境科学*, 37(3): 807–815. [Wang Z S, Zhang D W, Li Y T, et al. 2016. Different air pollution situations of O_3 and $PM_{2.5}$ during summer in Beijing [J]. *Environmental Science*, 37(3): 807–815.]
- 杨书申, 邵龙义. 2015. 2002—2012 年京津唐 PM_{10} 变化规律及差异 [J]. *中国环境监测*, 31(2): 39–43. [Yang S S, Shao L Y. 2015. Variability and divergence of PM_{10} in Beijing, Tianjin and Tangshan from 2002 to 2012 [J]. *Environmental Monitoring in China*, 31(2): 39–43.]
- 曾鹏, 辛存林, 于爽, 等. 2020. 典型西南工业城市柳州市核心区大气污染物时空分布与气象因素研究 [J]. *环境科学学报*, 40(1): 13–26. [Zeng P, Xin C L, Yu S, et al. 2020. Spatial and temporal distribution of atmospheric pollutants and meteorological factors in the core district of Liuzhou City, a typical industrial city in Southwest China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 40(1): 13–26.]
- 张宇静, 赵天良, 殷翀之, 等. 2019. 徐州市大气 $PM_{2.5}$ 与 O_3 作用关系的季节变化 [J]. *中国环境科学*, 39(6): 2267–2272. [Zhang Y J, Zhao T L, Yin C Z, et al. 2019. Seasonal variation of the relationship between surface $PM_{2.5}$ and O_3 concentrations in Xuzhou [J]. *China Environmental Science*, 39(6): 2267–2272.]
- 赵晨曦, 王云琦, 王玉杰, 等. 2014. 北京地区冬春 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 污染水平时空分布及其与气象条件的关系 [J]. *环境科学*, 35(2): 418–427. [Zhao C X, Wang Y Q, Wang Y J, et al. 2014. Temporal and spatial distribution of $PM_{2.5}$ and PM_{10} pollution status and the correlation of particulate matters and meteorological factors during winter and spring in Beijing [J]. *Environmental Science*, 35(2): 418–427.]
- Berglen, T F, Berntsen T K, Isaksen I S A, et al. 2004. A global model of the coupled sulfur/oxidant chemistry in the troposphere: the sulfur cycle [J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 109(D19): D19310. DOI: 10.1029/2003JD003948.

(下转 201 页)