DOI:10.13671/j.hjkxxb.2018.0219

李言顺,郑逸璇,刘梦瑶,等.2018.卫星遥感反演京津冀地区 2011—2017 年氮氧化物污染变化[J].环境科学学报,38(10):3797-3806 Li Y S, Zheng Y X, Liu M Y, *et al.* 2018.Satellite-based observations of changes in nitrogen oxides over the Beijing-Tianjin-Hebei region from 2011 to 2017 [J].Acta Scientiae Circumstantiae.38(10):3797-3806

卫星遥感反演京津冀地区 2011—2017 年氮氧化物污染变化

李言顺¹, 郑逸璇¹, 刘梦瑶², 郑博³, 王婷⁴, 同丹¹, 粟京平⁶, 王普才^{4,5}, 林金泰², 张强^{1,*}

1. 清华大学地球系统科学系,北京 100084

- 2. 北京大学物理学院大气与海洋科学系,北京 100871
- 3. 清华大学环境学院,北京 100084

4. 中国科学院大气物理研究所,北京 100029

- 5. 中国科学院大学,北京 100049
- 6. 北京市环境保护监测中心,北京 100048
- 收稿日期:2018-04-01 修回日期:2018-05-17 录用日期:2018-05-17

摘要:基于 POMINO AMFv6 反演构架和高分辨率 WRF-CMAQ 模拟资料重构 DOMINO v2 大气质量因子,开发了京津冀地区高精度 NO₂对流层 垂直柱浓度卫星数据,并结合反演模型分析了研究区域 2011—2017 年 NO₂柱浓度及重点城市 NO_x排放强度的时空演变.2011—2017 年间,京 津冀地区 NO₂柱浓度在北京-天津-唐山及石家庄-邢台-邯郸形成两个核心污染高值区,保定、廊坊、秦皇岛、沧州和衡水分布于东南部的污染背 景中,构成污染次高值区,而位于西北部的张家口和北部的承德相对较为清洁,仅在对应的市辖区出现局地污染峰值.京津冀地区柱浓度平均 水平在 2011—2017 年间下降了 27.2%.2011—2013 年间北京、天津、唐山和石家庄市的 NO_x平均排放强度分别为 108.3、139.5、241.4 和 178.6 mol·s⁻¹,而 2015—2017 年间下降至 98.0、108.2、197.6 和 85.8 mol·s⁻¹.基于卫星遥感手段的综合分析表明,2011—2017 年期间京津冀地区 NO_x 污染状况得到明显改善,但各个城市的改善程度存在差异,其中北京、唐山 NO₂柱浓度降幅明显低于污染核心高值区的其他城市,在下一阶段 制订治理方案时应重点考虑.

关键词:卫星遥感; 氮氧化物; 高精度反演; 排放强度; 时空变化

文章编号:0253-2468(2018)10-3797-10 中图分类号:X571 文献标识码:A

Satellite-based observations of changes in nitrogen oxides over the Beijing-Tianjin-Hebei region from 2011 to 2017

LI Yanshun¹, ZHENG Yixuan¹, LIU Mengyao², ZHENG Bo³, WANG Ting⁴, TONG Dan¹, SU Jingping⁶, WANG Pucai^{4,5}, LIN Jintai², ZHANG Qiang^{1,*}

1. Department of Earth System Science, Tsinghua University, Beijing 100084

- 2. Department of Atmospheric and Oceanic Sciences, School of Physics, Peking University, Beijing 100871
- 3. School of Environment, Tsinghua University, Beijing 100084
- 4. Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029
- 5. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049
- 6. Beijing Municipal Environmental Monitoring Center, Beijing 100048

Received 1 April 2018; received in revised form 17 May 2018; accepted 17 May 2018

Abstract: Nitrogen oxides play key roles in tropospheric chemistry and have adverse effects on human health. In this work, we develop an improved product of NO_2 tropospheric vertical column densities (TVCDs) over the Beijing-Tianjin-Hebei (BTH) region based on the operational OMI NO_2 product from KNMI. In the improved product, air mass factors for converting slant columns to vertical columns are calculated using simulated NO_2 profile,

基金项目:环保部公益性科研项目(No.201509004);国家自然科学基金项目(No.41571130032,91744310,41575034)

Supported by the Ministry of Environmental Protection Public Research Program (No.201509004) and the National Natural Science Foundation of China (No.41571130032,91744310,41575034)

作者简介: 李言顺(1993—),男,E-mail;li-ys15@mails.tsinghua.edu.cn;*责任作者,E-mail;qiangzhang@tsinghua.edu.cn

Biography: LI Yanshun(1993-), male, E-mail; li-ys15@ mails.tsinghua.edu.cn; * Corresponding author, E-mail; qiangzhang@ tsinghua.edu.cn

pressure, temperature and relative humidity at a horizon resolution of 4 km×4 km. The product is then used to reveal the spatiotemporal variation of NO₂ TVCDs over the BTH region, and is fitted with a parameterized two-dimensional gaussian function to assess NO_x emission changes over BTH region. Two hotspots of NO₂ pollutions are observed over two city clusters, Beijing-tianjin-tangshan and Shijiazhuang-xingtai-handan. Elevated NO₂ TVCDs are also observed over the Baoding, Langfang, Qinhuangdao, Cangzhou and Hengshui city. Averaged NO₂ TVCD over the BTH region decreased by 27.2% from 2011 to 2017. The fitted NO_x emission rates over the Beijing, Tianjin, Tangshan and Shijiazhuang city decreased from 108.3, 139.5, 241.4, 178.6 mol·s⁻¹ during 2011—2013, respectively, to 98.0, 108.2, 197.6, 85.8 mol·s⁻¹ during 2015—2017. Reduction rates of NO₂ TVCDs in Beijing and Tangshan city are lower than other cities during 2011—2017, indicating that stricter controls are required in the future. **Keywords**: satellite observation; nitrogen oxides; high-precision inversion; emission intensity; spatiotemporal variation

1 引言(Introduction)

氦氧化物 NO_x(NO_x = NO+NO₂)是对流层臭氧 和硝酸盐气溶胶的重要前体物(Seinfeld *et al.*, 2016),同时其具备显著的环境健康效应(Clark *et al.*, 2010).对流层 NO_x的主要排放源为化石燃料 燃烧、生物质燃烧和闪电过程.在快速的工业化和城 市化进程下,中国氦氧化物排放自 20 世纪 90 年代 以来增长迅猛,并在区域大气复合污染问题中扮演 重要角色.定量分析氦氧化物对流层污染负荷及排 放强度的时空演变是评估政策实施效果的前提与 基础.卫星遥感技术通过光谱反演获取对流层二氧 化氮(NO₂)的垂直柱浓度信息,且时空覆盖能力强, 能够辅助地面监测手段和自下而上排放清单评估 氦氧化物污染的时空演变(Martin, 2008; Streets *et al.*, 2013; Seltenrich *et al.*, 2014).

NO,卫星遥感探测起始于 20 世纪 90 年代中 期,欧洲航天局(ESA)和美国航天局(NASA)相继 发射全球臭氧探测仪 GOME (Burrows et al., 1999)、大气制图扫描成像吸收光谱仪 SCIAMACHY (Bovensmann et al., 1999)、臭氧探测仪 OMI(Levelt et al., 2006)、全球臭氧探测仪 2 号 GOME-2(Callies et al., 2000) 和对流层探测仪 TROPOMI (Veefkind et al., 2012).基于上述星载传感器,国内外学者已 广泛应用其 NO2对流层垂直柱浓度资料在中国地区 进行 NO_ 排放的反演估算和时空变化分析.由于对 流层 NO_x化学生命周期较短、受物理传输作用的影 响较小,相关研究(Richter et al., 2005; 张强等, 2012)显示,以 GOME 和 SCIAMACHY 观测到的 NO, 柱浓度间接表征地面排放强度,揭示了中国地区 NO_{*}排放在1996—2010年间的增长与扩张.此外,高 晋徽等(2015)基于 OMI 传感器、自下而上排放清单 和风场数据分析了中国地区 2005—2013 年间 NO, 柱浓度的长期变化及成因.针对典型人为源,Liu 等 (2017)基于 OMI 柱浓度数据和高斯拟合模型分析 了我国 48 个城市和 7 个燃煤电厂 2005—2013 年间

NO_x排放的时间变化.

上述研究加深了政策制定者对我国 NO 污染时 空演变的认识,但在分析时未将卫星资料的不确定 性考虑在内.卫星遥感反演对流层 NO,柱浓度的主 要不确定性来源是对流层大气质量因子(Air Mass Factor, AMF)的计算(Boersma et al., 2011; Lin et al., 2014; Lin et al., 2015; Lorente et al., 2017). 对流层 AMF 为 NO, 对流层斜柱浓度转换至垂直柱 浓度的比例因子,其计算依赖辐射传输模拟,NO,先 验廓线、地表反照率、气溶胶光学厚度、云高、云量、 温度、气压和相对湿度廓线等为影响计算精度的关 键辅助参数(Palmer et al., 2001).当前 NO₂对流层 柱浓度业务化产品存在 NO,先验廓线分辨率低,反 演过程中未考虑地表反射各向异性、气溶胶的影 响,以及云和 NO,反演的大气状态不一致等问题.针 对上述不足,北京大学基于 OMI 传感器开发了覆盖 中国地区的 POMINO 对流层 NO,垂直柱浓度产品, 其计算对流层 AMF 时,将 NO,先验廓线、温度、气 压、相对湿度等参数的空间分辨率提升至 25~50 km,同时对气溶胶光学效应和地表反射各向异性进 行了显式考虑(Lin et al., 2014; Lin et al., 2015).

京津冀地区是全国氮氧化物污染最严重的区域之一,在《国家环境保护"十二五"规划》(简称"十二五规划")和《大气污染防治行动计划》(简称"大气十条")中被列为重点防控对象.本研究基于 DOMINO v2(Boersma *et al.*, 2011)业务化产品中的 对流层斜柱浓度和 POMINO AMFv6 构架,使用高分 辨率 WRF-CMAQ 模拟资料重构对流层 AMF,开发 覆盖京津冀地区的高精度 NO₂对流层垂直柱浓度数 据,并结合反演模型分析了 2011—2017 年京津冀地 区 NO₂柱浓度和重点城市 NO_x排放强度的时空演 变,评估政策实施对 NO_x污染的控制效果.为方便表 述,上述高精度 NO₂对流层垂直柱浓度数据在下文 中简称为"BTH-OMI","BTH"代表北京-天津-河北, OMI 为柱浓度数据对应的星载传感器.

2 数据与方法(Data and methods)

2.1 BTH-OMI NO,对流层垂直柱浓度卫星反演

BTH-OMI产品是在 KNMI DOMINO v2 和北京 大学 POMINO产品的基础上开发的.DOMINO v2 是 基于 OMI 传感器(Levelt et al., 2006)的全球 NO₂对 流层垂直柱浓度业务化产品,其反演流程如下:① 差分吸收光谱法(Platt, 1994)拟合求解 NO₂斜总柱 浓度;②分离平流层斜柱浓度和对流层斜柱浓度; ③计算对流层 AMF,将对流层斜柱浓度转换为垂直 柱浓度.

POMINO 较 DONIMO v2 做了如下改进:逐像素 (不依赖查找表)执行辐射传输计算;显性表征了气 溶胶光学效应和地表反射各向异性对 NO₂反演的影 响;基于相同大气状态反演云参数和 NO₂柱浓度.

BTH-OMI 基于 POMINO AMFv6 构架(Lin et al., 2014; Lin et al., 2015)计算对流层 AMF,重 点提升传感器捕捉 NO₂柱浓度时空变化的能力,使 用高分辨率 WRF-CMAQ 模型(4 km×4 km)为 AMF 计算提供 NO₂先验廓线、地表气压、气压、温度和相 对湿度廓线数据.BTH-OMI、POMINO 和 DOMINO v2 的 AMF 辅助参数汇总见表 1.对流层 AMF 的计算 依照:

$$AMF_{\text{zm}} = \frac{\sum_{\substack{u \in \overline{X} \\ v integration (u, v) \\ v integrati$$

式中,SW 代表指定垂直高度的散射权重因子,由辐射传输计算得到,气温、气压、地表反照率、云高、云量和相对湿度等为计算所需的输入信息;x 代表指定垂直高度上的 NO₂ 丰度,由 WRF-CMAQ 模型提供.

本研究对 BTH-OMI 反演结果进行质量控制:在 柱浓度时空演变分析时剔除受到轨道异常影响 (http://www.knmi.nl/omi/research/product/rowanomalybackground.php)、云量高于 0.3 和地表反照率高于 0.3 的像元;在柱浓度验证评估和 NO_x排放反演时额 外剔除太阳高度角大于 70°及轨道最外侧 10 列的 数据.质量控制完成后,本研究依照面积加权方法 (Kharol *et al.*, 2015; Geddes *et al.*, 2016)将柱浓度 数据分配至 0.125°×0.125°网格中.

表1 BTH-OMI、DOMINO v2、POMINO 对流层 AMF 辅助参数

	Table 1	Ancillary parameters	for deriving tropospheric	AMFs in the BTH-OMI,	DOMINO v2 and POMINO product
--	---------	----------------------	---------------------------	----------------------	------------------------------

参数	BTH-OMI	DOMINO v2	POMINO
NO2、气压、温度和相对湿度廓线	WRF-CMAQ(4 km×4 km)	$TM4(3^{\circ}\times2^{\circ})$	GEOS-Chem(25 km~50 km)
地表气压	WRF-CMAQ(4 km×4 km)	$TM4(3^{\circ}\times2^{\circ})$	GEOS-Chem(25 km~50 km)
地表反照率	OMLER v3($0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$)	OMLER v1($0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$)	MCD43C2 c5(0.05°×0.05°)
气溶胶光学参数	-	—	GEOS-Chem(25 km~50 km)

2.2 WRF-CMAQ 化学传输模拟

WRF-CMAQ多尺度化学传输模拟用于支持 NO,柱浓度反演中对流层AMF的计算.其中WRF模 型(http://www.wrf-model.org/)使用 3.5.1 版本, CMAQ 模型(http://www.cmascenter.org/cmaq/)使 用5.0.1版本.模拟基于3层嵌套网格(图1)进行,



- **图1** WRF-CMAQ3 层嵌套模拟区域设置(a.嵌套区域空间范围,背景为 DOMINO v2 NO₂对流层垂直柱浓度,b.第3 层嵌套区域) 注:第一层嵌套区域覆盖中国地区(68.3°E~151.7°E, 10.4°N~54.0°N)
- Fig.1 Domains of the triple-nested WRF-CMAQ simulations (a. spatial coverage of the triple-nested domains with DOMINO v2 NO₂ TVCDs as background, b. domain 3 for the Beijing-Tianjin-Hebei region)

第1层覆盖中国地区,水平分辨率为36 km×36 km; 第2层覆盖中国东部地区,水平分辨率为12 km×12 km;第3层覆盖京津冀地区,水平分辨率为4 km×4 km.模型垂直方向从地表延伸至对流层顶,分为14 层.模拟时段为2011—2017年,其中2013年模拟实 验执行3层嵌套,其余年份仅在第1层执行.为保证 空间分辨率的一致性,本研究处理模型输出时依据 2013年第3层模拟结果的月均空间分布,将其他年 份第一层模拟输出降尺度至4 km×4 km.其他模型 配置、输入数据及模型验证参照先前研究(Zheng et al., 2015).

2.3 NO_x排放强度反演

本研究使用参数化二维高斯函数(Fioletov et al., 2011; Fioletov et al., 2013; Zhang et al., 2018)模拟城市周围 NO₂柱浓度的筛减扩散形态:

$$f(x,y) = \frac{M_{NO_2}}{2\pi \sigma_x \sigma_y \sqrt{1 - \rho^2}} \times \exp\left(-\frac{1}{2(1 - \rho^2)} \left[\frac{(x - x_0)^2}{\sigma_x^2} + \frac{(y - y_0)^2}{\sigma_y^2} - \frac{1}{2\rho(x - x_0)(y - y_0)}}{\frac{2\rho(x - x_0)(y - y_0)}{\sigma_x \sigma_y}}\right]\right) + Z_0$$
(2)

式中, x_0 , y_0 为排放中心的坐标; σ_x , σ_y 为尺度参数, 表征柱浓度从排放中心向四周扩散的距离; ρ 为 角度参数, 表征二维柱浓度场对称轴相对于模型坐 标系的旋转角度; M_{NO_2} 表征城市排放的 NO₂分子总 数,即排放负荷; f 为高斯函数模拟得到的 NO₂住浓 度二维分布.通过在 f 和 BTH-OMI 柱浓度数据之间 进行最小二乘非线性拟合, 城市 NO₂排放负荷可作 为拟合参数得以求解.依据质量守恒原则, NO₂排放 负荷应为排放强度和生命周期的乘积.因此, 城市 NO_x排放强度可按照式(3)计算得到:

$$E_{\rm NO_x} = \alpha \cdot \frac{M_{\rm NO_2}}{\tau} \tag{3}$$

式中, E_{NO_x} 表示 NO_x排放强度; α 表示 NO₂和 NO_x之 间经验转换因子,取 1.32(Liu *et al.*, 2016); τ 为 NO₂的化学生命周期,由尺度参量和平均风速做商 (Zhang *et al.*, 2018)求得(式(4)).平均风速数据取 自 ERA Interim 再分析资料(Dee *et al.*, 2011).

$$\tau = \frac{\sqrt{\sigma_x^2 + \sigma_y^2}}{v} \tag{4}$$

北京、天津、唐山和石家庄市 NO2对流层垂直柱

浓度由市辖区向四周辐射,在卫星图片中呈现为大 型点源的空间分布形态.基于这一分布特点,本研究 利用上述参数化二维高斯函数和 BTH-OMI 柱浓度 数据反演这 4 个重点城市的 NO_ 排放强度. 为支持 排放源强的时间变化分析,本研究在 2011—2017 年 间以3年滑动平均方式执行排放反演.同时,夏季 NO_x化学生命周期较短,城市 NO_x排放发生化学筛 减的速度较快,致使卫星图像中城市周围 NO₂柱浓 度变化梯度显著,有助于反演模型性能的提升 (Beirle et al., 2011).因此,反演模型仅使用夏季(6 月、7月、8月)柱浓度数据作为输入.反演实验涉及 4个目标城市、5个时间窗口(2011-2013年、 2012-2014 年、2013-2015 年、2014-2016 年、 2015-2017年),共计 20 次拟合操作.参照目标城 市 NO, 柱浓度烟羽的尺寸和先前研究(Zhang et al., 2018),最小二乘拟合窗口的半径设置为55 km.

高斯拟合方法反演城市 NO_x排放速率的不确定 度主要来自如下 4 个方面(Beirle *et al.*, 2011; Liu *et al.*, 2016):①拟合窗口大小的确定;②再分析风 速资料;③最小二乘拟合;④NO₂/NO_x比例因子经验 值.二维高斯排放反演的结果对拟合窗口大小较为 敏感.本研究基于拟合窗口半径初值,对半径进行 25 km 的正负扰动,并计算拟合窗口变化对排放速率反 演结果的相对影响.最小二乘拟合的不确定性用柱 浓度模拟结果和 BTH-OMI 观测之间的相对偏差衡 量.再分析风速资料和 NO₂/NO_x比例因子的不确定 性参照先前中国地区反演研究(Liu *et al.*, 2016), 分别取 20%和 10%.本研究假设各类不确定性之间 相互独立,对其求平方和后再开方得到排放速率反 演值的最终不确定度.

2.4 地基 NO2对流层垂直柱浓度数据

本研究利用多轴吸收差分光谱(MAX-DOAS) NO₂柱浓度观测资料对 BTH-OMI 进行验证.MAX-DOAS 技术通过分析不同高度角下穿过大气层到达 地面的太阳光谱提取对流层污染物的丰度信息,是 一种准确、有效的对流层 NO₂柱浓度观测手段,且常 用于卫星反演结果的验证评估(王婷等, 2014). MAX-DOAS 数据由中科院大气物理研究所香河 (116.95°E,39.75°N)大气探测综合试验站提供,数 据时段覆盖 2012 年全年,具体测量原理和方法可参 见相关文献(王婷等, 2014).MAX-DOAS 数据在当 地时间 13:00—14:00 取算数平均,并按站点位置和 网格化 OMI 资料配准.

3 结果与讨论(Results and discussion)

3.1 BTH-OMI 柱浓度的验证评估

依照 2.4 节介绍的数据配准方法,2012 年香河 站 MAX-DOAS 资料和 BTH-OMI、DOMINO v2 及 POMINO 柱浓度卫星资料共完成 17 次时空匹配,其 中观测时间覆盖四季(冬季 4 次、春季 6 次、夏季 2 次、秋季 5 次),柱浓度变化范围为 5.9×10¹⁵~7.04× 10¹⁶ molecs·cm⁻².验证结果显示,BTH-OMI、DOMINO v2 和 POMINO 数据均能较好地捕捉香河站 MAX-DOAS 观测结果的时间变化(图 2a).BTH-OMI 和 MAX-DOAS 观测之间决定系数达 0.74,高于 POMINO 和 DOMINO v2 产品的 0.72 和 0.39(图 2b),证明柱浓度反演时使用高分辨率 WRF-CMAQ 模型(4 km×4 km)的气象化学输出作为对流层 AMF 计算的输入能够提升产品捕捉 NO₂柱浓度时间变化

的能力.BTH-OMI 较 MAX-DOAS 观测平均偏低 21.7%.2011—2016 年(POMINO 仅更新至 2016 年) BTH-OMI 柱浓度较 POMINO 平均偏低 11.5%, 较 DOMINO v2 平均偏低 24.5%.上述结果表明, OMI 产 品和 MAX-DOAS 观测相互之间的相对偏差均在 ±30%范围之内,和全球业务化产品 NASA OMNO2 在华北地区的验证结果水平相当(Irie et al., 2008). 综上,本研究基于高分辨率(4 km×4 km)WRF-CMAQ 模拟资料重构大气质量因子显著改善了 DOMINO v2 捕捉京津冀地区 NO,柱浓度时间变化 的能力.但 BTH-OMI 计算 AMF 时未直接考虑气溶 胶光学效应和地表反射各向异性的影响,是导致其 数据精度较 POMINO 无显著提升的可能原因, 在高 分辨尺度下将气溶胶光学效应和地表反射各向异 性数据纳入 AMF 计算是研究下一步的重点改进 方向.



图 2 OMI NO₂对流层垂直柱浓度数据的验证评估(a.2012 年 MAX-DOAS 数据和 OMI 柱浓度资料的时间序列对比, b. 2012 年 MAX-DOAS 数据和 OMI 柱浓度资料的散点对比)

Fig.2 Comparison between OMI retrievals of NO₂ TVCDs and collocated MAX-DOAS measurements (a. time series of OMI retrievals and MAX-DOAS measurements during 2012, b. scatter plots of the OMI retrievals and MAX-DOAS measurements during 2012)

3.2 京津冀地区对流层 NO2垂直柱浓度时空演变 基于 BTH-OMI,本研究对京津冀地区 2011— 2017 年对流层 NO2垂直柱浓度的时空演变进行分析.为降低卫星资料不确定性的影响,柱浓度反演结果小于 1.0×10¹⁵ molecs·cm⁻²的网格不纳入分析范畴.如图 3 所示,京津冀地区 NO2对流层垂直柱浓度 在北京-天津-唐山及石家庄-邢台-邯郸形成两个核 心污染高值区.保定、廊坊、秦皇岛、沧州和衡水分布 在东南部的污染背景中,构成污染次高值区.而位于 西北部和北部的张家口和承德相对较为清洁,仅在 对应的市辖区出现局地污染峰值.京津冀地区除张 家口和承德市外,对流层 NO2污染负荷均较高,在 2011—2017年间柱浓度平均达 10¹⁶ molecs·cm⁻²数 量级.此外,京津冀地区 NO₂柱浓度空间分布存在城 郊差异,市辖区由于机动车的排放活动柱浓度一般 高于相邻的郊区.

京津冀地区 NO₂对流层垂直柱浓度均值从 2011年的1.02×10¹⁶ molecs·cm⁻²下降至2017年的 7.43×10¹⁵ molecs·cm⁻²,整体降幅达27.2%.受到行 异常问题和其他筛选条件(2.1节)影响,BTH-OMI 资料在京津冀地区平均每年的有效数据天数仅为 74 d.为尽量减小上述时间采样偏差的影响,降低分 析结论的不确定性,本研究以3年为时间窗口计算 2011—2017年京津冀地区 NO₂柱浓度的时间变化. 2011—2013、2013—2015 和 2015—2017 年京津冀地 区柱浓度均值分别达 9.7×10¹⁵、8.4×10¹⁵ 和 7.6×10¹⁵ molecs·cm⁻²,呈逐步下降趋势.从图 3d 可以看出,研 究时段 NO₂柱浓度的下降主要发生在北京-天津-唐 山和石家庄-邢台-邯郸两个核心污染高值区、秦皇 岛和张家口市市辖区及保定市的西南部,其中平均 柱浓度水平最高的石家庄-邢台-邯郸高值区降幅也 最为显著.在对流层 NO₂垂直柱浓度下降的整体趋 势下,不同城市行政边界内柱浓度均值的时间变化 存在一定差异.如图 4 所示,京津冀地区 13 个城市 NO₂对流层垂直柱浓度均值在 2011—2017 年间的 相对下降幅度在 4.0%~40.9%之间.其中邢台、石家 庄、邯郸和衡水降幅位列前 4 位,平均达 38.1%;NO_x 污染程度最低的承德市平均降幅最小,仅为 4%;尽 管秦皇岛市市辖区柱浓度在研究时段下降较为显 著,但城市西部污染下降不明显,导致行政区划内 整体降幅较低(6.1%),位列倒数第二.来自唐山市 的污染传输可能是导致该现象的原因.其余城市行 政区划内柱浓度均值的降幅均位于 10%~30%.值 得注意的是,北京、唐山柱浓度降幅明显低于两个 核心污染高值区的其他城市,在下一阶段制订治理 方案时应重点考虑.



- **图 3 2011—2017 年京津冀地区 NO₂对流层垂直柱浓度时空演变**(a.2011—2013 年 BTH-OMI NO₂对流层垂直柱浓度空间分布,b.2013— 2015 年 BTH-OMI NO₂对流层垂直柱浓度空间分布,c. 2015—2017 年 BTH-OMI NO₂对流层垂直柱浓度空间分布,d. 图(c)和图(a)的 差值)
- Fig.3 Spatiotemporal variation of NO₂ TVCDs over the BTH region during 2011—2017 (a. NO₂ TVCD map during 2011—2013, b. NO₂ TVCD map during 2013—2015, c. NO₂ TVCD map during 2015—2017, d. Differences between (c) and (a))

京津冀地区 NO₂柱浓度的季节变化(表 2)特点 显著,冬季(12、1、2 月)、秋季(9、10、11 月)、春季 (3、4、5 月)和夏季(6、7、8 月)柱浓度水平依次降 低,其中冬季柱浓度在 2011—2017 年间平均为夏季 的 2.1 倍.京津冀地区是典型的人为源污染地带, NO_x排放由人为活动主导,闪电和土壤微生物活动 等自然过程贡献较小.冬季为采暖季节,期间煤炭等 燃料使用量较其他季节显著提升,且冬季 NO_x生命 周期较长,在大气中的化学损耗速率相对于其他季 节较慢.这些因素使得柱浓度呈现冬高夏低的特性. 中国北方秸秆焚烧活动在秋收季节较为旺盛,是造成秋季柱浓度高于春季的可能原因.此外,和2011—2013年间平均情况相比,2015—2017年间京津冀地区冬、秋、夏、春四季 NO₂柱浓度均发生了显著下降,降幅分别达25.2%、17.0%、21.0%和25.0%.



图 4 京津冀地区 2011 年和 2017 年分城市 BTH-OMI NO₂对 流层垂直柱浓度

Fig.4 BTH-OMI NO_2 TVCDs over BTH cities in 2011 and 2017

Table 2 Seasonal average (standard deviation) of NO2 TVCDs over the

BTH region during 2011—2017			$10^{15} \text{ molecs} \cdot \text{cm}^{-2}$		
年份	冬季	春季	夏季	秋季	
2011-2013	13.5(9.0)	8.4(5.1)	6.2(4.2)	10.6(7.1)	
2013—2015	11.3(7.7)	7.2(4.5)	5.5(3.6)	10.1(6.2)	
2015—2017	10.1(6.2)	6.3(4.0)	4.9(2.9)	8.8(5.7)	

3.3 重点城市 NO_x 排放强度变化

反演结果显示,2.3节中的参数化二维高斯函 数对北京、天津、唐山和石家庄市周围的 NO,对流层 垂直柱浓度空间分布模拟效果较好,模拟结果和 BTH-OMI 数据之间的拟合相关系数达 0.86±0.03. 2011—2017年,北京、天津、唐山和石家庄市 NO.化 学生命周期均值达 6.3 h,和先前中国地区反演研究 (Liu et al., 2016)的结果(1.8~7.5 h)及美国东南部 夏季观测研究(Ryerson et al., 1998)的结果(4~6 h)可比.四城市 NO, 排放强度的反演结果和 MEIC 网格化排放数据较为一致,二者皮尔逊相关系数达 0.7, 卫星反演结果较 MEIC 平均偏低 13.9%. 北京、 天津、唐山和石家庄市 2011—2013 年间 NO,平均排 放强度分别为 108.3、139.5、241.4 和 178.6 mol·s⁻¹. 而 2015—2017 年间分别下降至 98.0、108.2、197.6 和 85.8 mol·s⁻¹,降幅分别达 9.5%、22.4%、18.1%和 51.9%.其中,"mol·s⁻¹"即为"摩尔/秒",代表单位时 间城市排放 NO, 的物质的量. 从图 5 可以看出, 4 城 市 NO_排放强度卫星反演结果的不确定性度分别为 35.9% ± 3.6%、107.3% ± 40.2%、79.5% ± 23.2% 和 37.0%±14.1%,均大于其和 MEIC 清单的平均绝对

偏差.本研究对反演结果的时间序列进行变化趋势的线性拟合,着重分析排放速率在研究时段的整体下降趋势.线性拟合结果表明,北京、天津、唐山和石家庄市在研究时段 NO_x排放强度每3年的下降速率分别为1.5%、7.1%、5.9%和21.8%.其中,北京、天津和唐山市排放速率降幅的反演结果和 MEIC 清单一致性较高,但二者在石家庄市出现了显著差异. MEIC 清单中石家庄市 2015—2017年间 NO_x平均排放速率较 2011—2013年间相对下降了23.4%,而反演结果中降幅达 51.9%.这一差距的来源可能是由于 MEIC 清单对排放趋势估计的不确定性导致的.

3.4 NOx 污染演变的影响因素分析

NO,污染和人类生产生活、社会经济发展高度 相关.根据公开统计数据,2011—2017年京津冀地区 生产总值、城镇人口和机动车保有量分别增加了 58.5%、19.1%和 38.6%, 而同时段 NO。对流层垂直 柱浓度下降了 27.2%,重点城市的 NO,排放速率也 显著降低.上述社会经济指标相较于 NO,卫星信号 的相反变化趋势和污染控制政策的有效实施关联 紧密.2011年末,"十二五"规划以京津冀为重点防 控区域,提出加大 NO,减排力度.2013 年"大气十 条"颁布后,北京、天津市和河北省分别出台了北京 市 2013—2017 清洁空气行动计划》、《天津市清新 空气行动方案》和对应的《大气污染防治行动计划 实施方案》,并在 2013—2017 年间采取了电厂超低 排放改造、落后产能淘汰、严控机动车保有量、严格 实施机动车排放标准、加速淘汰黄标车及老旧车、 燃煤锅炉整治和对钢铁、水泥、玻璃行业进行脱硝 改造升级等一系列措施.这些治理政策推动了京津 冀地区 2011—2017 年各部门 NO, 排放的削减, 在保 证经济持续发展的同时,使 NO,污染得到改善.如图 6 所示,依据清华大学 MEIC 排放清单,2015-2017 年间京津冀地区 NO, 排放量均值相对于 2011— 2013年间下降了22.0%,和卫星柱浓度反演结果中 22.1%的降幅一致.其中,电力部门排放下降了 60.1%, 贡献了总减排量的 63.7%; 交通和工业部门 排放分别下降了 12.5% 和 8.4%, 分别贡献了总减排 量的16.5%和17.0%.电力部门采取电厂超低排放改 造措施在研究时段取得了显著的减排效果,是京津 冀地区 NO_污染下降的重要影响因素.电力部门在 NO_排放总量中的占比由 2011—2013 年间的 23.3% 下降至 2015—2017 年间的 11.9%. 而同时段交通和 工业部门的NO_x排放降幅较小,其占比由2011—

表 2 京津冀地区 2011—2017 年分季节 NO₂ 对流层垂直柱浓度均 值(标准差)

120

90

60

30

0

300

225

150

75

ſ

2011

NO.排放速率/(mol·s⁻¹)

NO_排放速率/(mol·s⁻¹)











图 6 2011—2017 京津冀地区 NO₂对流层垂直柱浓度、分部 门人为源 NO_x排放量的时间变化情况

Fig.6 Temporal variation of the BTH-OMI NO2 TVCDs and sector-specific NO_x emissions from the MEIC inventory over the BTH region during 2011-2017

2013年间的 28.9%、44.6% 上升至 2015—2017年间的 32.4%、52.3%,是下一阶段 NO,减排的重点行业对象.

此外,土地覆盖类型能够对 NO_排放产生重要 影响 (Heald et al., 2015). 本研究利用高分辨 率(1 km×1 km)土地利用资料 HBASE(Wang et al., 2017) 对京津冀各城市地表覆盖和 2011—2017 年间 NO,柱浓度均值之间的关联进行初步探讨.HBASE 是基于 Landsat 卫星的数据产品,在全球范围提供 了地理网格被分类为人造陆表的概率,在城市行政 区划内对该概率值和网格面积的乘积进行累加即 得到城市人造陆表面积.结果显示,除北京市外,京 津冀地区 12 个城市的归一化人造陆表面积(图 7a) 和 NO,柱浓度均值之间存在较强的相关关系,二者 间皮尔逊相关系数达 0.60(图 7b).这在一定程度上 表明地表覆盖是形成京津冀地区 NO_排放空间格局 的重要影响因素.但北京市在相关分析中明显偏离 拟合线,说明除了地表覆盖外存在其他影响因素,

例如城市的产业结构和污染控制水平等.未来研究

应进一步对不同影响因素进行更全面的探讨.



图 7 京津冀地区人造陆表空间分布图(a)及人造陆表面积(km²)和 NO₂柱浓度(molecs·cm⁻²)之间的相关分析(b)

Fig.7 Human built-up and settlement extent over the BTH region (a) and Correlation analysis between human built-up area and NO₂ TVCD level among BTH cities (b)

4 结论(Conclusions)

1)同时将 NO₂先验廓线、气压、温度和相对湿度 垂直廓线 4 项 AMF 辅助参数的空间分辨率提升至 局地分辨率级别能够显著改善 OMI 捕捉 NO₂对流 层垂直柱浓度时间变化的能力.未来区域反演研究 计算 NO₂对流层 AMF 时应在高分辨率下对辅助输 入参数进行时空表征.此外,本研究的反演实验未显 式考虑气溶胶光学效应和地表反射各向异性对 AMF 的影响,是下一步有必要改进的方向.

2)京津冀地区 2011—2017 年 NO₂对流层垂直 柱浓度空间分布具备明显的城郊差异,北京-天津-唐山以及石家庄-邢台-邯郸 NO₄污染最为严重,保 定、廊坊、秦皇岛、沧州和衡水污染程度次之,张家 口和承德相对较为清洁.京津冀地区 2017 年 NO₂对 流层垂直柱浓度平均水平相对 2011 年下降了 27.2%.2011—2013 年,北京、天津、唐山和石家庄 NO₄平均排放强度分别为 108.3、139.5、241.4 和 178.6 mol·s⁻¹,而 2015—2017 年则下降至 98.0、 108.2、197.6 和 85.8 mol·s⁻¹.京津冀地区 NO₄污染在 研究时段发生了明显的改善,但不同城市污染改善 程度存在差异,其中北京、唐山柱浓度降幅相对污 染核心高值区其他城市明显偏低,在下一阶段制订

治理方案时应重点考虑.

参考文献(References):

- Beirle S, Boersma K F, Platt U, et al. 2011. Megacity emissions and lifetimes of nitrogen oxides probed from space [J]. Science, 333 (6050):1737-1739
- Boersma K F, Eskes H J, Dirksen R J, et al. 2011. An improved tropospheric NO₂ column retrieval algorithm for the ozone monitoring instrument [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 4 (9): 2329-2388
- Bovensmann H, Burrows J P, Buchwitz M, et al. 1997. SCIAMACHY: Mission objectives and measurement modes [J]. Journal of Atmospheric Sciences, 56(2):125-150
- Burrows J P, Buchwitz M, Rozanov V, et al. 1999. The global ozone monitoring experiment (GOME): Mission, instrument concept & first scientific results [J]. Journal of Atmospheric Sciences, 56 (414):2340-2352
- Callies J, Corpaccioli E, Eisinger M, et al. 2000. GOME-2-Metop's second-generation sensor for operational ozone monitoring [J]. ESA bulletin, 102: 28-36
- Clark N A, Demers P A, Karr C J, et al. 2010. Effect of early life exposure to air pollution on development of childhood asthma [J]. Environmental Health Perspectives, 118(2): 284-290
- Dee D P, Uppala S M, Simmons A J, et al. 2011. The ERA-Interim reanalysis: Configuration and performance of the data assimilation system[J]. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 137(656): 553-597

- Fioletov V E, Mclinden C A, Krotkov N, et al. 2011. Estimation of SO₂ emissions using OMI retrievals [J]. Geophysical Research Letters, 38(21):L21811(1)-L21811(5)
- Fioletov V E, Mclinden C A, Krotkov N, et al. 2013. Application of OMI, SCIAMACHY, and GOME-2 satellite SO₂, retrievals for detection of large emission sources [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 118(19):11399-11418
- Geddes J A, Martin R V, Boys B L, et al. 2016. Long-term trends worldwide in ambient NO₂ concentrations inferred from satellite observations [J]. Environmental Health Perspectives, 124 (3): 281-289
- 高晋徽,朱彬,王言哲,等. 2015. 2005—2013 年中国地区对流层二 氧化氮分布及变化趋势[J].中国环境科学,35(8):2307-2318
- Heald C L, Spracklen D V. 2015. Land use change impacts on air quality and climate[J]. Chemical Reviews, 115(10);4476-4496
- Irie H, Kanaya Y, Akimoto H, et al. 2008. Validation of OMI tropospheric NO₂ column data using MAX-DOAS measurements deep inside the North China Plain in June 2006: Mount Tai Experiment 2006 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 8(22): 6577-6586
- Kharol S K, Martin R V, Philip S, et al. 2015. Assessment of the magnitude and recent trends in satellite-derived ground-level nitrogen dioxide over North America[J]. Atmospheric Environment, 118(5): 236-245
- Levelt P F, Oord G H J V D, Dobber M R, et al. 2006. The ozone monitoring instrument [J]. IEEE Transactions on Geoscience & Remote Sensing, 44(5):1093-1101
- Lin J T, Martin R V, Boersma K F, et al. 2014. Retrieving tropospheric nitrogen dioxide over China from the Ozone Monitoring Instrument: effects of aerosols, surface reflectance anisotropy and vertical profile of nitrogen dioxide[J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 14(3): 1441-1461
- Lin J T, Liu M Y, Xin J Y, et al. 2015. Influence of aerosols and surface reflectance on satellite NO₂ retrieval: seasonal and spatial characteristics and implications for NO_x emission constraints [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 15: 11217-11241
- Liu F, Beirle S, Zhang Q, et al. 2016. NO_x lifetimes and emissions of cities and power plants in polluted background estimated by satellite observations [J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 16 (8): 5283-5298
- Liu F, Beirle S, Zhang Q, et al. 2017. NO_x emission trends over Chinese cities estimated from OMI observations during 2005 to 2015 [J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 17(15):9261
- Lorente A, Folkert Boersma K, Yu H, *et al.* 2017. Structural uncertainty in air mass factor calculation for NO₂ and HCHO satellite retrievals [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 10(3):1-35

- Martin R V. 2008. Satellite remote sensing of surface air quality [J]. Atmospheric Environment, 42(34): 7823-7843
- Palmer P I, Jacob D J, Chance K, et al. 2001. Air mass factor formulation for spectroscopic measurements from satellites: Application to formaldehyde retrievals from the Global Ozone Monitoring Experiment [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 106(D13):14539-14550
- Platt U. 2006. Differential Optical Absorption Spectroscopy, Air Monitoring by Encyclopedia of Analytical Chemistry[M]. John Wiley & Sons, Ltd, 2458-2462
- Richter A, Burrows J P, Nüß H, et al. 2005. Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space [J]. Nature, 437 (7055);129-132
- Ryerson T B, Buhr M P, Frost G J, et al. 1998. Emissions lifetimes and ozone formation in power plant plumes [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 103(D17): 22569-22583
- Seinfeld J H, Pandis S N. 2016. Atmospheric Chemistry and Physics: from Air Pollution to Climate Change [M]. New York; John Wiley & Sons. 235-331
- Seltenrich N. 2014. Remote-sensing applications for environmental health research[J]. Environmental Health Perspectives, 122(10):268-275
- Streets D G, Canty T, Carmichael G R, et al. 2013. Emissions estimation from satellite retrievals: A review of current capability[J]. Atmospheric Environment, 77(3):1011-1042
- Veefkind J P, Aben I, McMullan K, et al. 2012. TROPOMI on the ESA Sentinel-5 Precursor: A GMES mission for global observations of the atmospheric composition for climate, air quality and ozone layer applications[J]. Remote Sensing of Environment, 120: 70-83
- Wang P C, Huang E C, Brown de Colstoun E C, et al. 2017. Documentation for the global human built-up and settlement extent (HBASE) dataset from landsat [OL]. Palisades, NY: NASA Socioeconomic Data and Applications Center (SEDAC).2018-05-03, https://doi.org/10.7927/H48W3BCM. Accessed May 3th, 2018
- 王婷,王普才,余环,等. 2014. 华北地区香河站对流层 NO₂的 MAX-DOAS 光谱仪观测及变化特征分析 [J]. 气候与环境研究, 19 (1):51-60
- Zheng B, Zhang Q, Zhang Y, et al. 2015. Heterogeneous chemistry: a mechanism missing in current models to explain secondary inorganic aerosol formation during the January 2013 haze episode in North China [J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 14(15):2031-2049
- Zhang J, Van Der A R J, Ding J. 2018. Detection and emission estimates of NO_x sources over China North Plain using OMI observations [J]. International Journal of Remote Sensing, 39(9): 2847-2859
- 张强, 耿冠楠, 王斯文, 等. 2012. 卫星遥感观测中国 1996—2010 年 氮氧化物排放变化 [J]. 科学通报, (16):1446-1453