

2013—2015 年合肥市 PM_{2.5} 重污染特征研究^{*}

石春娥^{1,2} 张 浩^{1,2} 弓中强³ 张宏群^{1,2} 杨元建^{1,2} 吴文玉^{1,2}SHI Chune^{1,2} ZHANG Hao^{1,2} GONG Zhongqiang³ ZHANG Hongqun^{1,2} YANG Yuanjian^{1,2} WU Wenyu^{1,2}

1. 安徽省气象科学研究所, 安徽省大气科学与卫星遥感重点实验室, 合肥, 230031

2. 寿县国家气候观象台, 寿县, 232200

3. 安徽省气象台, 合肥, 230031

1. *Anhui Institute of Meteorological Sciences, Key Laboratory for Atmospheric Sciences and Remote Sensing of Anhui Province, Hefei 230031, China*2. *Shouxian National Climatology Observatory, Shouxian 232200, China*3. *Anhui Meteorological Observatory, Hefei 230031, China*

2016-11-09 收稿, 2017-03-22 改回.

石春娥, 张浩, 弓中强, 张宏群, 杨元建, 吴文玉. 2017. 2013—2015 年合肥市 PM_{2.5} 重污染特征研究. 气象学报, 75(4): 632-644

Shi Chune, Zhang Hao, Gong Zhongqiang, Zhang Hongqun, Yang Yuanjian, Wu Wenyu. 2017. Characteristics of severe PM_{2.5} pollution in Hefei during 2013—2015. *Acta Meteorologica Sinica*, 75(4): 632-644

Abstract The air quality data published by the environmental authorities, the meteorological data collected at Hefei observatory during 2013–2015, together with the vertical extinction coefficient data observed by lidar and water-soluble inorganic ions data of aerosols obtained during scientific field experiments were used to analyze characteristics of severe PM_{2.5} pollution (daily average PM_{2.5} concentration > 150 μg/m³) in Hefei. The results show that: (1) the PM_{2.5} pollution showed evident spatial differences with more severe PM_{2.5} pollution days at sites in northeastern Hefei and fewer pollution days at sites in southwestern Hefei. Monthly variations of severe PM_{2.5} pollution days were similar at all sites with the largest difference occurring in January. The PM_{2.5} concentration showed an evident diurnal variation with two maxima in the morning and evening respectively, and the morning maximum in severe pollution days often occurred later than in light polluted days; (2) in severe PM_{2.5} pollution days, the concentrations of other gas pollutants except O₃ increased obviously; (3) severe PM_{2.5} pollution days usually corresponded to haze and light fog, accompanied with light winds and stable stratification. The vertical extinction coefficients of aerosols below 600 m at the noon in severe pollution days were much higher than those in other days, while the occurrence height of maximum extinction coefficient decreased; (4) in severe pollution days, the water-soluble inorganic ions in PM_{2.5} became more abundant, and the percentage of NO₃⁻ increased most, exceeding the percentage of SO₄²⁻. The above results advance our understanding of the role of nitrate in the formation of high level PM_{2.5} and are helpful for the forecast and control of PM_{2.5} pollution.

Key words Severe PM_{2.5} pollution, Aerosol, Ions concentration, Extinction coefficient, Hefei

摘 要 综合利用中国环境监测网公布的合肥市 2013—2015 年大气污染物浓度数据和合肥市气象站的常规气象资料, 以及激光雷达探测资料、公益性行业(气象)专项(GYHY201206011)获得的气溶胶离子成分分析结果, 分析了合肥市 PM_{2.5} 重污染(日均浓度 > 150 μg/m³)特征。结果表明: (1) 2013—2015 年, 合肥市 PM_{2.5} 浓度和重污染天数空间分布差异明显, 东北部多、

^{*} 资助课题: 安徽省自然科学基金项目(1608085MD84)、华东区域气象科技协同创新基金(QYHZ201401)、公益性行业(气象)科研专项(GYHY201206011)、安徽省省级环境保护科研项目(2015-002)。

作者简介: 石春娥, 主要从事大气物理与大气环境研究。E-mail: shichune@sina.com

西南部少,1月各站差异最大。除了低浓度日(日均浓度 $\leq 35 \mu\text{g}/\text{m}^3$),PM_{2.5}浓度都存在明显的日变化,午后低、早晚高,且随着污染程度加重,早上峰值出现时间推后。(2)重污染日臭氧以外的的气态污染物浓度都显著上升。(3)重污染日常伴随着霾和轻雾天气,以稳定、小风天气为主,重污染日白天相对湿度偏高、风速偏小,600 m 以下的消光系数显著增大且峰值高度降低。(4)重污染日 PM_{2.5} 中水溶性无机离子含量增高,其中 NO₃⁻ 含量的占比增加最多,超过了 SO₄²⁻ 的占比。

关键词 PM_{2.5} 重污染,气溶胶,离子浓度,消光系数,合肥

中图法分类号 P434.5

1 引言

PM_{2.5} 是大气中空气动力学直径 $\leq 2.5 \mu\text{m}$ 的细颗粒物的简称,是大气复合污染最重要的特征污染物之一(朱彤等,2010),是当前中国东部地区大部分城市的重要污染物。PM_{2.5} 的危害很多,不仅能降低大气能见度,造成霾天气,而且还能携带其他大气污染物和病菌,直接进入人体肺部,严重危害人体健康(吴兑,2013);当 PM_{2.5} 浓度达到一定水平时,可减少到达地面的太阳辐射,造成小儿佝偻病高发,影响植物光合作用(任义方等,2010)。因此,世界上很多国际组织与国家、地区都给出了 PM_{2.5} 质量浓度的限值(吴兑,2013)。中国环境保护部 2012 年在新的环境空气质量标准(GB3095-2012)中增设了 PM_{2.5} 浓度限值(环境保护部,2012a),在“环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)”(HJ633-2012)中给出了各级空气质量对应的 PM_{2.5} 浓度 24 h 平均的限值(环境保护部,2012b),如重度污染对应的 PM_{2.5} 日均浓度高于 $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。现今,PM_{2.5} 已成为中国大部分城市的首要污染物(如:统计显示 2013—2015 年合肥市大气重污染日的首要污染物均为 PM_{2.5})。

鉴于 PM_{2.5} 对人体健康、生态环境、天气气候等多方面的影响和危害,PM_{2.5} 离子组成、时空变化特征、形成机理等早就受到中外科学家的关注。中国较早开展 PM_{2.5} 监测的有珠三角(吴兑等,1994a, 1994b;吴兑,1995,2013)、北京(张晶等,1998;He, et al, 2001;Yao, et al, 2003)、上海(Feng, et al, 2006;Fu, et al, 2008)等经济较发达的城市。受条件所限,早期对 PM_{2.5} 的监测时、空连续性均较差(李名升等,2016),主要是专业人群从科学的角度进行研究。最近几年,随着政府对大气污染治理的不断深入,加之各种监测技术的进步、普及,对中国 PM_{2.5} 的关注越来越大众化,对 PM_{2.5} 的相关研究得到了蓬勃发展,已从经济发达的北京(刘庆阳等, 2014;李令军等,2016;陈云波等,2016)、上海

(Feng, et al, 2009;Du, et al, 2011;周敏等,2013;常炉予等,2016)、广州(Tao, et al, 2012)、南京(银燕等,2009;张秋晨等,2012;He, et al, 2014)、杭州(Jansen, et al, 2014)发展到二、三线城市,如成都(Tao, et al, 2013)、合肥(Deng, et al, 2016;石春娥等,2016b)。上述研究加深了对中国不同地区 PM_{2.5} 化学组成、光学特性、吸湿特性及其与雾、霾天气及气象条件关系等的理解,并阐释了造成霾天气的大气气溶胶粒子的来源和各种影响,从而为加快制定大气污染治理政策提供了科学依据。但上述研究大部分属于个例研究,且高浓度 PM_{2.5} 形成过程中,本地排放和区域输送均有重要作用(郑海涛等, 2016;陈云波等,2016;常炉予等,2016),而中国幅员辽阔,南北、东西跨度大,各地自然条件、工农业布局不同,PM_{2.5} 来源、组成和时空分布特征各异。因此,对不同城市的 PM_{2.5} 重污染特征及成因必须开展针对性的研究。

安徽位于长三角外围,根据 2014 年的监测,安徽属于 PM_{2.5} 污染较重的区域(李名升等,2016)。省会城市合肥位于安徽省中部,2000 年之后,霾日数上升迅速(张浩等,2010;邓学良等,2015;石春娥等,2016a)。受地理位置及季风气候的影响,合肥的大气颗粒物来源复杂,不仅与本地工农业活动有关,还与周边省份大气污染物输送密切相关(杨元建等, 2013;石春娥等,2014,2016a),甚至新疆、内蒙古等西北地区的沙尘暴活动对合肥的 PM₁₀ 浓度也有显著的影响(石春娥等,2008),而 PM_{2.5} 是 PM₁₀ 的重要组成部分。2012—2013 年在代表性月份对合肥市气溶胶粒子理化特征进行观测研究,发现合肥雾、霾日往往对应着较高的 PM_{2.5} 浓度(石春娥等, 2016b)。2013 年,环境保护部在 74 个城市开始 PM_{2.5} 的常规在线监测,合肥市属于这 74 个城市之一,这为系统研究合肥 PM_{2.5} 重污染特征提供了条件。文中利用环保部门的大气污染物浓度监测数据,结合安徽光学精密机械研究所(位于董铺岛)激

光雷达探测数据、本课题组气溶胶离子组分分析数据,对2013—2015年合肥市 $\text{PM}_{2.5}$ 重污染特征进行系统分析,目的是了解 $\text{PM}_{2.5}$ 重污染出现的时空分布特征、影响因子,为开展 $\text{PM}_{2.5}$ 预测、预报和治理提供依据。

2 资料和方法

2.1 资料来源

所用资料包括:

(1) 大气污染物浓度数据,包括 CO 、 SO_2 、 NO_2 、 O_3 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 等6种成分的逐时浓度,来自中国环境保护部网站公布的监测数据(<http://data-center.mep.gov.cn/>)。合肥市环境监测站在合肥市市区和郊区共设有10个监测站,自2013年1月开始实时监测并发布上述6种污染物浓度,其中,董

铺水库站为清洁对照站,位于合肥市西北郊董铺水库中的董铺岛上。各测站观测仪器和观测方法一致,都是 β 射线法测量 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度。

(2) 地面常规气象数据,包括逐时风向风速、相对湿度,一日3次(08、14、20时,北京时,下同)的目测能见度、天气现象和日降水量等,均来自安徽省气象局信息中心。

(3) 2013年董铺岛的激光雷达探测数据,每15 min一次的消光系数(Wu, et al, 2011),由中国科学院安徽光学精密机械研究所大气成分与光学重点实验室提供。

(4) 2012—2013年代表性月份合肥市气溶胶粒子分级采样离子成分分析结果(石春娥等, 2016a)。环境监测站和气象观测站的位置如图1。本研究的时段为2013年1月—2015年12月。



图1 合肥市环境监测站和气象站站点分布

Fig.1 Geographic distribution of monitoring sites in Hefei

2.2 分析方法

城市日均浓度计算方法参考“环境空气质量标准”(GB3095-2012)(环境保护部, 2012b)。2013—2015年每年的有效天数均超过324 d。

在讨论 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度与气象要素关系时,根据资料情况,能见度用08、14、20时3个时次的平均,相对湿度、风速的日均值是24 h平均。

为讨论 $\text{PM}_{2.5}$ 重污染特征,根据“环境空气质量

指数(AQI)技术规范(试行)”(HJ633-2012)(环境保护部, 2012a)对 $\text{PM}_{2.5}$ 日均浓度和气溶胶离子成分分析的样本进行分类。各级空气质量临界指数对应的 $\text{PM}_{2.5}$ 日均浓度阈值分别为:一级(优):(0, 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$];二级(良):(35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 75 $\mu\text{g}/\text{m}^3$];三级(轻度污染):(75 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 115 $\mu\text{g}/\text{m}^3$];四级(中度污染):(115 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$];五级(重度污染):(150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, ∞)。在此基础上比较分析不同 $\text{PM}_{2.5}$

浓度等级日 PM_{2.5} 浓度、风速和相对湿度等的日变化、气溶胶消光系数平均廓线、气溶胶水溶性无机离子组成。

3 合肥市 PM_{2.5} 污染的总体特征

3.1 PM_{2.5} 浓度水平及季节变化

2013—2015 年,合肥市 PM_{2.5} 浓度平均值为 78.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (图 2),高于环境部给出的二级浓度下限值(35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)的 2 倍,低于北京 2013—2014 年的均值 88.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (李令军等,2016)。PM_{2.5} 浓度的季平均值夏季(6—8 月)最低,冬季(12—2 月)最高,冬季略高于夏季的 2 倍,春(3—5 月)、秋季(9—11 月)比较接近。中位值略低于均值,与均值的季节变化趋势一致。中位值和均值几乎都位于样本数值范围的中间位置(即离上下四分位的距离接近)。从全年情况看,中位值为 67 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,略低于日均浓度分级中轻度污染的界值(75 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)。PM_{2.5} 日均浓度最低可以到 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下,最大值超过 350 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。

根据 PM_{2.5} 分指数,3 a 间合肥各级空气质量等级出现天数分别为:123 d(优,日均浓度不超过 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、492 d(良,日均浓度在 35—75 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、281 d(轻度污染,日均浓度在 75—115 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、81 d(中度污染,日均浓度在 115—150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)和 84 d

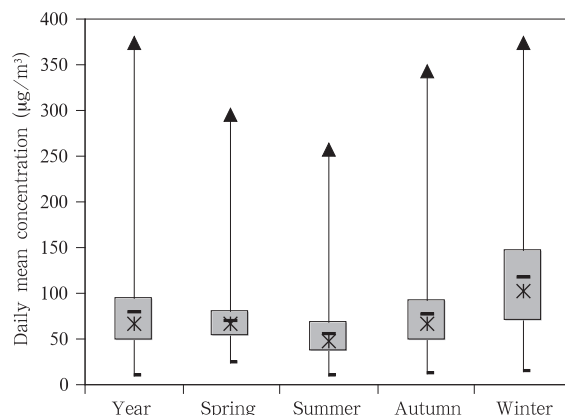


图 2 2013—2015 年合肥市 PM_{2.5} 日均浓度分布的盒须图 (三角表示最大值,下面的横线表示最小值;长方形中的星号表示中值,横线表示均值;长方形的下、上边分别为第一、三四分位)

Fig. 2 Box-plot of daily average PM_{2.5} concentration in Hefei

(the solid triangle ▲: maximum; the lower - : minimum; — within the rectangles: mean; * within the rectangles: median; the upper and lower borders of the rectangles: the 25th and 75th)

(重度以上污染,日均浓度超过 150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$),优良天气占 58%,重度以上污染占总天数的 7.9%。

3.2 合肥市 PM_{2.5} 浓度的空间分布

合肥 10 个测站 PM_{2.5} 年均浓度见图 3。2013—

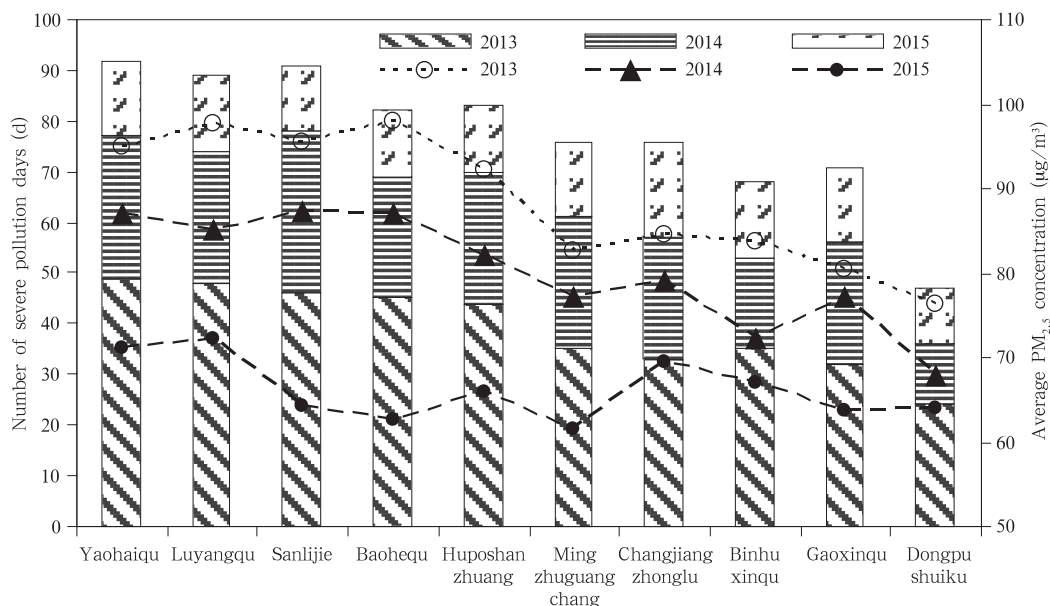


图 3 合肥各站点 PM_{2.5} 年均浓度和 PM_{2.5} 重污染天数

(柱为天数,折线为 PM_{2.5} 浓度)

Fig. 3 Comparison of severe PM_{2.5} pollution days among all sites in Hefei

(Columns denote severe pollution days; lines denote annual average PM_{2.5} concentrations)

2015 年,各站 PM_{2.5} 年均浓度均呈下降趋势,这一方面说明污染控制措施有效,如根据中国统计年鉴,2014 年安徽及周边省份的 SO₂ 排放量均低于 2013 年(<http://www.stats.gov.cn/tjsj/ndsj/>),另外,2014 年开始安徽省秸秆禁烧的政策执行得比以往更严了;另一方面,气象条件也有利于污染物的清除,2014、2015 年合肥的年降水量呈增长趋势。对照图 1 与图 3 可发现合肥 PM_{2.5} 浓度存在明显的空间差异,东北高、西南低,清洁对照站点(董铺水库)最低。2013 年清洁对照站与市区站 PM_{2.5} 平均浓度的差异最大,如瑶海区 PM_{2.5} 平均浓度 94.8 μg/m³,董铺水库 PM_{2.5} 平均浓度 76.3 μg/m³。与 2013 年相比,2015 年清洁对照站与市区站间的差异显著缩小,仅庐阳区和瑶海区 PM_{2.5} 平均浓度略高于 70 μg/m³,其他市区站 PM_{2.5} 平均浓度均低于 70 μg/m³,董铺水库 PM_{2.5} 平均浓度 64.0 μg/m³。2015 年,位于市中心的长江中路站排名上升。

3.3 合肥市 PM_{2.5} 浓度日际变化

2013—2015 年,合肥 PM_{2.5} 日均浓度逐日变化的范围较大,在合适的气象条件下,日增幅和日降幅均可超过 150 μg/m³,也就是说,空气质量等级的日际变化可以跨级,一天就可以从优良跨到重污染,也可以直接从重度污染变化到优良等级。从 PM_{2.5} 日均浓度日际变化量的频率分布(图 4)可见,PM_{2.5} 日均浓度逐日变化量接近正态分布,峰值在 -10—10 μg/m³,占比 33%,变化幅度在 -30—30 μg/m³ 的天数占比达到 72%。3 a 中,日增(减)量在 50 μg/m³ 以上的天数分别为 56 d (5.4%) 和 68 d (6.5%)。对照气象资料,可以发现 PM_{2.5} 浓度的陡升往往对应着能见度下降,平均风速在 1.0—2.0 m/s,且主导风向为偏南风以外的风向,或者平均风速低于 1.0 m/s 且无明显主导风向,这与合肥霾天的情况相似(石春娥等,2014);PM_{2.5} 浓度的陡

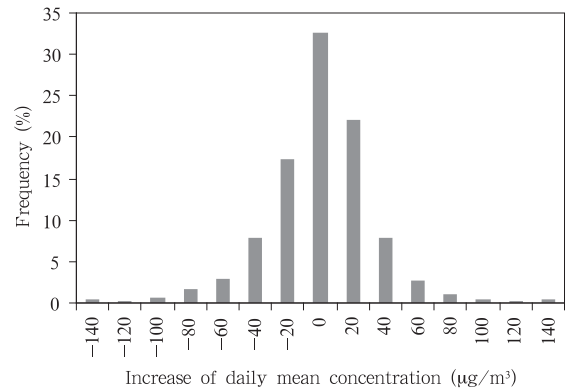


图 4 合肥 PM_{2.5} 浓度日均值变化(后一天日均值减去前一天日均值)幅度出现频率分布
(间隔 20 μg/m³,所有有效天数)

Fig. 4 The frequency distribution of changes
(the average PM_{2.5} concentration at the present day minus that in the preceding day)
in daily average PM_{2.5}

降往往对应着降水、大风,或者出现了偏南风,结合安徽及周边省份的污染源分布(Zhang, et al, 2009;曹国良等,2011),这些结论一方面说明所用资料可靠,同时也对开展空气质量预报有指导意义。

3.4 合肥市 PM_{2.5} 浓度与其他污染物浓度的关系

大气中颗粒物种类繁多,来源复杂。既有自然源产生的沙尘颗粒、海盐、花粉粒子和人类活动直接排放的颗粒物(汽车尾气、秸秆焚烧、工厂燃煤)等一次颗粒物,又有气粒转换生成的硫酸盐、硝酸盐等二次颗粒物(吴兑,2013)。也就是说,PM_{2.5} 与 CO、NO₂、SO₂、PM₁₀ 等可以有共同的来源,NO₂、SO₂ 又是 PM_{2.5} 的前体物,PM_{2.5} 本身又是 PM₁₀ 的主要组成部分,在 PM_{2.5} 污染严重时 PM₁₀ 中 PM_{2.5} 的占比更高(表 2)。因此,一般情况下,PM_{2.5} 浓度与上述污染物浓度存在显著的正相关,但与 O₃ 相关不明显(表 1)。从相关系数的季节变化看,PM_{2.5} 浓度与

表 1 PM_{2.5} 日均浓度与其他 5 种污染物和部分气象要素日均值的相关系数
Table 1 Correlation coefficients between daily concentrations of PM_{2.5} and other pollutants

	CO	O ₃	NO ₂	SO ₂	PM ₁₀	能见度	风速
全年	0.71	-0.21	0.57	0.60	0.83	-0.67	-0.30
春季	0.52	0.13	0.35	0.22	0.64	-0.61	-0.20
夏季	0.48	0.12	0.34	0.54	0.83	-0.67	-0.45
秋季	0.52	-0.12	0.59	0.56	0.86	-0.66	-0.29
冬季	0.79	-0.07	0.49	0.48	0.90	-0.63	-0.20

注:每个季度样本数都在 250 d 以上,95%置信水平的临界相关系数为 0.187, 99%置信水平的临界相关系数为 0.244。

NO₂、SO₂ 和 PM₁₀ 浓度的相关均在春季最弱,秋季最强,这与处在季风转换期(春、秋两季)主导合肥的气团来向变化密切相关。合肥春季以西北、偏北风为主,春季又是西北地区沙尘暴高发季节,影响范围广的强沙尘暴 82.5% 发生在春季(周自江等, 2003),所以,春季是西北沙尘输送影响最强的季节(石春娥等, 2008);秋季,合肥地区低空主要受移动缓慢的局地气团和来向为偏东北方向的气团影响,远程输送的影响较小(石春娥等, 2008)。因此,春、秋季影响合肥的气团不同,污染物来源也有不同,导致 PM_{2.5} 浓度与 NO₂、SO₂ 和 PM₁₀ 浓度的相关存在明显的季节变化。

3.5 PM_{2.5} 浓度与局地气象要素的关系

表 1 也给出了 PM_{2.5} 与部分地面气象要素的相关系数,为去除降水影响,计算 PM_{2.5} 与能见度和风速的相关系数时去掉了日降水量 10 mm 以上的样本。总体上,PM_{2.5} 浓度与能见度和地面风速都成负相关。与能见度的相关很强,达到了 99% 的置信水平,且相关系数季节变化不大。低风速可导致局地产生的大气污染物积累,高风速有利于局地污染物的扩散和对外输送,因此,一般情况下,污染物浓度与风速成反相关。合肥 PM_{2.5} 浓度与风速相关系数绝对值夏季最大,春季最小。由于受季风气候影响,合肥夏季盛行偏南风,而合肥以南地区污染物排放强度较合肥以北地区低(Zhang, et al, 2009; 曹国良等, 2011),不论从输送的角度还是从局地污染物扩

散的角度都是可以解释的,即风速增大有利于污染物的扩散;其他季节都是盛行偏北风,安徽的西北、北、偏东方向都是 SO₂、NO₂ 等排放大值区,因此,这些来向的风作用比较复杂,既可造成外来污染物的输入,也可以加强本地污染物的扩散作用,所以相关性较弱。

4 合肥市 PM_{2.5} 重污染特征

4.1 合肥市 PM_{2.5} 重污染存在明显的月季变化和 时间变化

3 a 间,合肥共计出现 PM_{2.5} 重度以上污染日 84 d,主要出现在秋、冬季节(10 月至次年 2 月), 2013 年最多,2015 年最少,月变化趋势各站基本一致,1 月和 12 月最多,5、6 月也偶有出现(图 5)。由图 5b 可以看出,各站点 PM_{2.5} 重污染主要发生在秋、冬季,6 月都会有 2—5 d,除高新区以外的站点 5 月都有 PM_{2.5} 重污染记录。从站点间差异情况看,1、11 和 12 月各站间差异较大,其他月份,尤其是 6 月,差异较小。根据已有研究(杨元建等, 2013),5 月底至 6 月初的夏收季节,秸秆焚烧活动对安徽江淮地区能见度、霾日数都有显著影响,因此,6 月是一年中秋、冬季以外另一个霾的高发月份(张浩等, 2010)。从本研究的统计结果也可以看出,受秸秆焚烧活动的影响,合肥可以在 5、6 月出现 PM_{2.5} 重污染天气,而产生这种重污染天气的主因并不是城区污染物的排放、累积,常常是大范围的、区域性的。因此,城郊

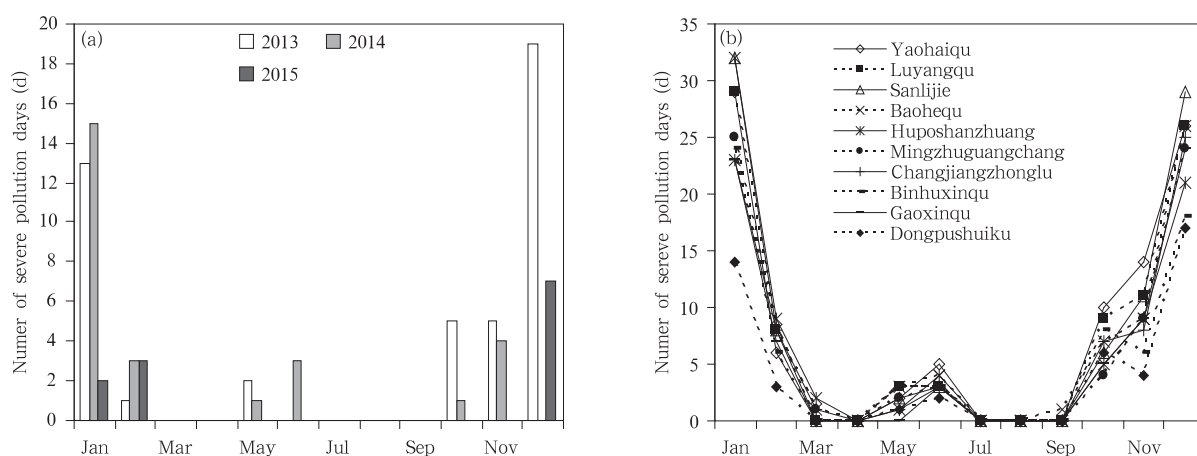


图 5 2013—2015 年合肥各月 PM_{2.5} 重污染天数分布

(a. 市内平均, b. 各站点)

Fig. 5 Monthly distribution of severe PM_{2.5} pollution days in Hefei during 2013—2015

(a. urban average, b. each individual site)

差异小。值得注意的是,2015年5、6月没有出现 $\text{PM}_{2.5}$ 重污染,这说明2015年秸秆禁烧效果显著。1月,作为清洁对照站的董铺水库站,重污染日数显著低于其他站点,说明1月的重污染以本地累积为主。

从年变化情况看(图3),各站都是2013年重污染天数最多,2015年最少,与年均浓度的变化趋势一致。

如果仍然以日均浓度的限值标准来定义小时空气质量等级,即以小时浓度超过 $150\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ 作为重污染判断标准,可以发现重污染的出现亦存在显著的日变化,傍晚到早晨高、午后低(图6)。考虑到有资料缺测的情况,图6同时还给出了重度污染出现的百分比(频率的时间变化),由图可见,重污染出现频率跟出现次数的日变化一致,相对而言,午后重污染的出现频率较低,低至6%左右,早晚可超过10%。

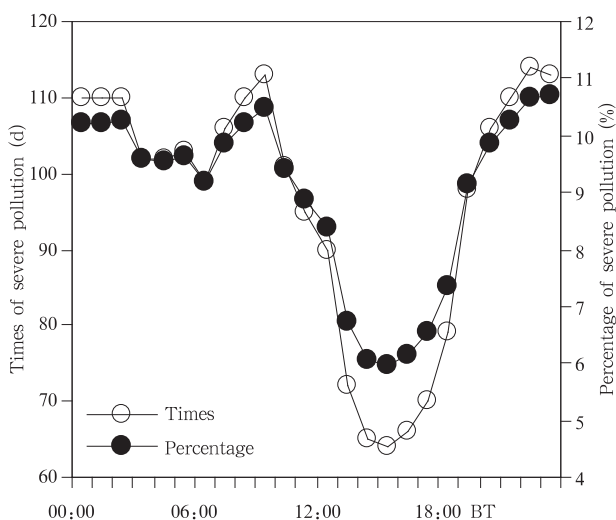


图6 2013—2015年 $\text{PM}_{2.5}$ 逐时浓度 $\geq 150\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ 次数日变化

Fig. 6 Diurnal variations of the time and frequency with hourly $\text{PM}_{2.5} \geq 150\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ during 2013–2015

4.2 合肥市 $\text{PM}_{2.5}$ 重污染存在空间差异

由图3可见,10个测站 $\text{PM}_{2.5}$ 重污染出现天数的空间分布与 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度分布趋势一致。根据3a中、重污染天数,10个测站可以分为4个等次:位于合肥东北部的瑶海区、三里街、庐阳区出现重污染天数最多,在90d左右,分别为92、91和89d;合肥市中心城区的包河区、长江中路、琥珀山庄和明珠广场第2多,为80d左右,分别为82、76、83和76d;

位于合肥市西南外围的新城区(滨湖新区和高新区)排第3,在70d左右,分别为68和71d;位于合肥西北的清洁对照站(董铺水库)最低(47d),约为瑶海区的一半。

每一年重污染日数站点间排序略有变化:2013年,重污染天数居前3位的是瑶海区、庐阳区和三里街,最低的3个站点是董铺水库、高新区和长江中路;2014年,居前两位的是三里街、瑶海区,另外3站并列第3,最低两位是董铺水库和滨湖新区,长江中路和高新区并列第2少;2015年,长江中路最多(19d),董铺水库仍为最少(11d),其他站点都在13—15d,长江中路由前两年的较少变为2015年最多,且显著超过市区其他站点(与排第2的站点相比,超出26%),如上所述,2015年长江中路站 $\text{PM}_{2.5}$ 平均浓度的排名也上升了,这可能与修建地铁等基建活动有关。2013年董铺水库站与市区站重污染日数差异最大,如瑶海区重污染天数为49d,董铺水库站重污染天数才24d。与2013年相比,2015年董铺水库站与市区站间的差异显著缩小,除长江中路外,其他市区站点,重污染天数最多的为15d,董铺水库重污染天数11d。

4.3 $\text{PM}_{2.5}$ 重污染日浓度峰值出现时间推后

了解污染物浓度日变化对人们安排日常生活有重要意义,也有助于了解污染物的来源。由图7可见,除了一级空气质量日(优), $\text{PM}_{2.5}$ 浓度均存在明显的日变化,且污染等级越高, $\text{PM}_{2.5}$ 浓度日变化曲线越明显,在轻度以上污染日,日变化曲线呈现明显的双峰分布,两个峰值分别在09时前后和21时,谷值出现在15—16时。两个峰值差别不大,峰值与谷值的差值分别为27(轻度污染日)、39(中度污染日)和33 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (重度污染日)。峰值的出现时间恰与早晚上下班高峰时段重合,交通高峰时人为排放相对增多,这个时间近地层逆温层尚未消失或正在形成、大气混合层高度较低,不利于污染物的扩散;而谷值出现时是一天中湍流发展最为旺盛、混合层厚度发展最为成熟、扩散条件最好的时段,且交通高峰尚未开始,交通造成的污染源相对较低。这说明大多数情况下合肥的 $\text{PM}_{2.5}$ 污染是这二者结合造成的。

图7显示中、重污染日 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度呈明显的双峰型变化,即使在午后谷底,平均浓度也在 $170\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上,超过重污染日平均浓度的限值($150\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$)。

另外,值得注意的是,随着污染程度加重,PM_{2.5} 浓度早上峰值出现时间略有推后,如轻度污染日峰值出现时间为 08 时,中度污染日为 09 时,重度及以上污染日为 10 时,而谷值出现时间基本一致,都是 16 时。重污染日早上峰值时间推后可能与重污染主要出现在冬季有关,另外,也说明重污染与稳定大气边

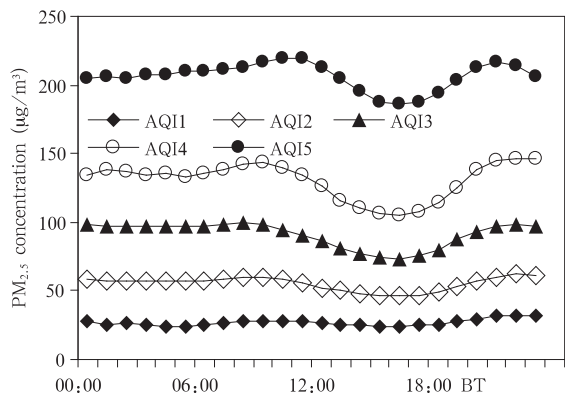


图 7 各级空气质量日合肥市 PM_{2.5} 浓度日变化 (AQI 1—5 对应 PM_{2.5} 分指数从优到重度污染,下同)
Fig. 7 Diurnal variations of PM_{2.5} concentration on days with different PM_{2.5} levels (AQI 1 to 5 refer to air quality levels from 1 to 5, same hereafter)

界层之间可能存在相互促进的作用,具体机制有待进一步研究。

4.4 PM_{2.5} 重污染日 O₃ 以外的气态污染物浓度亦显著上升

了解 PM_{2.5} 重污染日与低浓度日 (PM_{2.5} 浓度 ≤ 35 μg/m³) 污染物浓度及其对应的气象条件的差异,有助于理解重污染的形成机制。表 2 给出了 PM_{2.5} 重污染日、PM_{2.5} 低浓度日和 3 a 所有有效日各污染物平均浓度的比较,表中 O_{3-1h} 和 O_{3-8h} 分别指臭氧最大 1 h 浓度和最大 8 h 滑动平均浓度。与 3 a 均值相比,PM_{2.5} 重污染日的 O₃ 浓度较低,高浓度气溶胶颗粒会显著减弱到达近地面的紫外辐射,光化学反应减弱,因而会降低近地层臭氧浓度;其他污染物浓度都升高,重污染日 CO、SO₂、NO₂ 平均浓度是 3 a 均值的 1.6—1.8 倍,PM_{2.5} 和 PM₁₀ 浓度是 3 a 均值的 2.6 和 2.0 倍。除了 O₃,其他污染物在 PM_{2.5} 重污染日的平均浓度是低浓度日平均浓度的 2.5—7.9 倍,从 PM_{2.5} 低浓度日到 PM_{2.5} 重污染日,PM_{2.5} 浓度增长倍数最多,其次是 PM₁₀ 和 SO₂。说明这些污染物可能有共同的来源或有共同的影响因子。

表 2 PM_{2.5} 重污染日各污染物浓度均值与其他均值的比较 (单位:CO, mg/m³; 其他 μg/m³)
Table 2 Comparison of average pollutants concentrations on severe PM_{2.5} pollution days and averages on other days (unit: CO, mg/m³; others μg/m³)

项目	CO	NO ₂	SO ₂	PM _{2.5}	PM ₁₀	O _{3-1h}	O _{3-8h}	PM _{2.5} /PM ₁₀	总天数 (d)
PM _{2.5} 重污染日平均浓度	1.67	55.1	35.4	206.5	214.9	54.4	43.9	0.96	84
PM _{2.5} 低浓度日平均浓度	0.66	22.2	11.5	26.2	51.5	66.2	57.1	0.51	123
2013—2015 年平均浓度	0.99	34.6	20.0	78.9	109.1	65.9	56.3	0.72	>1000
重污染日与 3 a 均值之比	1.69	1.59	1.77	2.62	1.97	0.83	0.78		
重污染日与低浓度日之比	2.53	2.48	3.08	7.88	4.70	0.82	0.78		

4.5 PM_{2.5} 重污染日对应着低能见度、小风的静稳天气

从天气现象记录看 (表 3), 重污染日往往对应着霾和轻雾天, 也会出现降水和雾; 而在清洁日, 雾、霾天很少, 往往对应着降水或者大风 (平均风速 3 m/s 以上), 出现降水的比例高达 75%, 这可以解释为什么图 7 中清洁日 PM_{2.5} 浓度日变化不明显。PM_{2.5} 重污染日都对应着低能见度、小风 (2 m/s 以下) 的所谓“静稳天气”, 同时相对湿度偏高。重污染日对应的日均能见度在 0.7—8 km, 73% 的样本低

于 5 km; 日均相对湿度的变化范围为 40%—98%, 92% 的样本高于 60%, 中位值为 76%。用安徽 6 个城市 2015 年的观测资料分析发现接近 80% 的重污染时次对应着相对湿度在 70% 以上 (石春娥等, 2017); 日均风速的变化范围为 0.63—3.33 m/s, 中位值为 1.52 m/s, 仅 4 例日均风速大于 3 m/s, 如上所述, 风对污染输送的作用比较复杂, 不同污染等级日风速均值差异也不是特别明显。PM_{2.5} 重污染且日均能见度高于 5 km 往往对应着低相对湿度 (< 60%)。

表3 PM_{2.5}重污染日与PM_{2.5}低浓度日天气现象和地面气象要素统计特征

(风速和湿度是24 h平均,能见度是3个时次平均)

Table 3 Statistics of weather and ground-level meteorological elements on severe PM_{2.5} pollution days and low PM_{2.5} days

PM _{2.5} 浓度等级	气象参数均值			天气现象出现频率(%)				总天数(d)
	风速(m/s)	相对湿度(%)	能见度(km)	降水	霾	雾	轻雾	
优	2.5	80.3	12.0	74.7	2.4	0.8	53.7	123
良	2.1	74.4	9.1	46.1	26.2	1.2	71.1	492
轻度污染	1.8	73.9	6.8	30.2	68.7	3.9	85.4	281
中度污染	1.6	74.7	5.3	28.4	76.5	4.9	87.6	81
重污染日	1.6	76.0	3.8	14.3	79.8	13.1	82.1	84

图8给出了不同等级PM_{2.5}浓度日相对湿度和风速日变化。由图可见,虽然表3中相对湿度均值在重污染日与其他等级日差异不大,但白天重污染日的相对湿度明显高于清洁日以外的等级日,尤其

是08—14时,如上所述,清洁日往往有降水,受降水天气影响,相对湿度较大。重污染日的风速在中午前后明显低于其他浓度等级日。这些特征对重污染的预报有一定的参考价值。

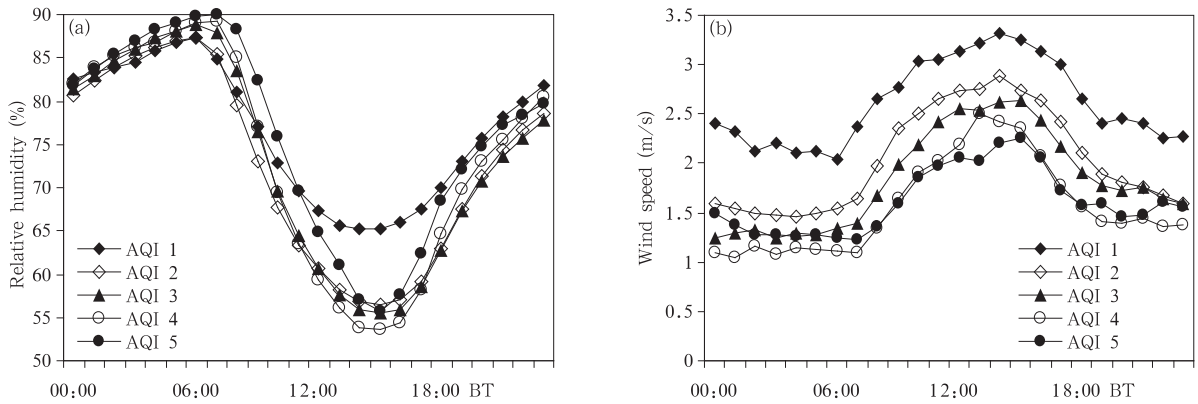


图8 不同等级PM_{2.5}浓度日相对湿度(a)、风速(b)日变化

Fig. 8 Diurnal variations of relative humidity (a) and wind speed (b) on days with different PM_{2.5} levels

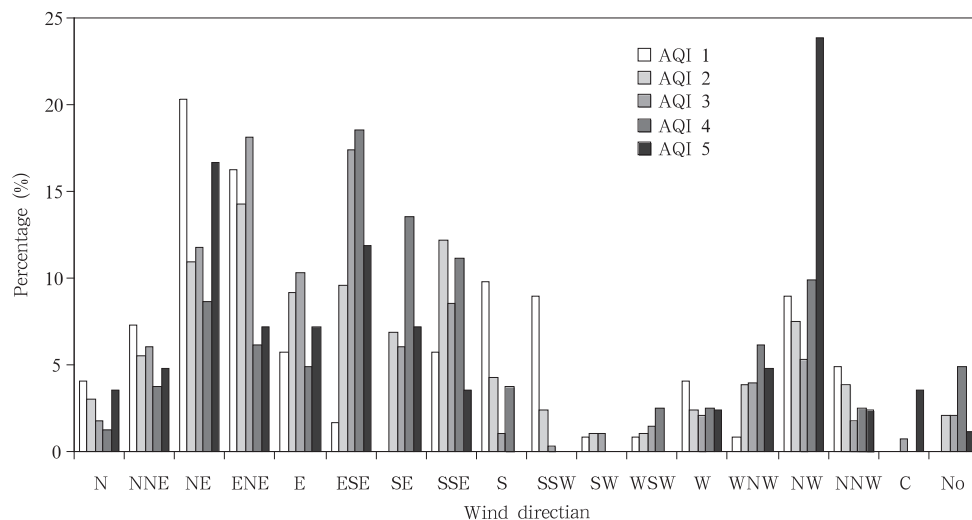
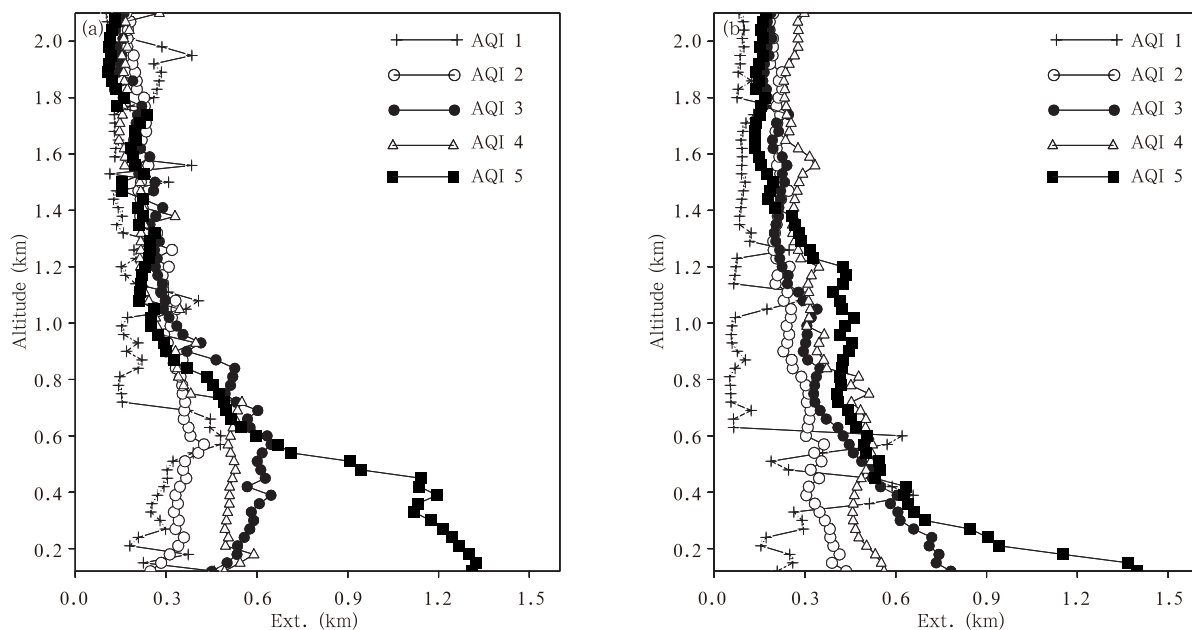
为探讨不同PM_{2.5}浓度等级日风向的差异,首先计算了每日主导风,然后计算了各风向作为主导风的次数及在该类样本中的占比(图9)。可以看到,PM_{2.5}重污染日的主导风以西北风、东北风和东南风最多,无南风到西南西风,静风和无主导风也有一定的比例。而在PM_{2.5}低浓度日的主导风向以东北风最多,其次就是南风到西南风,没有静风。与其他各浓度等级相比,PM_{2.5}重污染日的西北风频率显著增大(达23.8%);与PM_{2.5}低浓度日相比,重污染日西北风和东南偏东风显著增多,南风和西南偏南风明显减少。另外,也注意到,中度污染时,东东南风到南东南风显著增多。不同等级PM_{2.5}浓度日地面主导风的这种变化与已有的关于输送条件对霾的影响研究(石春娥等,2014)结论一致。

为了解PM_{2.5}重污染时大气气溶胶在垂直方向

上的分布特征,图10给出了不同等级PM_{2.5}浓度日合肥董铺岛上14时和02时的平均消光系数廓线。由图可见,白天轻度以上污染日的消光系数与良好日的差别主要发生在800 m以下,重污染日的消光系数在600 m以下显著大于其他污染等级日,且其峰值高度更低,说明大气层结较稳定;晚上,轻度以上大气污染日气溶胶消光系数随高度递减,说明轻度以上污染日夜间的大气层结均比较稳定,扩散条件差,污染物被限制在近地层。

4.6 合肥市PM_{2.5}重污染日PM_{2.5}无机组分中硝酸盐的比例显著上升

在公益性行业(气象)专项(GYHY201206011)的支持下,在合肥市进行大气气溶胶分级采样和水溶性离子成分分析,共获得26个有效样本(石春娥等,2016b; Deng, et al, 2016)。根据PM_{2.5}浓度对

图9 不同等级 PM_{2.5} 浓度日主导风向频率分布Fig. 9 Percentages of dominant wind direction on days with different PM_{2.5} levels图10 不同等级 PM_{2.5} 浓度日 14 时(a)和 02 时(b)的平均消光系数廓线(AQI 1—5 对应 PM_{2.5} 分指数从优到重度污染)Fig. 10 Vertical profiles of extinction coefficient at 14:00 BT (a) and 02:00 BT (b) averaged on days with different PM_{2.5} levels

样本进行分类(受仪器切割头影响,分级采样只能得到 PM_{2.1},为了统一,用 PM_{2.5} 表示),然后统计各级浓度等级日 PM_{2.5} 水溶性无机离子浓度的均值,计算了一些比值(表 4)。图 11 为各水溶性无机离子占 PM_{2.5} 质量浓度的百分比。由于中度污染等级 ($115 \mu\text{g}/\text{m}^3 < \text{PM}_{2.5} \leq 150 \mu\text{g}/\text{m}^3$) 仅 1 个样本,因此,这里把中度污染等级与重度污染等级合并计算。

由图 11 可见,在“优”等级日(优),水溶性无机离子中占比最高的是 Ca^{2+} (12.4%),其次是 SO_4^{2-} (11.8%), NO_3^- 的占比为 8.2%,随着 PM_{2.5} 浓度等级增加, Ca^{2+} 的比例持续下降,在中、重度污染时占比仅 3%;从“优”到“良”, SO_4^{2-} 的占比增幅最大,成为最高(18.9%), NO_3^- 的占比增加不多,为 9.8%;然而从“良”到“轻度污染”、“中、重度污染”,占比增

幅最大的都是 NO_3^- ，在“中、重度污染”日其比例高达 29.7%，成为占比最高的离子，超过 SO_4^{2-} (24.5%)。由表 4 可见，随着 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度等级上升， $(\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-)$ 占 $\text{PM}_{2.5}$ 的比值上升，在“优”等级日，仅占 20%，到中、重度污染日，其占比超过 50%。而在这两种离子中， NO_3^- 的比例上升更快，表现为 NO_3^- 与 SO_4^{2-} 之比上升，在中、重度污染时， NO_3^- 与 SO_4^{2-} 之比为 1.35，而在优良等级时，该比值低于 0.7。可见， $\text{PM}_{2.5}$ 重污染的形成与硝酸盐离子的增多密切相关。另外，随着 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度等级的增加，占比稳定且显著增加的离子还有 NH_4^+ ，在中、重度污

染等级其占比达 13.4%。联系上文， $\text{PM}_{2.5}$ 重污染日白天相对湿度明显偏高，说明高湿有利于 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 和 NH_4^+ 三种无机离子的形成 (Pan, et al, 2016)，是否如 Wang 等 (2016) 提出的硫酸盐气溶胶生成机理“在高湿、有高浓度 NH_3 存在的条件下， NO_2 可以促进 SO_2 向硫酸盐的转化”导致上述结果，还需要进一步深入分析。 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度升高时，水溶性离子浓度比例更大，这与北京 (Cheng, et al, 2015)、长三角 (Fu, et al, 2008)、珠三角 (Tan, et al, 2009) 的情形一致，同时也与表 1 中冬季 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度与 NO_2 相关性最强一致。

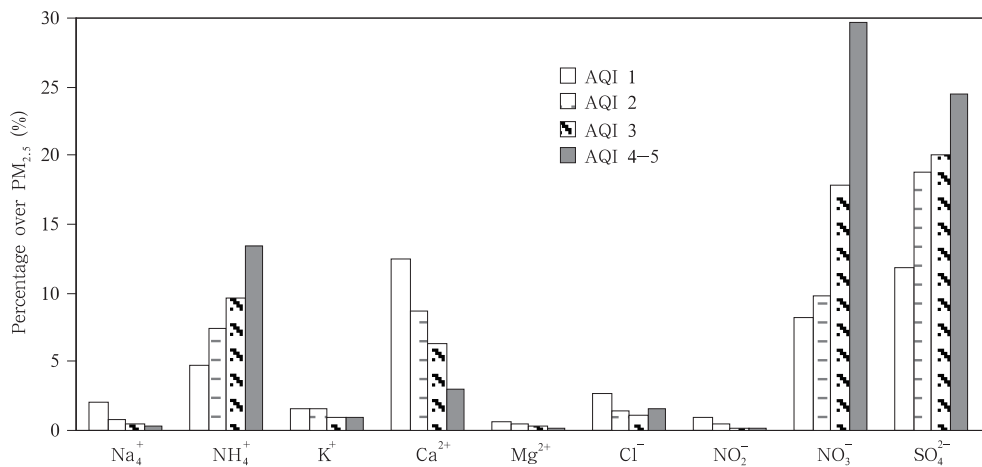


图 11 不同等级污染日 $\text{PM}_{2.5}$ 水溶性无机离子组分占 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度百分比变化

Fig. 11 Percentages of water-soluble inorganic ions in $\text{PM}_{2.5}$ averaged on days with different $\text{PM}_{2.5}$ levels

表 4 不同等级污染日气溶胶离子组分统计参数
Table 4 Statistics of water-soluble inorganic ions in $\text{PM}_{2.5}$ on days with different $\text{PM}_{2.5}$ levels

	样本数	$(\text{NO}_3^- + \text{SO}_4^{2-}) / \text{PM}_{2.5}$	$\text{NO}_3^- / \text{SO}_4^{2-}$
一级(优)	3	0.20	0.69
二级(良)	11	0.29	0.55
三级(轻度污染)	8	0.37	0.96
四、五级(中、重度污染)	4	0.54	1.35

5 结 论

综合利用气象部门、环保部门以及科学实验获得的资料分析了合肥市 2013—2015 年 $\text{PM}_{2.5}$ 重污染特征，结论如下：

- (1) 2013—2015 年，合肥市 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度和重污染日均具有明显时空分布特征。时间上，夏季最低，冬季最高，白天低、早晚高。空间上，东北部高、西南低，位于西郊的董铺水库站最低；3 a 中，董铺水库站的重污染日数约是东北部测站的一半。 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度日际变化幅度大，变化幅度接近正态分布，峰值在 $-10\sim10\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。
- (2) $\text{PM}_{2.5}$ 浓度日变化成双峰型，随着 $\text{PM}_{2.5}$ 污染加重(浓度等级增大)，早上 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度峰值出现时间推后，重污染日的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度早上峰值出现时间为 10 时，比良和轻度污染等级日的峰值时间晚 2 h。
- (3) $\text{PM}_{2.5}$ 重污染日， O_3 以外的其他气态污染物浓度约是 3 a 均值的 1.6—1.8 倍。
- (4) $\text{PM}_{2.5}$ 重污染日往往对应着低能见度、小风

的静稳天气。与其他 PM_{2.5} 浓度等级日相比,重污染日白天湿度偏高、风速偏低,低层消光系数显著增大且峰值高度降低。

(5) 随着 PM_{2.5} 浓度等级增大,PM_{2.5} 中 NO₃⁻、NH₄⁺ 和 SO₄²⁻ 的占比稳定上升,Ca²⁺ 的占比稳定下降,其他离子浓度占比变化不大,从轻度污染到中、重度污染,NO₃⁻ 的占比显著增大,重污染日 PM_{2.5} 中 NO₃⁻ 的占比最大。

致谢:感谢上海市城市环境气象中心的周广强博士提供了部分污染物浓度资料。

参考文献

- 曹国良, 张小曳, 龚山陵等. 2011. 中国区域主要颗粒物及污染气体的排放源清单. 科学通报, 56(3): 261-268. Cao G L, Zhang X Y, Gong S L, et al. 2011. Emission inventories of primary particles and pollutant gases for China. Chinese Sci Bull, 56(8): 781-788
- 常炉予, 许建明, 周广强等. 2016. 上海典型持续性 PM_{2.5} 重度污染的数值模拟. 环境科学, 37(3): 825-833. Chang L Y, Xu J M, Zhou G Q, et al. 2016. A numerical study of typical heavy air pollution episode of PM_{2.5} in Shanghai. Environ Sci, 37(3): 825-833 (in Chinese)
- 陈云波, 徐峻, 何友江等. 2016. 北京市冬季典型重污染时段 PM_{2.5} 污染来源模式解析. 环境科学研究, 29(5): 627-636. Chen Y B, Xu J, He Y J, et al. 2016. Model analytic research of typical heavy PM_{2.5} pollution periods in winter in Beijing. Res Environ Sci, 29(5): 627-636 (in Chinese)
- 邓学良, 石春娥, 姚晨等. 2015. 安徽霾日重建和时空特征分析. 高原气象, 34(4): 1158-1166. Deng X L, Shi C E, Yao C, et al. 2015. Research of reconstruction and characteristics of hazes in Anhui. Plateau Meteor, 34(4): 1158-1166 (in Chinese)
- 环境保护部. 2012a. GB 3095-2012 环境空气质量标准. 北京: 中国环境科学出版社. Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. 2012a. GB 3095-2012 Ambient Air Quality Standards. Beijing: China Environmental Science Press (in Chinese)
- 环境保护部. 2012b. HJ 633-2012 环境空气质量指数(AQI)技术规范(试行). 北京: 中国环境科学出版社. Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. 2012b. HJ 633-2012 Technical Regulation on Ambient Air Quality Index (on trial). Beijing: China Environmental Science Press (in Chinese)
- 李令军, 王占山, 张大伟等. 2016. 2013~2014 年北京大气重污染特征研究. 中国环境科学, 36(1): 27-35. Li L J, Wang Z S, Zhang D W, et al. 2016. Analysis of heavy air pollution episodes in Beijing during 2013~2014. China Environ Sci, 36(1): 27-35 (in Chinese)
- 李名升, 任晓霞, 于洋等. 2016. 中国大陆城市 PM_{2.5} 污染时空分布规律. 中国环境科学, 36(3): 641-650. Li M S, Ren X X, Yu Y, et al. 2016. Spatiotemporal pattern of ground-level fine particulate matter (PM_{2.5}) pollution in mainland China. China Environ Sci, 36(3): 641-650 (in Chinese)
- 刘庆阳, 刘艳菊, 杨峥等. 2014. 北京城郊冬季一次大气重污染过程颗粒物的污染特征. 环境科学学报, 34(1): 12-18. Liu Q Y, Liu Y J, Yang Z, et al. 2014. Daily variations of chemical properties in airborne particulate matter during a high pollution winter episode in Beijing. Acta Sci Circumst, 34(1): 12-18 (in Chinese)
- 任义方, 王春乙, 赵艳霞. 2010. 气溶胶辐射效应对作物及生态系统的影响综述. 中国农业气象, 31(4): 533-540. Ren Y F, Wang C Y, Zhao Y X. 2010. Review on impact of atmospheric aerosol radiation effect on crops and ecological system. Chin J Agrometeor, 31(4): 533-540 (in Chinese)
- 石春娥, 姚叶青, 张平等. 2008. 合肥市 PM₁₀ 输送轨迹分类研究. 高原气象, 27(6): 1383-1391. Shi C E, Yao Y Q, Zhang P, et al. 2008. Transport trajectory classifying of PM₁₀ in Hefei. Plateau Meteor, 27(6): 1383-1391 (in Chinese)
- 石春娥, 邓学良, 杨元建等. 2014. 2013 年 1 月安徽持续性霾天气成因分析. 气候与环境研究, 19(2): 227-236. Shi C E, Deng X L, Yang Y J, et al. 2014. Analyses on the causes of the persistent haze in Anhui Province in January 2013. Clim Environ Res, 19(2): 227-236 (in Chinese)
- 石春娥, 王喜全, 李元妮等. 2016a. 1980~2013 年安徽霾天气变化趋势及其可能成因. 大气科学, 40(2): 357-370. Shi C E, Wang X Q, Li Y N, et al. 2016a. The trend of haze in Anhui province from 1980 to 2013 and the possible reasons. Chinese J Atmos Sci, 40(2): 357-370 (in Chinese)
- 石春娥, 邓学良, 朱彬等. 2016b. 合肥市不同天气条件下大气气溶胶粒子理化特征分析. 气象学报, 74(1): 149-163. Shi C E, Deng X L, Zhu B, et al. 2016b. Physical and chemical characteristics of atmospheric aerosol under the different weather conditions in Hefei. Acta Meteor Sinica, 74(1): 149-163 (in Chinese)
- 石春娥, 张浩, 马井会等. 2017. 基于测能见度的霾天气判断标准的探讨. 高原气象, doi: 10. 7522/j. issn. 1000-0534. 2016. 00131. Shi Chune, Zhang Hao, Ma Jinghui, et al. 2017. Investigation on norm of haze identification based on hourly auto-monitored Visibility. Plateau Meteor, doi: 10. 7522/j. issn. 1000-0534. 2016. 00131 (in Chinese)
- 吴兑. 2013. 探秘 PM_{2.5}. 北京: 气象出版社, 106pp. Wu D. 2013. Insights into PM_{2.5}. Beijing: China Meteorological Press, 106pp (in Chinese)
- 吴兑, 陈位超, 常业谛等. 1994a. 华南地区大气气溶胶质量谱与水溶性成分谱分布的初步研究. 热带气象学报, 10(1): 85-96. Wu D, Chen W C, Chang Y D, et al. 1994a. A primary study of the size-distribution and water soluble composition distribution of atmospheric aerosols over south China. J Trop Meteor, 10(1): 85-96 (in Chinese)
- 吴兑, 陈位超. 1994b. 广州气溶胶质量谱与水溶性成分谱的年变化特征. 气象学报, 52(4): 499-505. Wu D, Chen W C. 1994b. Intra-annual variation features of mass distribution and water soluble composition distribution of atmospheric aerosols over Guangzhou. Acta Meteor Sinica, 52(4): 499-505 (in Chinese)

- 吴兑. 1995. 南海北部大气气溶胶水溶性成分谱分布特征. 大气科学, 19(5): 615-622. Wu D. 1995. The distribution characteristics of water-soluble composition of atmospheric aerosol over north of the South China Sea. *Sci Atmos Sinica*, 19(5): 615-622 (in Chinese)
- 杨元建, 傅云飞, 吴必文等. 2013. 秸秆焚烧对中国东部气溶胶时空格局的影响. 大气与环境光学学报, 8(4): 241-252. Yang Y J, Fu Y F, Wu B W, et al. 2013. Impacts of agricultural fire on aerosol distribution over East China during summer harvest time. *J Atmos Environ Optics*, 8(4): 241-252 (in Chinese)
- 银燕, 童尧青, 魏玉香等. 2009. 南京市大气细颗粒物化学成分分析. 大气科学学报, 32(6): 723-733. Yin Y, Tong Y Q, Wei Y X, et al. 2009. The analysis of chemistry composition of fine-mode particles in Nanjing. *Trans Atmos Sci*, 32(6): 723-733 (in Chinese)
- 张浩, 石春娥, 邱明燕等. 2010. 合肥市霾天气变化特征及其影响因素. 环境科学学报, 30(4): 714-721. Zhang H, Shi C E, Qiu M Y, et al. 2010. Long-term variation of haze phenomena in Hefei and its impact factors. *Acta Sci Circumst*, 30(4): 714-721 (in Chinese)
- 张晶, 陈宗良, 王玮. 1998. 北京市大气小颗粒物的污染源解析. 环境科学学报, 18(1): 62-67. Zhang J, Chen Z L, Wang W. 1998. Source appointment on fine particulates in atmosphere in Beijing. *Acta Sci Circumst*, 18(1): 62-67 (in Chinese)
- 张秋晨, 朱彬, 苏继峰等. 2012. 南京3类不同大气污染过程下气溶胶水溶性无机离子的特征研究. 环境科学, 33(6): 1944-1951. Zhang Q C, Zhu B, Su J F, et al. 2012. Characteristics of aerosol water-soluble inorganic ions in three types air-pollution incidents of Nanjing City. *Environ Sci*, 33(6): 1944-1951 (in Chinese)
- 郑海涛, 刘建国, 李杰等. 2016. 河南省一次PM_{2.5}污染过程区域性影响数值模拟. 环境科学研究, 29(5): 617-626. Zheng H T, Liu J G, Li J, et al. 2016. Modeling impacts of regional transport on PM_{2.5} air pollution: Case study in Henan Province. *Res Environ Sci*, 29(5): 617-626 (in Chinese)
- 周敏, 陈长虹, 乔利平等. 2013. 2013年1月中国中东部大气重污染期间上海颗粒物的污染特征. 环境科学学报, 33(11): 3118-3126. Zhou M, Chen C H, Qiao L P, et al. 2013. The chemical characteristics of particulate matters in Shanghai during heavy air pollution episode in central and eastern China in January 2013. *Acta Sci Circumst*, 33(11): 3118-3126 (in Chinese)
- 周自江, 章国材. 2003. 中国北方的典型强沙尘暴事件(1954~2002年). 科学通报, 48(11): 1224-1228. Zhou Z J, Zhang G C. 2003. Typical severe dust storms in northern China during 1954-2002. *Chinese Sci Bull*, 48(21): 2366-2370
- 朱彤, 尚静, 赵德峰. 2010. 大气复合污染及灰霾形成中非均相化学过程的作用. 中国科学: 化学, 40(12): 1731-1740. Zhu T, Shang J, Zhao D F. 2010. The roles of heterogeneous chemical processes in the formation of an air pollution complex and gray haze. *Sci China Chem*, 54(1): 145-153
- Cheng Y, He K B, Du Z Y, et al. 2015. Humidity plays an important role in the PM_{2.5} pollution in Beijing. *Environ Pollut*, 197: 68-75
- Deng X L, Shi C E, Wu B W, et al. 2016. Characteristics of the water-soluble components of aerosol particles in Hefei, China. *J Environ Sci*, 42: 32-40
- Du H H, Kong L D, Cheng T T, et al. 2011. Insights into summertime haze pollution events over Shanghai based on online water-soluble ionic composition of aerosols. *Atmos Environ*, 45(29): 5131-5137
- Feng J L, Chan C K, Fang M, et al. 2006. Characteristics of organic matter in PM_{2.5} in Shanghai. *Chemosphere*, 64(8): 1393-1400
- Feng Y L, Chen Y J, Guo H, et al. 2009. Characteristics of organic and elemental carbon in PM_{2.5} samples in Shanghai, China. *Atmos Res*, 92(4): 434-442
- Fu Q Y, Zhuang G S, Wang J, et al. 2008. Mechanism of formation of the heaviest pollution episode ever recorded in the Yangtze River Delta, China. *Atmos Environ*, 42(9): 2023-2036
- He J B, Fan S X, Meng Q Z, et al. 2014. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) associated with fine particulate matters in Nanjing, China: Distributions, sources and meteorological influences. *Atmos Environ*, 89: 207-215
- He K B, Yang F M, Ma Y L, et al. 2001. The characteristics of PM_{2.5} in Beijing, China. *Atmos Environ*, 35(29): 4959-4970
- Jansen R C, Shi Y, Chen J M, et al. 2014. Using hourly measurements to explore the role of secondary inorganic aerosol in PM_{2.5} during haze and fog in Hangzhou, China. *Adv Atmos Sci*, 31(6): 1427-1434
- Pan Y P, Wang Y S, Zhang J K, et al. 2016. Redefining the importance of nitrate during haze pollution to help optimize an emission control strategy. *Atmos Environ*, 141: 197-202
- Tan J H, Duan J C, He K B, et al. 2009. Chemical characteristics of PM_{2.5} during a typical haze episode in Guangzhou. *J Environ Sci*, 21(6): 774-781
- Tao J, Cao J J, Zhang R J, et al. 2012. Reconstructed light extinction coefficients using chemical compositions of PM_{2.5} in winter in urban Guangzhou, China. *Adv Atmos Sci*, 29(2): 359-368
- Tao J, Cheng T T, Zhang R J, et al. 2013. Chemical composition of PM_{2.5} at an urban site of Chengdu in southwestern China. *Adv Atmos Sci*, 30(4): 1070-1084
- Wang G, Zhang R, Gomez M E, et al. 2016. Persistent sulfate formation from London fog to Chinese haze. *Proc Natl Acad Sci U S A*, 113(48): 13630-13635
- Wu D, Wang Z, Wang B, et al. 2011. CALIPSO validation using ground-based lidar in Hefei (31.9°N, 117.2°E), China. *Appl Phys B*, 102(1): 185-195
- Yao X H, Lau A P S, Fang M, et al. 2003. Size distributions and formation of ionic species in atmospheric particulate pollutants in Beijing, China: 1-inorganic ions. *Atmos Environ*, 37(21): 2991-3000
- Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, et al. 2009. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission. *Atmos Chem Phys*, 9(14): 5131-5153